



HAL
open science

Transport polarisé en spin à travers une barrière de MgO(001) : Magnétorésistance et couplage magnétique

Amandine Duluard

► **To cite this version:**

Amandine Duluard. Transport polarisé en spin à travers une barrière de MgO(001) : Magnétorésistance et couplage magnétique. Autre [cond-mat.other]. Université de Lorraine, 2012. Français. NNT : 2012LORR0131 . tel-01749325v2

HAL Id: tel-01749325

<https://theses.hal.science/tel-01749325v2>

Submitted on 3 Jan 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

présentée pour obtenir le titre de

Docteur de l'Université de Lorraine

en Physique

par Amandine DULUARD

**Transport polarisé en spin à travers
une barrière de MgO(001) :
magnétorésistance et couplage magnétique**

Soutenue publiquement le 12 Novembre 2012, devant le jury composé de :

Président	Michel Hehn	Professeur des Universités
Rapporteurs	Aziz Dinia	Professeur des Universités
	Olivier Fruchart	Directeur de recherches CNRS
Examineurs	Mairbek Chshiev	Professeur associé
	Bernard Dieny	Ingénieur CEA
	Henri Jaffrès	Chargé de recherches CNRS
Directeurs de thèse	Coriolan Tiusan	Chargé de recherches CNRS
	Christine Bellouard	Maître de Conférences

Michel Hehn	Professeur des Universités Habilitation à diriger des recherches Institut Jean Lamour – UMR CNRS/Université de Lorraine, Nancy
Aziz Dinia	Professeur des Universités Doctorat d'Etat IPCMS – UMR CNRS/Université Louis Pasteur, Strasbourg
Olivier Fruchart	Directeur de recherches CNRS Habilitation à diriger des recherches Institut Néel, Grenoble
Mairbek Chshiev	Professeur associé Habilitation à diriger des recherches SPINTEC – UMR CEA/CNRS/Université de Grenoble, Grenoble
Bernard Dieny	Ingénieur CEA Habilitation à diriger des recherches SPINTEC – UMR CEA/CNRS/Université de Grenoble, Grenoble
Henri Jaffrès	Chargé de recherches CNRS Université Paris Sud 11 – UMP CNRS/Thales, Palaiseau
Coriolan Tiusan	Chargé de recherches CNRS Habilitation à diriger des recherches Technical University Cluj-Napoca, Cluj-Napoca, Roumanie
Christine Bellouard	Maître de conférences Institut Jean Lamour – UMR CNRS/Université de Lorraine, Nancy

Remerciements

Je souhaiterais tout d'abord remercier Michel Hehn d'avoir accepté de présider mon jury de thèse, ainsi que Aziz Dinia et Olivier Fruchart pour avoir été les rapporteurs de ce manuscrit. Je remercie Mairbek Chshiev, Bernard Dieny et Henri Jaffres d'avoir contribué à l'examen de ce travail en participant au jury, et de leur relecture attentive du manuscrit. Je remercie également tous les membres du jury pour leurs remarques et commentaires, qui m'ont permis d'améliorer ce manuscrit.

Ce travail a été réalisé à l'Institut Jean Lamour de Nancy, au sein du département de Physique de la Matière et des Matériaux. Je tiens donc à remercier Michel Vergnat, directeur de ce département, pour son accueil.

Mes remerciements vont à présent naturellement à mes deux directeurs de thèse, Coriolan Tiusan et Christine Bellouard. Merci à toi Cori pour m'avoir proposé ce sujet de thèse et de m'avoir introduite dans le cercle des « Fe/MgO/Ferristes ». Maintenant je peux l'avouer, au début j'ai eu un peu peur : en près de dix ans de recherches sur les JTMs Fe/MgO/Fe, il est paru un nombre impressionnant de publications, qu'il fallait bien sûr que j'intègre « au plus vite »... Malgré tout ce qui avait déjà été fait sur ces systèmes tu demeurais convaincu qu'il restait des choses intéressantes à faire... et tu avais raison, et ce n'est à mon avis pas encore terminé ! Merci également d'avoir pris le temps durant ces deux dernières années d'étudier avec intérêt toutes les mesures et questions que nous avons pu t'envoyer, et d'avoir contribué à enrichir nos discussions de tes théories souvent un peu compliquées pour nous ! Enfin, bien évidemment, je tiens à remercier chaleureusement Christine, qui m'a encadrée au quotidien, et qui ne s'est jamais laissée impressionner par le sac de nœuds que représentait à une époque l'ensemble des mesures présentées dans ce manuscrit. Merci Christine pour ta disponibilité constante, ton investissement sans failles, et pour tes encouragements, cela m'a beaucoup aidée à tenir le rythme lors de la rédaction.

Je tiens également à remercier Beatrice Negulescu, qui, au cours de ma première année de thèse, m'a en quelque sorte prise sous son aile. Bea m'a en effet initiée au fonctionnement de la plupart des « manipes » : MBE, bancs de mesures de transport, VSM. Merci pour tout cela, tes précieux conseils m'ont beaucoup servi depuis.

J'ai aussi une pensée pour Michel Hehn et Yuan Lu, co-utilisateurs de la salle « blanche » MPGGA. Je m'excuse encore de vous avoir souvent enfermés dehors pour cause d'oscillations RHEED ou d'opération *wedge*... Je remercie Yuan pour les transferts MBE-pulvé souvent rocambolesques, ainsi que son aide lors des grandes révisions de la MBE. Merci à Michel pour la partie pulvé des échantillons hybrides, mais également pour l'attention qu'il a portée à mon travail durant la thèse. Je remercie aussi Marc Alnot, pour l'assistance sur la MBE, et sans qui le complexe MPGGA ne serait pas ce qu'il est actuellement, ainsi que Cyril Noirel pour ses automatisations qui rendent les journées d'élaboration plus faciles.

Je remercie également Stéphane Andrieu pour ses explications éclairantes sur les subtilités de la croissance épitaxiale et des oscillations de paramètre. Je garderai également longtemps en mémoire l'aventure Arizonienne, partagée avec Stéphane et Karine Dumesnil, et en particulier la journée de promenade sur piste dans le désert, et le fou rire du premier soir, lorsqu'en tripotant tous les boutons de notre véhicule *high-tech* nous avons fini par appeler les secours...

Je remercie tous ceux qui contribuent au bon fonctionnement de la salle blanche, en particulier François Montaigne, et Gwladys Lengaigne, qui m'a bien souvent remis des échantillons pleins de petites jonctions structurées par ses soins. Je remercie également Laurent Bouvot, pour sa maintenance de l'indispensable *wire bonding*, et ses conseils avisés pour la maîtrise de cet appareil pas toujours commode. Une fois les jonctions structurées et connectées à un *chip*, le PPMS était toujours prêt à les accueillir pour une série de mesures (ou claquages parfois...). Pour avoir assuré cette continuité et l'approvisionnement en hélium, je remercie Stéphane Suire. Enfin, merci à François, Michel et Daniel Lacour pour les bancs de mesures de transport hauts en couleurs, et pour leur disponibilité en cas de petit pépin sur l'un d'eux.

Lorsque les échantillons n'étaient pas structurés, ils étaient souvent examinés sous toutes leurs coutures dans des diffractomètres ou autres microscopes. Je remercie ainsi Sylvie Migot-Choux pour les clichés de microscopie électronique en transmission de l'échantillon texturé, ainsi qu'Etienne Snoeck du CEMES à Toulouse pour les clichés en haute résolution sur les échantillons à barrière fine. Enfin, merci à Sylvie Robert et Pascal Boulet pour les analyses en diffraction X, des plus simples et courantes, aux plus compliquées. Merci également à Sylvie R. pour sa disponibilité à m'expliquer les tenants et aboutissants des mesures X, ainsi que pour son accueil toujours chaleureux.

J'exprime également toute ma gratitude à ceux qui, dans l'ombre, font tout leur possible pour réparer au plus vite les incidents techniques, électriques ou informatiques plus ou moins graves. En particulier, un grand merci à Christian Senet qui m'a maintes fois sauvée du *bug* général, en remettant à leur place les vilains logiciels qui s'étaient ligüés contre moi, avec

toujours un mot pour rire, et ce malgré un emploi du temps fort chargé. Merci également à Hélène Huon, Karine Jacquot, Isabelle Fournelle et Valérie Madeline pour leur disponibilité et leur aide pour toutes les formalités administratives.

Je tiens à remercier tous les membres de l'équipe Nanomagnétisme et Electronique de spin pour leur accueil chaleureux et leur disponibilité, ceux cités plus haut, mais aussi Thomas Hauet, Olivier Lenoble, Stéphane Mangin, Hélène Fischer, Sébastien Petit-Watelot, Stefan Mc Murtry, Danielle Pierre, Mathieu Da Silva. Les autres membres de l'IJL m'ont également fait bon accueil, je les en remercie sincèrement. J'ai en particulier une pensée pour Hervé Rinnert et Thierry Réveillé, qui n'ont jamais douté du fait que nous discussions travail pendant la pause thé (!). Un merci également à Hamid M'Jahed et Bertrand Kierren.

Merci également à Yannick Fagot-Revurat qui fut mon tuteur de monitorat pendant ces trois années, ainsi qu'à Cécile Voinot et Clément Jacobs pour leur assistance en TP, avec qui ce fut un réel plaisir de travailler.

Un grand merci également aux forces vives du labo, tous les thésards et post-doctorants côtoyés au cours de ces trois années et demi. En premier lieu, Sylvain Le Gall et Matthias Gottwald qui furent successivement mes colocs de bureau. Merci à toi Sylvain de m'avoir supportée durant cette période pas toujours facile qu'est la rédaction, pour les discussions pas toujours scientifiques, et pour tes coups de main pour tout et n'importe quoi. Bientôt, tu pourras enfin ouvrir les fenêtres, allumer les néons et mettre de la musique à ta guise ! Aux thésards, avec qui j'ai partagé beaucoup de moments au labo et en dehors, Clément, Hanna, Sophie, Mathias, Amina, Jennifer, Guillaume, Pierre et Charles-Henri, je vous souhaite beaucoup de réussite pour la suite ! Je n'oublie pas Christel qui a déjà franchi le cap soutenance, et qui, je l'espère trouvera sa voie, ni Thibaut, à qui je souhaite tout le meilleur en Suisse (au passage quand tu seras de retour à Nancy, n'oublies pas que nous aimons beaucoup le chocolat !). Je souhaite de tout cœur bonne chance à Anthony et Sébastien dans leur recherche de post-doc, ainsi qu'à Matthias le Californien, Sylvain qui n'a jamais froid, Thomas « Jack Sparrow », Cédric le photographe, Romain et Simon dans la suite de leur carrière. J'ai également une pensée pour Fred, qui, du pays du soleil levant, m'a plusieurs fois éclairée sur les subtilités des manipes de sa thèse. Enfin, un merci tout particulier aux deux « drôles de dames » Emilie et Aurélie, qui ont été bien plus que des collègues thésardes, et grâce à qui j'ai particulièrement apprécié ces trois années de thèse. Merci à toutes les deux pour votre soutien, votre amitié, les moments festifs comme les pots de thèse ou de Noël (en rennes !), les stages résidentiels, les anniversaires de princesse, et les moments plus graves, qui ne l'étaient jamais très longtemps... je ne vous souhaite que du bonheur et de la réussite, et si possible pas trop loin de vos moitiés respectives.

Un merci chaleureux à Murielle et Marie Jo, ainsi qu'à tous les danseurs de Salsa, Rock, Swing, du mardi, jeudi, et parfois des autres jours de la semaine, pour tous les moments de détente et de défoulement, qui ont également permis de penser à autre chose que la thèse, ce qui est souvent salutaire.

J'adresse un énorme merci à celui qui me supporte au quotidien, Clément, merci pour tout, ta patience, ton soutien, de m'avoir secouée aussi certaines fois. Enfin, un immense merci à mes parents et à ma famille, qui m'ont encouragée et soutenue en toutes circonstances, et depuis de nombreuses années.

Table des matières

INTRODUCTION	1
CHAPITRE I - ÉTAT DE L'ART	5
I - 1 Régime des barrières épaisses : transport polarisé en spin et magnétorésistance tunnel.....	6
I - 1.1 Premières approches du transport polarisé en spin.....	6
I - 1.1.1 Modèle de Jullière	6
I - 1.1.2 Modèle des électrons libres	7
I - 1.1.3 Modèle de Slonczewski.....	9
I - 1.1.4 De la nécessité d'utiliser des modèles plus élaborés.....	9
I - 1.2 Transport polarisé en spin dans le système Fe/MgO/Fe(001)	10
I - 1.2.1 Structure du système et relations d'épitaxie.....	10
I - 1.2.2 Approches théoriques et approximations	11
I - 1.2.3 Conductances tunnel résolues en $k_{//}$	12
I - 1.2.4 Analyse du transport dans le régime asymptotique.....	13
I - 1.2.5 Influence des interfaces.....	18
I - 1.2.6 Confrontation avec les réalisations expérimentales	20
I - 1.3 Effet des défauts sur le transport polarisé en spin.....	22
I - 1.3.1 Lacunes d'oxygène dans la barrière	23
I - 1.3.2 Défauts structuraux liés au désaccord paramétrique	23
I - 1.3.3 Oxydation d'interface.....	24
I - 1.3.4 Contamination au C.....	27
I - 1.3.5 Synthèse	28
I - 1.4 Effet de la température sur le transport polarisé en spin.....	28
I - 1.4.1 Observations expérimentales.....	29
I - 1.4.2 Effets thermiques correctifs sur le transport tunnel direct et cohérent.....	30
I - 1.4.3 Processus de transport non élastiques induits thermiquement	32
I - 1.4.4 Synthèse	36
I - 2 Régime des barrières fines : couplages magnétiques entre les deux électrodes ferromagnétiques.....	36
I - 2.1 Couplage bilinéaire à travers une couche séparatrice métallique	37
I - 2.1.1 Introduction	37
I - 2.1.2 Couplage bilinéaire à température non nulle : modèle de Bruno	38
I - 2.1.3 Confrontation avec des observations en température.....	41
I - 2.2 Couplage bilinéaire à travers une couche séparatrice isolante.....	42
I - 2.2.1 Modèle de Bruno appliqué au cas d'une couche isolante	42
I - 2.2.2 Extension aux faibles épaisseurs d'isolant : contribution d'un mécanisme résonant.....	44

I - 2.2.3 Approches <i>ab initio</i> dans des empilements Fe/MgO/Fe	45
I - 2.2.4 Synthèse	46
I - 2.3 Couplage biquadratique	47
I - 2.3.1 Origine intrinsèque	48
I - 2.3.2 Mécanismes liés à la topographie des interfaces	48
I - 2.3.3 Modèle de loose spins	51
I - 2.3.4 Synthèse	53
I - 2.4 Observations expérimentales pour une couche séparatrice non-métallique	53
I - 2.4.1 Couplage à travers une couche semi-conductrice	54
I - 2.4.2 Couplage à travers une barrière de MgO	56
I - 3 Contexte de la thèse, problématique et plan.....	60
I - 3.1 Contexte	61
I - 3.2 Axes d'étude	62
I - 3.3 Organisation du manuscrit	63
CHAPITRE II - ELABORATION DE JONCTIONS A MORPHOLOGIE MODULEE	65
II - 1 Jonctions Fe/MgO/Fe(001) à interface inférieure modulée.....	66
II - 1.1 Elaboration de l'électrode inférieure.....	66
II - 1.1.1 Préparation d'une surface de Fe lisse et non contaminée.....	66
II - 1.1.2 Préparation d'une électrode de fer dopée-carbone.....	67
II - 1.2 Apport de la diffraction RHEED pour l'étude de la croissance	70
II - 1.2.1 Introduction.....	70
II - 1.2.2 Oscillations d'intensité RHEED	71
II - 1.2.3 Variations du paramètre moyen	71
II - 1.2.4 Oscillations de largeur à mi-hauteur	73
II - 1.2.5 Procédure expérimentale.....	74
II - 1.3 Dépôt et caractérisation <i>in situ</i> des îlots	75
II - 1.3.1 Conditions expérimentales, influence de la température	75
II - 1.3.2 Estimation de la distance entre îlots de Fe/Fe(001).....	77
II - 1.3.3 Relaxation du paramètre moyen de surface	80
II - 1.4 Croissance d'une barrière de MgO sur une électrode avec ou sans îlots de fer	82
II - 1.4.1 Conditions expérimentales et systèmes étudiés	82
II - 1.4.2 Approche comparative globale	84
II - 1.4.3 Relations de phase.....	85
II - 1.4.4 Evolution des oscillations de paramètre avec la morphologie.....	85
II - 1.4.5 Cas particulier des barrières fines	88
II - 2 Jonctions Fe/MgO/CoFeB à structure cristalline mixte.....	90
II - 2.1 Croissance et cristallisation d'une couche de CoFeB sur une barrière de MgO monocristalline	90
II - 2.2 Caractérisation <i>ex situ</i> des échantillons Fe/MgO/CoFe(B)	92
II - 3 Jonctions Fe/MgO/Fe à structure cristalline texturée (001)	94
II - 3.1 Croissance des échantillons et caractérisation <i>in situ</i>	94
II - 3.1.1 Préparation du substrat de Si(001).....	94

II - 3.1.2 Croissance et caractérisation <i>in situ</i> d'empilements Fe/MgO/Fe à texture (001).....	96
II - 3.2 Caractérisation <i>ex situ</i> d'échantillons texturés	98
II - 3.2.1 Etude par diffraction des rayons X	98
II - 3.2.2 Etude par microscopie électronique en transmission.....	100
II - 4 Conclusion	102
CHAPITRE III – TRANSPORT POLARISE EN SPIN DANS DES JTMS A BARRIERE EPAISSE DE MgO.....	105
III - 1 Détails expérimentaux	106
III - 1.1 Structuration des échantillons	106
III - 1.2 Mesures de magnéto-transport	106
III - 2 Jonctions tunnel à architecture hybride Fe/MgO/CoFeB	107
III - 2.1 Réponse magnétique	108
III - 2.2 Effet de la tension appliquée	110
III - 2.2.1 Etude comparative avec des systèmes modèles.....	111
III - 2.2.2 Oxydation de l'électrode inférieure.....	114
III - 2.3 Effet de la température	119
III - 2.4 Synthèse	124
III - 3 Jonctions tunnel Fe/MgO/Fe à texture (001).....	125
III - 3.1 Réponse magnétique	125
III - 3.2 Effet de la tension appliquée	127
III - 3.3 Effet de la température	131
III - 3.4 Synthèse	134
III - 4 Jonctions tunnel épitaxiées Fe/MgO/Fe avec et sans îlots de Fe	135
III - 4.1 Mise en évidence d'une deuxième barrière.....	136
III - 4.1.1 Effet du recouvrement	136
III - 4.1.2 Effet de la tension à basse température	138
III - 4.1.3 Effet de la température	145
III - 4.2 Origine physique de la deuxième barrière.....	146
III - 4.2.1 Des signatures d'oxydation	146
III - 4.2.2 Oxydation et symétries électroniques.....	148
III - 4.3 Synthèse	148
III - 5 Conclusion	150
III - 5.1 Analyse comparative des trois systèmes étudiés.....	150
III - 5.1.1 Dépendance en tension de G_p : oxydation de l'interface inférieure	150
III - 5.1.2 Dépendance en température : filtrage en symétrie	152
III - 5.2 Conclusion.....	156

CHAPITRE IV - COUPLAGE MAGNETIQUE DANS DES JTMS A BARRIERE FINE DE MgO.....	159
IV - 1 Les systèmes antiferromagnétiques artificiels (AAF).....	160
IV - 1.1 Structure d'un AAF.....	160
IV - 1.2 Comportement magnétique.....	161
IV - 1.3 Expression des constantes de couplage J et J_b	162
IV - 2 Dépendance en température du couplage AF dans les JTMS Fe/MgO/Fe.....	165
IV - 2.1 Résultats expérimentaux.....	165
IV - 2.1.1 Mesures à basse température.....	165
IV - 2.1.2 Mesures à haute température.....	168
IV - 2.2 Modélisation des dépendances en température de J_S et J_P	170
IV - 2.2.1 Contribution d'échange.....	170
IV - 2.2.2 Introduction d'une seconde contribution.....	174
IV - 2.3 Evolution des paramètres d'ajustement avec l'épaisseur de MgO.....	175
IV - 2.3.1 Couplage par échange vs couplage thermiquement activé.....	175
IV - 2.3.2 Paramètres associés au terme d'échange.....	176
IV - 2.3.3 Paramètres associés au couplage thermiquement activé.....	177
IV - 2.3.4 Influence de l'épaisseur de la couche « douce ».....	178
IV - 2.4 Synthèse.....	180
IV - 3 Contamination au carbone de l'interface inférieure.....	180
IV - 3.1 Influence de l'épaisseur de la barrière.....	181
IV - 3.2 Etude en température.....	182
IV - 3.2.1 Evolution de J_S et J_P avec la température.....	182
IV - 3.2.2 Influence du C sur les paramètres d'ajustement.....	183
IV - 3.3 Synthèse.....	186
IV - 4 Insertion d'îlots à l'interface inférieure.....	187
IV - 4.1 Influence de l'épaisseur de la barrière.....	187
IV - 4.2 Etude en température.....	188
IV - 4.3 Influence de la densité d'îlots.....	190
IV - 4.4 Synthèse.....	191
IV - 5 Conclusion.....	192
IV - 5.1 Comparaison avec des résultats antérieurs.....	192
IV - 5.1.1 Couplage AF dans Fe/MgO/Fe : un couplage par effet tunnel ?.....	192
IV - 5.1.2 Evolution en température des couplages bilinéaire et biquadratique.....	194
IV - 5.1.3 Une barrière à gap modulable ?.....	195
IV - 5.2 Conclusion.....	197
CONCLUSION ET PERSPECTIVES	199
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	205
ANNEXE A – EXPRESSIONS ANALYTIQUES DES CONSTANTES J ET J_B	221

Introduction

Les multicouches constituées de deux couches minces ferromagnétiques séparées par une couche mince non magnétique métallique constituent le cœur de recherches aussi bien fondamentales qu'appliquées depuis la fin des années 1980. La découverte de la magnétorésistance géante ou GMR¹ en 1988 dans des empilements Fe/Cr/Fe, qui fut récompensée par l'attribution d'un prix Nobel de Physique en 2007, contribua grandement à cet engouement. Elle permit en effet la naissance et l'essor d'une nouvelle branche des nanosciences : l'électronique de spin, régie par une physique fondamentale très riche et purement quantique, dont les applications à travers des dispositifs dédiés sont nombreuses. L'application la plus couramment répandue est la lecture d'informations stockées dans les disques durs, qui se fait depuis 1997 grâce à des têtes de lecture à effet GMR. Une autre découverte participa, de manière plus discrète mais tout aussi déterminante, à l'intérêt porté à ces multicouches : celle du couplage d'échange antiferromagnétique entre les deux électrodes ferromagnétiques de fer à travers la couche métallique de chrome. Des multicouches couplées par cette interaction sont en effet très souvent employées comme l'une des briques élémentaires constituant les dispositifs dédiés à l'électronique de spin, en vertu de leurs propriétés magnétiques quasiment ajustables à l'envi.

Ces propriétés ne sont pas l'apanage des systèmes à couche séparatrice (entre les deux couches magnétiques) métallique. On peut en effet aussi les observer dans des systèmes appelés jonctions tunnel magnétiques ou JTMs, constitués de deux couches ferromagnétiques séparées par une « barrière », un film isolant d'épaisseur nanométrique. Dans ces systèmes, le pendant de l'effet de magnétorésistance géante est appelé magnétorésistance tunnel ou

¹ GMR : *Giant MagnetoResistance*.

TMR² ; bien que sa découverte fut antérieure à celle de la GMR (M. Jullière le met en évidence en 1975), cet effet n'a suscité un réel intérêt qu'au milieu des années 1990, dès lors que des valeurs de TMR significatives ont été observées de manière reproductible à température ambiante. Depuis, les progrès dans l'élaboration des JTMs et la compréhension des phénomènes y siégeant ont permis de placer ces systèmes au cœur des applications technologiques de type capteurs, mémoires magnétiques et oscillateurs à haute fréquence. De plus, une interaction antiferromagnétique entre les deux couches de fer est observée dans ces JTMs comme dans les systèmes à couche séparatrice métallique ; cela permet donc d'envisager des applications similaires en tant que sous-systèmes dans des dispositifs pour l'électronique de spin.

D'un point de vue plus fondamental, une description précise des phénomènes électroniques se produisant dans ces JTMs ne peut être obtenue que dans des systèmes où les positions atomiques sont connues exactement. Ce type de description n'était alors pas envisageable pour les premiers dispositifs conçus à base de matériaux amorphes ou polycristallins. C'est ainsi que dès le début des années 2000, des systèmes « modèles » épitaxiés, permettant la comparaison de résultats théoriques et expérimentaux, ont été élaborés et étudiés. Dans ces JTMs épitaxiées, l'ordre cristallin ne permet pas seulement une description structurale simplifiée, il confère également des propriétés nouvelles, de symétrie, aux états électroniques : la physique du transport est ainsi complexifiée et enrichie. Dans ce cadre, un système a en particulier cristallisé l'attention : le système épitaxié Fe/MgO/Fe(001).

L'Institut Jean Lamour de Nancy, intégrant depuis 2009 le Laboratoire de Physique des Matériaux (LPM), fait partie des laboratoires pionniers dans l'étude des propriétés de ce système modèle Fe/MgO/Fe(001). Quatre thèses se sont en effet succédé depuis 2001, permettant au laboratoire d'acquérir une expertise dans ce domaine, du point de vue de l'optimisation des propriétés des JTMs Fe/MgO/Fe(001), mais aussi en ce qui concerne la compréhension des phénomènes y étant à l'œuvre. La première thèse, soutenue en 2004 par Jérôme Faure-Vincent, présente une étude détaillée de la croissance, de la structuration, du transport et du magnétisme dans ces jonctions. Cette étude mène à l'obtention de valeurs de magnétorésistance encourageantes, et à la première mise en évidence expérimentale d'une interaction antiferromagnétique entre les deux électrodes de fer, à travers la barrière de MgO. En 2005, Muriel Sicot offre une étude des interfaces métal/isolant sondées par le rayonnement synchrotron. M. Sicot poursuit l'optimisation des propriétés des empilements, aboutissant à l'élaboration de JTMs Fe/MgO/Fe(001) dont la qualité constitue actuellement l'état de l'art. Deux thèses sont soutenues en 2009. Tout d'abord, celle de Fanny Greullet est principalement dédiée à une compréhension plus approfondie des phénomènes de transport inhérents aux

² TMR : *Tunnel MagnetoResistance*.

jonctions tunnel à barrière de MgO(001). Pour cela, une étude fine du transport dans les régimes statique et dynamique est mise en œuvre ; ce travail conduit alors à une démonstration claire de l'effet de filtrage en symétrie dans les JTMs Fe/MgO/Fe(001). La seconde, celle de Frédéric Bonell, annonce le retour à l'optimisation structurale des jonctions ; cette thèse présente en effet une analyse détaillée du rôle des défauts et imperfections. Elle propose une étude inédite sur l'influence de l'oxydation d'interface sur les propriétés des JTMs Fe/MgO/Fe(001), et, via la mise en évidence de l'impact néfaste de la présence de dislocations dans la barrière, ouvre des perspectives pour une amélioration des propriétés magnétorésistives des JTMs épitaxiées.

Les recherches menées sur les JTMs ont ainsi été jusqu'à présent fortement orientées vers une optimisation de la TMR, en particulier grâce à l'amélioration structurale des échantillons via des recuits pour cristalliser les empilements : une procédure détaillée, permettant l'obtention de dispositifs performants, est désormais établie. Toutefois, les raisons fondamentales de l'accroissement des performances observées dans ces systèmes optimisés ne sont pas toujours bien claires. De même, en ce qui concerne les interactions entre électrodes ferromagnétiques à travers la barrière, les études sont davantage orientées vers la recherche de nouveaux systèmes présentant cet effet, que vers la compréhension de l'origine des mécanismes régissant ce couplage.

L'étude développée dans cette thèse concernant ces phénomènes physiques dans des JTMs à barrière de MgO(001) vise un but complètement différent. Cette approche se situe ainsi en amont des précédentes thèses, et privilégie des systèmes « basiques » dont les performances en termes de TMR ne sont pas nécessairement optimales, mais ayant un fort potentiel pour comprendre l'effet structural à des échelles atomiques, nano- ou micrométrique. De même, en ce qui concerne le couplage entre les électrodes magnétiques, nous reprenons l'étude sur le système originel Fe/MgO/Fe(001) épitaxié, initiée par J. Faure-Vincent en 2002.

L'objectif principal de cette thèse est l'étude et la mise en relation des propriétés de transport tunnel et de couplage magnétique des JTMs Fe/MgO/Fe épitaxiées. La stratégie mise en œuvre pour cela est l'élaboration et la caractérisation de systèmes à structure cristalline ou d'interface modulée. Nous testerons, d'une part, l'impact de la structure cristalline de volume, ainsi que de la topographie d'interface sur les propriétés de transport, et d'autre part, la relation entre les caractéristiques structurales et chimiques de l'interface, et l'interaction antiferromagnétique entre les deux couches de fer. Nous nous appuierons pour cela sur divers moyens de caractérisation structurale, magnétique, électrique disponibles au laboratoire, et en particulier sur ceux permettant des analyses en température. Ces dernières constitueront la principale innovation du point de vue expérimental de ce travail par rapport aux précédentes thèses sur les JTMs épitaxiées Fe/MgO/Fe.

Le Chapitre I détaille tout d'abord les phénomènes observés dans les JTMs Fe/MgO/Fe épitaxiés, et précise le contexte dans lequel se place ce travail de thèse. Le Chapitre II développe des aspects concernant la croissance et l'élaboration des systèmes étudiés, et présente les résultats issus des caractérisations *in situ* et *ex situ* de ces empilements. Le Chapitre III est focalisé sur l'étude des caractéristiques de transport polarisé en spin et symétrie dans des JTMs à barrières épaisses, et discute de l'influence de la structure cristalline sur ces caractéristiques. Enfin, le dernier chapitre expose l'étude des interactions magnétiques dans des JTMs à barrières fines, et s'intéresse à l'effet d'une modification structurale et/ou chimique de l'interface inférieure.

Chapitre I - Etat de l'art

Pour une couche séparatrice mince (quelques nanomètres au plus), les multicouches {matériau ferromagnétique / couche séparatrice / matériau ferromagnétique} présentent des propriétés tout à fait remarquables. On peut ainsi observer, suivant l'épaisseur de la couche séparatrice, un effet de magnétorésistance ou de couplage magnétique de forte ampleur entre les deux électrodes. Nous nous intéressons dans ce chapitre aux modèles, ainsi qu'aux réalisations expérimentales publiés au sujet de ces deux effets dans divers systèmes expérimentaux. Nous y avons pour objectif de poser les bases nécessaires à l'appréhension de ces propriétés dans les jonctions tunnel magnétiques épitaxiées Fe/MgO/Fe(001).

Nous commencerons donc par un état des connaissances concernant les propriétés de transport et de magnétorésistance dans les jonctions tunnel magnétiques, avec un intérêt particulier porté au système épitaxié Fe/MgO/Fe. Une revue des travaux menés sur les interactions magnétiques dans des systèmes {matériau ferromagnétique / couche séparatrice / matériau ferromagnétique} suivra. Enfin, à partir de ces constatations, nous présenterons la problématique qui anime ce travail de thèse et régit l'organisation du manuscrit.

I - 1 Régime des barrières épaisses : transport polarisé en spin et magnétorésistance tunnel

Une jonction tunnel magnétique (JTM) est constituée de deux électrodes métalliques ferromagnétiques séparées par une fine couche isolante. La couche isolante est si fine, de l'ordre de quelques nanomètres au maximum, que le passage d'un courant par effet tunnel des électrons y est mesurable lorsqu'une différence de potentiel est appliquée aux bornes des deux électrodes.

La particularité des JTMs est que l'intensité du courant tunnel, et par conséquent la résistance de la structure, dépendent de l'orientation relative des aimantations des deux couches ferromagnétiques. Généralement, la résistance est minimale lorsque les aimantations sont en configuration parallèle et atteint une valeur maximale pour une configuration antiparallèle. Cet effet est nommé magnétorésistance tunnel (TMR¹), et est quantifié à partir de la variation relative de résistance observée entre ces deux valeurs extrêmes :

$$TMR = \frac{R_{AP} - R_P}{R_P} \quad (I-1)$$

Cet effet de magnétorésistance tunnel observé dans des JTMs est une conséquence de la polarisation en spin du transport des électrons par effet tunnel dans la barrière. Nous commençons ce paragraphe par la présentation des principales approches employées pour modéliser ce transport polarisé en spin, des plus simples, basées sur une approximation d'électrons libres, aux plus élaborées, impliquant des calculs *ab initio* des structures de bandes et des coefficients de transmission dans la barrière.

I - 1.1 Premières approches du transport polarisé en spin

Compte tenu du nombre de travaux précédents disponibles, nous nous restreindrons à donner les grandes lignes de ces modèles analytiques simples. Pour de plus amples détails sur les différents modèles développés dans le cadre d'approches électrons libres, nous renvoyons le lecteur aux chapitres bibliographiques de J. Faure-Vincent et F. Bonell dans les références [1, 2], ainsi qu'aux articles de revue [3–5].

I - 1.1.1 Modèle de Jullière

La première mesure de magnétorésistance tunnel dans un empilement {ferromagnétique/isolant/ferromagnétique} est rapportée en 1975 par M. Jullière, sur le

¹ TMR : *Tunnel Magnetoresistance*

système Fe/Ge/Co [6]. Jullière mesure ainsi une magnétorésistance de 14% à 4.2 K, qui s'annule sous l'effet d'une faible tension ou d'une élévation de la température.

Jullière se base alors sur deux hypothèses pour établir une expression de la TMR. Ainsi, il suppose d'une part la conservation du spin au cours du processus tunnel, ce qui implique que la conduction des spins \uparrow et \downarrow se fait selon deux canaux indépendants ; d'autre part, la conductance tunnel G est supposée proportionnelle au produit des densités d'états à l'énergie de Fermi des deux électrodes. Dans ce cadre, la TMR peut alors s'écrire :

$$TMR = \frac{G_P - G_{AP}}{G_{AP}} = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2} \quad (I-2)$$

La polarisation en spin des électrodes ferromagnétiques P_i ($i = 1, 2$) est ici telle que définie par Tedrow et Merservey [7], relativement aux densités d'états majoritaires (n_i^\uparrow) et minoritaires (n_i^\downarrow) au niveau de Fermi de l'électrode i :

$$P_i = \frac{n_i^\uparrow - n_i^\downarrow}{n_i^\uparrow + n_i^\downarrow} \quad (I-3)$$

Dans cette première formulation de la TMR, l'influence de la barrière est totalement négligée, et la TMR ne dépend que de la nature des électrodes. Par ailleurs, les valeurs des polarisations déterminées d'après l'expression (I-2) pour le Fe, le Co et le Ni sont toutes positives [4], alors que les calculs de structure électronique prévoient une densité d'états au niveau de Fermi pour le Co et le Ni beaucoup plus importante pour les électrons de spin minoritaire [5], et donc une polarisation négative.

Ce désaccord conduit à abandonner la notion de polarisation d'électrode (au sens où nous l'avons définie plus haut (équation (I-3)) au profit d'une polarisation effective, prenant en compte uniquement les états électroniques réellement impliqués dans le processus tunnel. Nous en verrons un exemple dans les paragraphes suivants, consacrés à une description plus complète du phénomène de transport polarisé en spin dans un système JTM.

I - 1.1.2 Modèle des électrons libres

Nous considérons dans cette section des électrons libres, arrivant sur une barrière de potentiel de profil rectangulaire, d'épaisseur d . Dans chacune des trois régions, les électrons sont soumis à des potentiels différents, à savoir V_1 et V_2 dans les électrodes 1 et 2, et V_B dans la barrière ; ces potentiels vérifient les relations $V_1 \leq E_F$, $V_2 \leq E_F$ et $V_B > E_F$. Les électrodes sont décrites par deux demi-bandes paraboliques, décalées en énergie l'une par rapport à l'autre par le champ moléculaire h_i ; les potentiels V_1 et V_2 dépendent donc du spin $\sigma = \uparrow, \downarrow$ (Figure I-1).

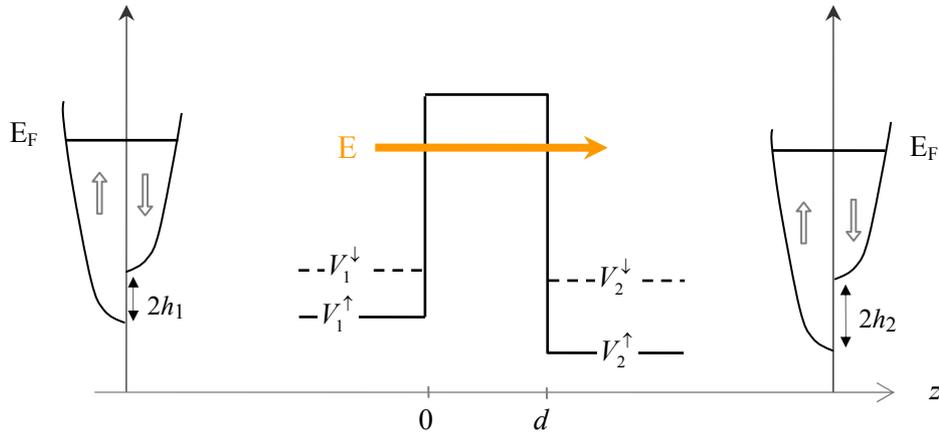


Figure I-1 – Représentation schématique des électrodes dans le modèle des électrons libres à deux bandes, et du profil de potentiel perçu par un électron dans une JTM.

En se plaçant à température nulle, en ne considérant que le cas de très faibles tensions appliquées, et en supposant la conservation de la composante planaire $k_{//}$ du vecteur d'onde au cours du transport, il est possible de déterminer analytiquement la fonction d'onde satisfaisant à l'équation de Schrödinger à une dimension de ce système et respectant les conditions de continuité aux interfaces. La probabilité de transmission d'un électron de spin σ à travers la barrière isolante s'écrit ainsi [8] :

$$T_B^\sigma(k_{//}) = \frac{16 k_1^\sigma \kappa^2 k_2^\sigma \exp(2\kappa d)}{\left\{ \kappa (k_1^\sigma + k_2^\sigma) [1 + \exp(2\kappa d)] \right\}^2 + \left\{ (\kappa^2 - k_1^\sigma k_2^\sigma) [1 - \exp(-2\kappa d)] \right\}^2} \quad (\text{I-4})$$

k_1 , k_2 et κ sont les composantes perpendiculaires aux interfaces des vecteurs d'onde associés à un électron d'énergie E_F se propageant respectivement dans les électrodes 1 et 2, et dans la barrière. Les expressions de ces vecteurs d'onde sont données par les relations (I-5), où $\hbar = h/2\pi$ est la constante de Planck réduite, et m la masse de l'électron :

$$k_i^\sigma = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} (E_F - V_i^\sigma) - k_{//}^2} \quad \text{et} \quad \kappa = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} (V_B - E_F) + k_{//}^2} \quad (\text{I-5})$$

On constate dans ces relations que κ , généralement appelé taux d'atténuation dans la barrière, est minimal pour des électrons se propageant perpendiculairement aux interfaces, c'est-à-dire de $k_{//} = 0$; ces électrons ont donc la plus forte probabilité de contribuer au transport tunnel. Dans la limite des barrières très épaisses, le courant tunnel est donc, dans le cadre de ce modèle des électrons libres, porté par des électrons de $k_{//}$ proche de zéro.

I - 1.1.3 Modèle de Slonczewski

En ajoutant aux hypothèses énoncées précédemment l'approximation d'une barrière très épaisse ($\exp(2\kappa d) \gg 1$), et en ne considérant que la contribution au courant tunnel des électrons de $k_{//} = 0$, J. Slonczewski [9] obtient une expression des conductances en fonction de l'angle θ entre les aimantations des deux électrodes :

$$G(\theta) = G_0 (1 + P_1^{eff} P_2^{eff} \cos \theta) \quad (I-6)$$

Dans cette expression, P_i^{eff} est la polarisation en spin effective des électrons tunnel dans l'électrode i , donnée par :

$$P_i^{eff} = \frac{k_i^\uparrow - k_i^\downarrow}{k_i^\uparrow + k_i^\downarrow} \cdot \frac{\kappa_0^2 - k_i^\uparrow k_i^\downarrow}{\kappa_0^2 + k_i^\uparrow k_i^\downarrow}, \quad (I-7)$$

avec $\kappa_0 = \sqrt{(2m/\hbar^2)(V_B - E_F)}$, décrivant le taux d'atténuation de la fonction d'onde dans la barrière pour $k_{//} = 0$. Enfin, notons que le résultat de l'analyse de Slonczewski pour la TMR est une expression formellement identique à celle de Jullière (équation (I-2)), où la polarisation d'électrode est remplacée par la polarisation effective du couple électrode-barrière, définie ci-dessus.

Revenons un moment sur l'expression de la polarisation effective : l'expression (I-7) la définit comme le produit de deux termes : le premier correspond à la formulation de M. B. Stearns de la polarisation [10], et est pondéré par un facteur qui tient compte du taux d'atténuation κ , et donc de la hauteur de la barrière (cf. équation (I-5)). Dans le cadre de ce modèle, la polarisation « tunnel » n'est donc plus une propriété intrinsèque des électrodes, mais dépend du couple métal-isolant considéré, et son signe peut changer, via le facteur de pondération, suivant la hauteur de la barrière.

I - 1.1.4 De la nécessité d'utiliser des modèles plus élaborés

Ce modèle constitue ainsi une nette avancée, dans la mesure où la barrière est prise en compte dans le processus tunnel ; il fait de surcroît apparaître une notion fondamentale, qui est le couple électrode-barrière. Nous verrons en effet à la section suivante l'importance du raccordement des fonctions d'onde aux interfaces.

D'un point de vue expérimental, ces modèles d'électrons libres permettent d'expliquer les effets de magnétorésistance obtenus pour les premières JTMs polycristallines à barrière amorphe d'alumine. Plusieurs études théoriques à la fin des années 1990 et au début des années 2000 mettent néanmoins en avant les limites de ces approches simples. Le développement des techniques de calcul *ab initio* permet en effet la prise en compte de structures électroniques réalistes pour les électrodes [8], la barrière [11] et les interfaces [12] ;

les mécanismes de transport apparaissent ainsi beaucoup plus complexes que ceux décrits par ces modèles d'électrons libres.

Enfin, des études théoriques portant sur l'empilement Fe/MgO/Fe(001) réalisées par Butler *et al.* [13] et Mathon et Umerski [14] paraissent simultanément, prédisant à température nulle un effet magnétorésistif géant, de plus de 1000%. La section suivante donne un aperçu des caractéristiques conférant à ce système Fe/MgO/Fe(001) de telles propriétés magnétorésistives. De plus amples détails concernant les approches développées dans les références [13, 14] peuvent être obtenus dans les articles de revue [5, 15] ainsi que dans les thèses de F. Bonell [2], F. Greullet [16] et J. Faure-Vincent [1].

I - 1.2 Transport polarisé en spin dans le système Fe/MgO/Fe(001)

I - 1.2.1 Structure du système et relations d'épitaxie

Le fer cristallise dans une structure cubique centré (bcc^2), avec un paramètre de maille $a_{Fe} = 2.866 \text{ \AA}$ (Figure I-2, en haut à gauche). Il possède une anisotropie magnétocristalline d'ordre quatre ($K_{Fe} = 4.2 \times 10^5 \text{ erg.cm}^{-3}$ à température ambiante), favorisant un alignement de l'aimantation suivant les directions cristallines équivalentes [100], [010] et [001].

L'oxyde de magnésium (MgO) est un isolant cristallisant dans une structure cubique de type NaCl (les atomes de Mg et d'O occupent les sites de deux réseaux fcc^2 imbriqués), dont le paramètre de maille vaut $a_{MgO} = 4.211 \text{ \AA}$ (Figure I-2, en bas à gauche).

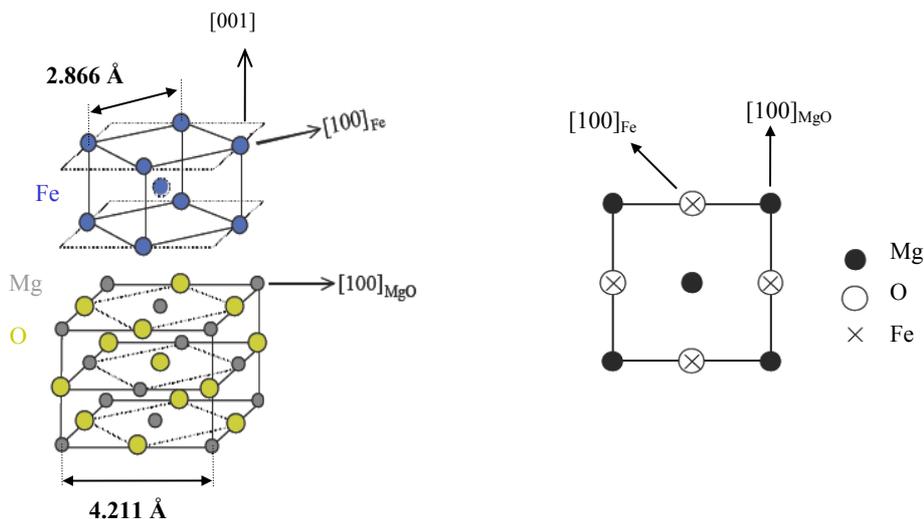


Figure I-2 – Représentation des mailles bcc du Fe et fcc du MgO, et correspondance des deux réseaux dans un empilement Fe/MgO.

² bcc : body-centered cubic ; fcc : face-centered cubic.

Le MgO(001) s'építaxie sur Fe(001) –et inversement– selon la relation Fe(001)[110] || MgO(001)[100] (Figure I-2). Les mailles de Fe et de MgO sont donc orientées à 45° l'une par rapport à l'autre, la direction [110]_{Fe} étant colinéaire à l'axe [100] du MgO. Les atomes d'oxygène se placent dans l'empilement en vis-à-vis de ceux de fer, la distance Fe-O étant évaluée entre 2.0 Å et 2.3 Å [17, 18]. Dans cette configuration, le désaccord paramétrique attendu pour la croissance de MgO sur Fe vaut :

$$f_{MgO/Fe} = \frac{a_{MgO} - a_{Fe}\sqrt{2}}{a_{Fe}\sqrt{2}} = 3.9\% \quad (I-8)$$

I - 1.2.2 Approches théoriques et approximations

Dans ces systèmes építaxiés, du fait du potentiel périodique auquel ils sont soumis, les électrons ne peuvent plus être décrits par des ondes planes. Les fonctions d'onde électroniques ont alors la forme de fonctions de Bloch :

$$\Psi_{\vec{k}}(\vec{r}) = u_{\vec{k}}(\vec{r}) \cdot \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}), \quad (I-9)$$

où $u_{\vec{k}}(\vec{r})$ est une fonction périodique des coordonnées de l'espace dont la périodicité est celle du réseau cristallin. A un vecteur d'onde \vec{k} donné peuvent correspondre plusieurs fonctions $u_{\vec{k}}(\vec{r})$ qui diffèrent par leur symétrie, c'est-à-dire par leurs propriétés d'invariance sous l'effet de certaines opérations de symétrie ponctuelle (de réflexion ou de rotation par exemple).

Dans les systèmes építaxiés, le calcul analytique des conductances n'est pas envisageable ; la modélisation des conductances nécessite alors l'utilisation de méthodes de calcul *ab initio*. Deux approches ont ainsi été suivies pour calculer les conductances dans le système építaxié Fe/MgO/Fe (001). Mathon et Umerski [14] ont utilisé un modèle de liaisons fortes, alors que Butler *et al.* [13] ont réalisé leurs calculs par le biais de l'approche LKKR³, les résultats obtenus par ces deux méthodes étant très similaires.

Par ailleurs, ces méthodes emploient un certain nombre d'approximations, qu'il est nécessaire de garder à l'esprit. Ainsi, l'empilement est supposé parfait, et le désaccord paramétrique existant entre les différentes mailles composant l'empilement est négligé. Les calculs sont effectués pour une température nulle, et une tension appliquée faible (régime de réponse linéaire). De plus, on se place dans un modèle de transport cohérent, ce qui signifie qu'au cours du processus tunnel, le spin des électrons, la composante planaire ($k_{//}$) du vecteur

³ LKKR : *layer* Korringa-Kohn-Rostocker. Une description de cette méthode peut être trouvée dans la référence [168].

d'onde, ainsi que la phase de la fonction d'onde de Bloch (et donc sa symétrie) sont supposés conservés.

Dans un premier temps, nous rappelons les principaux enseignements des études de la distribution des conductances dans la première zone de Brillouin de la surface (001).

I - 1.2.3 Conductances tunnel résolues en $k_{//}$

La Figure I-3 montre les conductances partielles calculées par Butler *et al.* [13] pour deux épaisseurs de MgO, quatre plans atomiques (à gauche) et douze plans atomiques (à droite). En configuration parallèle, deux canaux contribuent à la conductance, les canaux majoritaire-majoritaire $G^{\uparrow\uparrow}(k_{//})$ (Figure I-3, en haut) et minoritaire-minoritaire $G^{\downarrow\downarrow}(k_{//})$ (Figure I-3, au milieu). La conductance antiparallèle G_{AP} est elle aussi constituée de deux canaux, $G^{\uparrow\downarrow}(k_{//})$ et $G^{\downarrow\uparrow}(k_{//})$, qui sont égaux du fait de la symétrie de l'empilement considéré (Figure I-3, en bas).

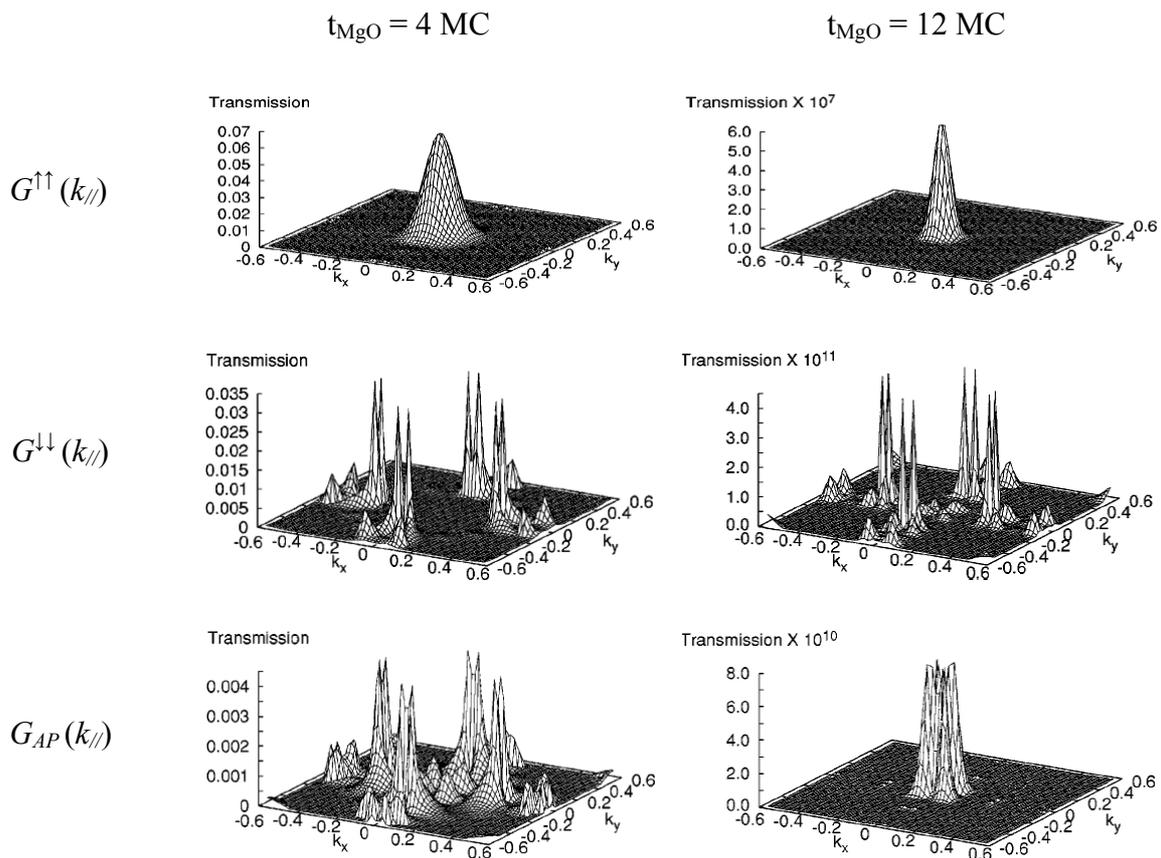


Figure I-3 – Conductances partielles résolues en $k_{//}$ pour des JTMs $Fe/MgO(t_{MgO})/Fe(001)$ idéales pour les canaux : (première ligne) $G^{\uparrow\uparrow}(k_{//})$, (ligne du milieu) $G^{\downarrow\downarrow}(k_{//})$, (ligne du bas) $G_{AP}(k_{//})$, avec $t_{MgO} = 4$ monocouches (MC) à gauche et 12 MC à droite. D'après [13].

Plusieurs caractéristiques importantes peuvent être extraites de ces figures. Ainsi, quelle que soit l'épaisseur de l'isolant, on remarque que la conductance $G^{\uparrow\uparrow}(k_{//})$ est maximale au centre de zone (point $\bar{\Gamma}$, correspondant à $k_{//} = 0$) ; à l'inverse, les conductances $G^{\downarrow\downarrow}(k_{//})$ et $G_{AP}(k_{//})$ y sont minimales, leur maximum étant obtenu pour des états de $k_{//}$ non nuls.

Si nous considérons à présent l'effet de l'épaisseur de la barrière, il est clair que lorsqu'elle augmente, d'une part, la conductance se concentre autour du point $\bar{\Gamma}$, et d'autre part, le contraste entre $G^{\uparrow\uparrow}(k_{//})$ et les deux autres conductances s'accroît. Ceci reflète le fait que le minimum d'atténuation dans le MgO est obtenu pour des états de $k_{//}$ nul [14], favorisant la propagation des états de Bloch ayant un $k_{//}$ proche de zéro. Ainsi, dans la limite des fortes épaisseurs de barrière, dénommée régime asymptotique, la TMR devient extrêmement élevée ; en outre, elle résulte alors presque exclusivement de la différence de conductances au point $\bar{\Gamma}$.

Enfin, terminons par deux brèves remarques, sur lesquelles nous reviendrons ultérieurement. Premièrement, en configuration parallèle, et en particulier à forte épaisseur, la conductance est dominée par la propagation des spins majoritaires. Deuxièmement, pour les faibles épaisseurs en configuration AP, on observe des « points chauds » de conductance pour des états de $k_{//}$ différent de zéro : ceux-ci correspondent à la propagation résonante d'un état minoritaire localisé en surface ou IRS⁴.

Dans la section suivante, nous nous focalisons sur le régime asymptotique ; ainsi, nous négligerons la contribution des états de $k_{//}$ différent de zéro, compte tenu de leur probabilité de transmission très faible. Cela nous permettra d'exposer plus en détail les mécanismes responsables de l'effet de TMR géant observé au point $\bar{\Gamma}$.

I - 1.2.4 Analyse du transport dans le régime asymptotique

I - 1.2.4.1 Spécificités de Fe et MgO en $k_{//} = 0$

Ces états de $k_{//} = 0$ correspondent comme nous l'avons mentionné plus haut au point $\bar{\Gamma}$ de la première zone de Brillouin de surface, et à la direction Γ -H des réseaux tridimensionnels du Fe(001) et du MgO(001), direction aussi notée Δ . Les différents états de Bloch se propageant suivant cette direction sont alors notés Δ_1 , Δ_2 , Δ_2' , Δ_5 . Ces notations Δ_i caractérisent la symétrie des bandes électroniques, et sont issues de la théorie de groupes. Chaque état de Bloch Δ_i est alors décrit par une combinaison linéaire d'orbitales atomiques s , p et d ; la composition orbitale de ces différents états de Bloch Δ_i est donnée dans le Tableau I-1.

⁴ IRS : *Interfacial Resonant State*

Tableau I-1 – Composition orbitale des états de Bloch suivant la direction Δ en fonction de leur symétrie.

Symétrie	Orbitales compatibles	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}	

Nous avons représenté sur les Figure I-4 (a) et (b) les zones de Brillouin 3D et 2D pour une surface (001) du fer, ainsi que le diagramme de bandes du fer suivant la direction Δ . Notons que dans cette configuration, les états Δ ont un $k_{//} = 0$, et un vecteur d'onde réduit k_{\perp} compris entre 0 (au point Γ) et $2\pi/a_{Fe}$ (au point H).

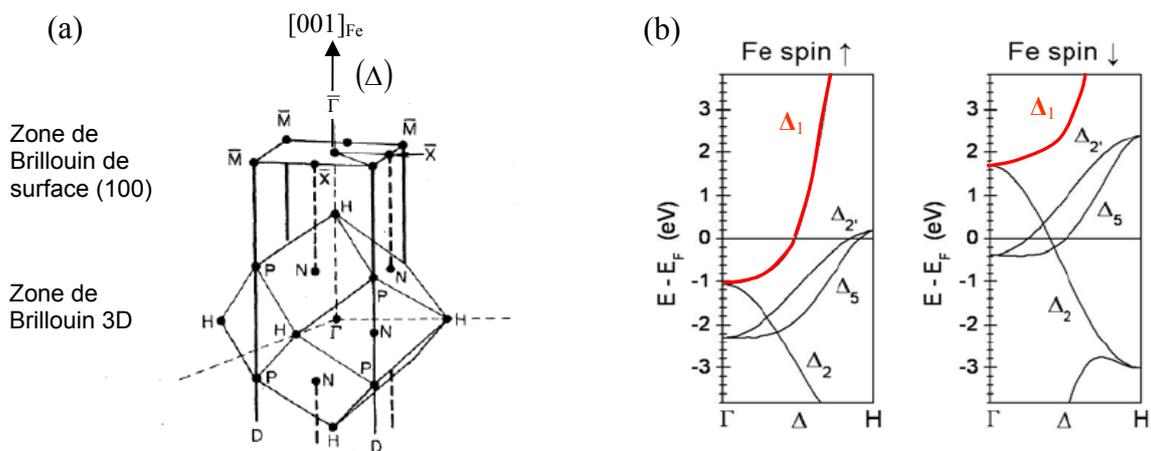


Figure I-4 – (a) Premières zones de Brillouin 3D et 2D pour la surface (001) du fer bcc, et (b) Diagrammes de bandes du bcc Fe suivant la direction Δ pour les spins majoritaires (\uparrow) à gauche, et minoritaires (\downarrow) à droite.

A faible tension (dans le régime asymptotique), les seuls états pouvant participer au transport sont ceux présents au niveau de Fermi, à savoir les états de symétrie Δ_1 , Δ_5 et Δ_2' pour les spins majoritaires (\uparrow) et ceux de symétrie Δ_5 , Δ_2 et Δ_2' pour les spins minoritaires (\downarrow) (Figure I-4 (b)). Ainsi, au regard de la symétrie Δ_1 , le fer se comporte comme un demi-métal.

Le transport tunnel étant supposé cohérent, la symétrie des états de Bloch est conservée au cours du processus tunnel. Cela signifie qu'un état de symétrie Δ_i émis d'une électrode ne peut contribuer à la conductance que si un état de même symétrie existe dans l'électrode réceptrice. Par conséquent, la propagation des états Δ_1 ne peut avoir lieu qu'en configuration P. En effet, en configuration AP, les états Δ_1^\uparrow d'une électrode ne peuvent pas trouver d'états correspondants Δ_1^\downarrow dans l'autre électrode : le canal de conduction $\Delta_1^\uparrow \rightarrow \Delta_1^\downarrow$ est donc interdit.

Outre la structure de bandes des électrodes, la forte TMR observée dans le système Fe/MgO/Fe reflète les propriétés de filtrage spécifiques du MgO. En effet, les états de Bloch Δ_i subissent une atténuation au passage de la barrière qui dépend de leur symétrie. Ainsi, les états Δ_i ont une probabilité d'atténuation proportionnelle à $\exp(-2\kappa_i d)$, où d est l'épaisseur de la barrière, et κ_i le taux d'atténuation dépendant de la symétrie. Concrètement, ce taux d'atténuation est obtenu pour chaque symétrie à partir de l'analyse au niveau de Fermi de la structure de bandes complexe⁵ de l'isolant considéré. Pour le MgO et suivant la direction Δ , cette structure de bandes, calculée par Dederichs *et al.* [19], est représentée sur la Figure I-5.

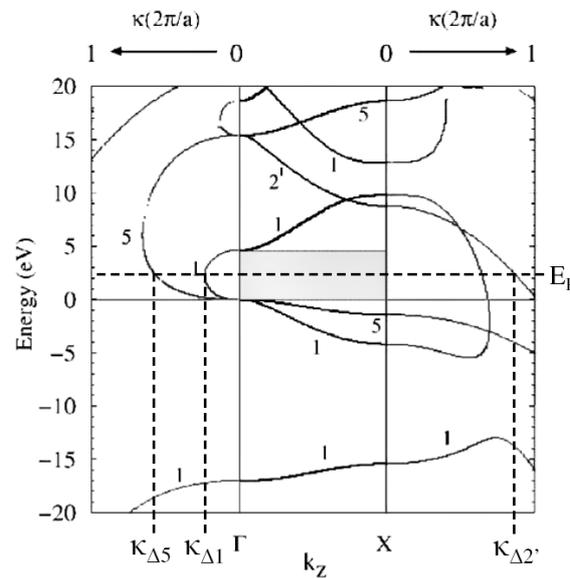


Figure I-5 – Diagramme de bandes complexe du MgO dans la direction $\Gamma - \Delta - X$. La bande interdite apparaît en gris. Les bandes sont indexées par leur symétrie (Δ) i ; en abscisse figure le taux d'atténuation minimal au niveau de Fermi pour chaque symétrie. D'après [19].

⁵ Dans la bande interdite d'un isolant, les solutions de l'équation de Schrödinger sont en effet des fonctions de Bloch ayant un vecteur d'onde complexe $k_\perp = q + i\kappa$. A ces fonctions correspondent des relations de dispersion $E(\kappa)$ reliant dans le plan complexe les bandes de conduction et de valence de l'isolant [11, 19, 169].

Pour une barrière de MgO, les taux d'atténuation des différentes symétries Δ_i vérifient donc, d'après la Figure I-5, la hiérarchie suivante :

$$\kappa_{\Delta_1} < \kappa_{\Delta_5} < \kappa_{\Delta_2} < \kappa_{\Delta_2} \quad (\text{I-10})$$

Les états de moindre atténuation dans le MgO sont ainsi les états de symétrie Δ_1 , qui rappelons-le, participent uniquement à la conductance P , du fait de l'absence d'états Δ_1^\downarrow au niveau de Fermi. A l'inverse, toutes les symétries présentes à E_F pour les spins minoritaires sont plus fortement atténuées. Qualitativement, on peut donc attendre de ces observations un très fort effet magnétorésistif dans le système Fe/MgO/Fe(001).

Les résultats auxquels nous allons à présent nous intéresser vont nous permettre de décrire de manière plus précise les conséquences des propriétés du Fe et du MgO sur le transport tunnel dans la direction Δ .

I - 1.2.4.2 Transmission dans la direction Δ

Les Figure I-6 et Figure I-7 présentent les densités d'états tunnel (ou TDOS⁶ en anglais) obtenus par Butler *et al.* [13] pour les différents états de Bloch Δ_i dans des JTM Fe/MgO(8 MC)/Fe(001), dans les deux configurations des aimantations. L'analyse de ces TDOS permet de comparer l'atténuation des différentes symétries Δ_i injectées depuis le niveau de Fermi d'une électrode (celle de gauche en l'occurrence) dans la barrière ; elle renseigne également sur le comportement des états de Bloch en termes de propagation dans l'électrode réceptrice (à droite sur les figures).

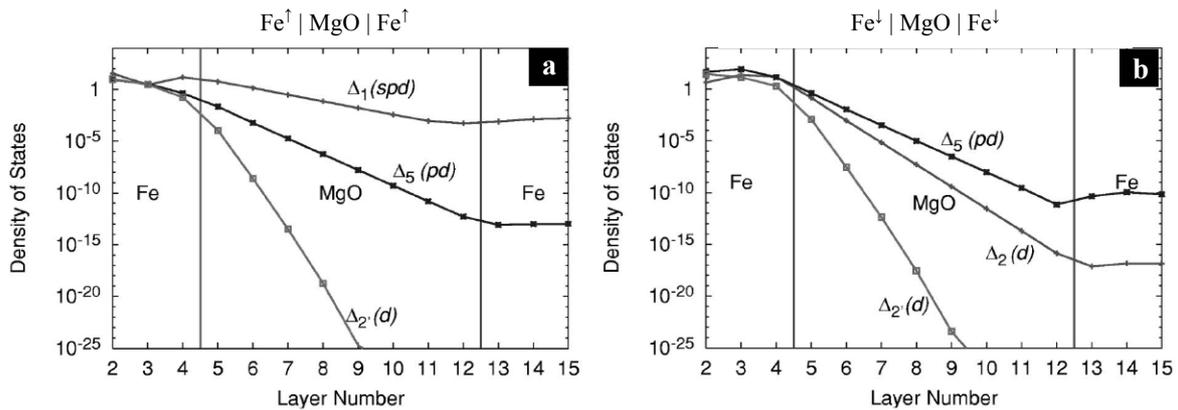


Figure I-6 – Densités d'états tunnel résolue en symétrie pour $k_{//} = 0$ dans une JTM Fe/MgO(8 MC)/Fe (001) pour les canaux contribuant à la conductance P : (a) majoritaire-majoritaire et (b) minoritaire-minoritaire. D'après [13].

⁶ TDOS : Tunneling Density Of States.

Les Figure I-6 (a) et (b) représentent les canaux de conduction $\Delta_i^\uparrow \rightarrow \Delta_i^\uparrow$ et $\Delta_i^\downarrow \rightarrow \Delta_i^\downarrow$, participant à la conductance parallèle. On y remarque que la contribution du canal $\Delta_1^\uparrow \rightarrow \Delta_1^\uparrow$ est très nettement dominante ; la propagation des états Δ_5 est envisageable pour les spins majoritaires comme minoritaires, mais leur contribution demeure faible, du fait de leur importante atténuation dans la barrière. Les taux d'atténuation des états Δ_2 et Δ_2' étant encore plus élevés, leur contribution au transport en configuration P est donc négligeable.

Concernant la configuration AP (Figure I-7 (a) et (b)), la TDOS la plus élevée dans l'électrode réceptrice (de droite) est associée au canal $\Delta_1^\uparrow \rightarrow \Delta_1^\downarrow$; cependant, cette TDOS décroît exponentiellement lorsque l'on s'éloigne de l'interface, puisque les états Δ_1^\downarrow sont absents au niveau de Fermi dans l'électrode réceptrice. Dans le cadre d'un transport cohérent, ce canal ne contribue donc pas à la conductance. La conductance AP est alors dominée par la contribution des états Δ_5 , dont la transmission est très faible.

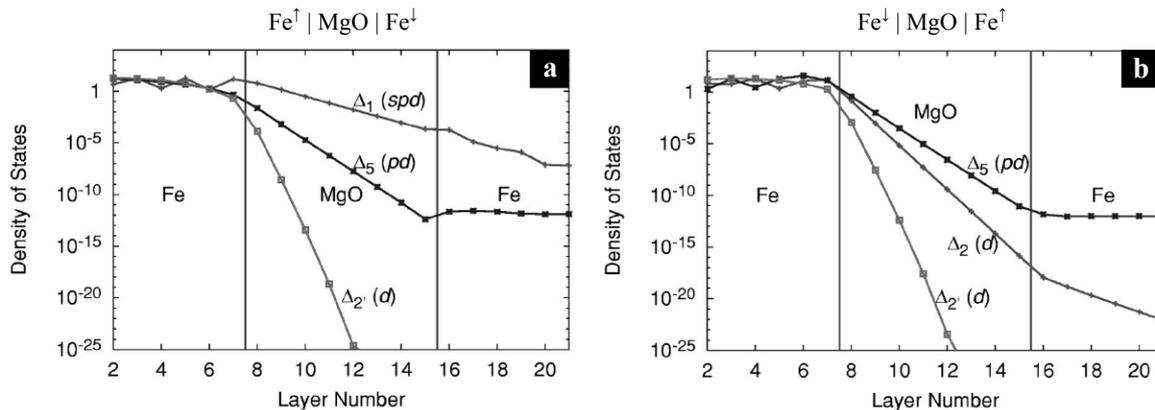


Figure I-7 – Densités d'états tunnel résolue en symétrie pour $k_{||} = 0$ dans une JTM Fe/MgO(8 MC)/Fe (001) pour les canaux contribuant à la conductance AP : (a) majoritaire-minoritaire et (b) minoritaire-majoritaire. D'après [13].

Ainsi, ces représentations mettent clairement en évidence le fort contraste existant entre les conductances P et AP. La conductance P est ainsi élevée, et dominée par la contribution des états Δ_1^\uparrow ; à l'inverse, en configuration AP, la conductance est très faible, et résulte de la propagation des états Δ_5 fortement atténués. En outre, on peut remarquer que ce contraste se renforce avec l'épaisseur de la barrière. C'est ainsi qu'en principe, la magnétorésistance doit être supérieure à 1000% à température nulle pour des épaisseurs de barrière de vingt plans atomiques [14].

I - 1.2.4.3 Synthèse

On peut résumer les propriétés du Fe et du MgO énoncées dans cette section suivant le schéma proposé sur la Figure I-8. Ces différentes propriétés amènent en effet à considérer un transport multi-canal, où chaque canal est associé non seulement à un spin mais aussi à une

symétrie ; de plus, l'atténuation κ_i dans la barrière de chaque canal est déterminée par sa symétrie. En outre, en se plaçant dans le cadre du transport cohérent, pour qu'un état injecté puisse participer au transport, il lui faut nécessairement trouver un état de même spin et même symétrie dans l'électrode collectrice.

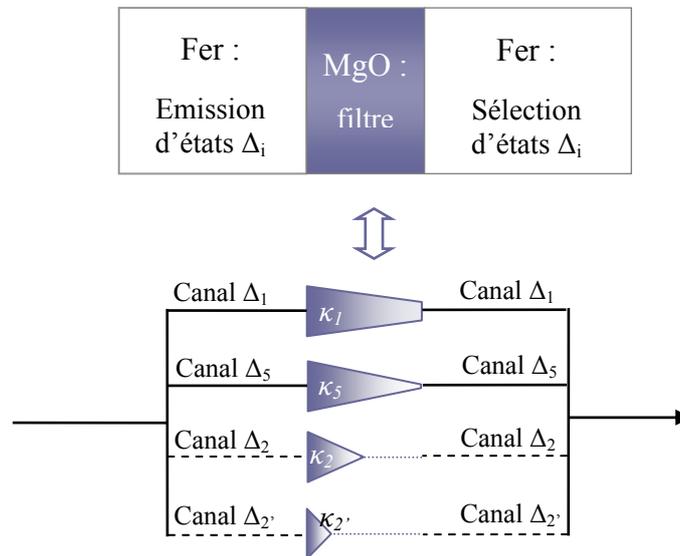


Figure I-8 – Schéma illustrant le modèle de transport multi-canal au point $\bar{\Gamma}$ dans le régime asymptotique. La symétrie Δ_i du canal détermine son taux d'atténuation κ_i dans la barrière.

Cette vision simplifiée des mécanismes de conduction n'est bien entendu valable que dans le régime asymptotique, où l'analyse peut se restreindre aux états de $k_{//} = 0$. Par ailleurs, n'ont été envisagées que les contributions des états volumiques, c'est-à-dire existant lorsque le système se reproduit périodiquement dans les trois directions de l'espace. Or, le système considéré présente des interfaces, qui brisent la périodicité dans une direction, et au voisinage desquelles la structure électronique des électrodes peut être fortement affectée. Ces modifications de la structure électronique au voisinage des interfaces seront donc l'objet de la prochaine section.

I - 1.2.5 Influence des interfaces

Comme nous l'avons mentionné au paragraphe I - 1.2.3, pour des faibles épaisseurs de barrière, la contribution des états de $k_{//} \neq 0$ est significative, et ne peut alors être négligée. Plus exactement, ces états situés loin du point $\bar{\Gamma}$ affectent les conductances liées aux états de spin minoritaire, à savoir la contribution minoritaire-minoritaire de G_p et la conductance AP ; pour ces conductances partielles avec une barrière de quatre plans atomiques présentées précédemment sur la Figure I-3, et rappelées ci-dessous aux Figure I-9 (b) et (c), nous avons en effet remarqué la présence de points chauds, situés le long des directions $k_x = 0$ et $k_y = 0$.

Ces points de forte conductance reflètent la contribution d'un état résonant d'interface (IRS) situé dans la bande minoritaire du fer [12, 13]. On peut en effet constater sur la Figure I-9 la corrélation parfaite entre la position des pics de conductance des canaux cités ci-dessus (Figure I-9 (b) et (c)), et celle des maxima de la densité spectrale minoritaire pour la couche de fer située à l'interface Fe/MgO (en bleu foncé sur la Figure I-9 (a)).

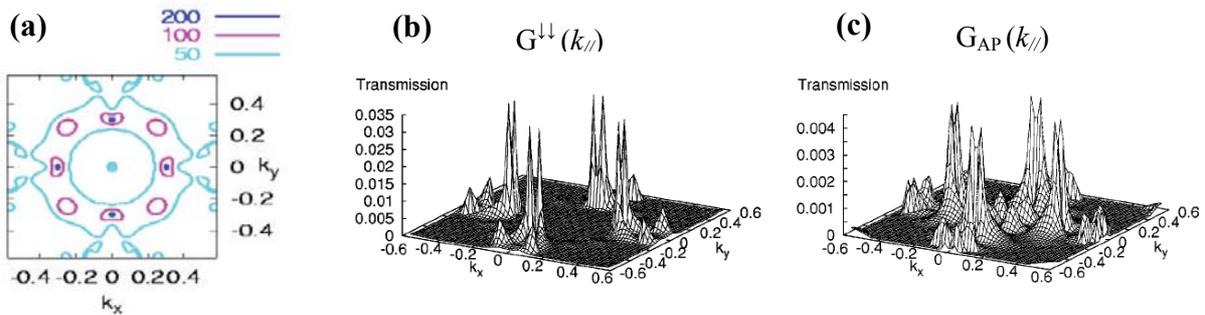


Figure I-9 – (a) Densité spectrale des états minoritaires pour la couche de Fe interfaciale ; Conductances partielles résolues en $k_{//}$ dans le système Fe/MgO(4 MC)/Fe pour : (b) les canaux minoritaire-minoritaire, (c) la configuration AP. D'après [13].

Attardons-nous un instant sur l'origine de ces IRS. Ces états sont issus d'états de surface, s'étant développés dans le diagramme de bandes en plus des états volumiques, du fait de la brisure de symétrie engendrée par la présence de la surface. Ces états de surface sont très localisés près de l'interface, et ne peuvent en l'état pas prendre part au transport. En revanche, lorsqu'ils croisent une bande volumique, des états de surface peuvent contribuer à la conductance ; on parle alors d'états résonants de surface ou d'interface.

Dans le cas de surfaces de *bcc* Fe(001), un état de surface a effectivement été observé par spectroscopie à effet tunnel par J. Stroscio [20] ; des calculs de structure de bandes dans la direction $\bar{\Gamma} - \bar{X}$ (Figure I-10) montrent de plus que cet état de surface devient résonant en deux points particulièrement intéressants, matérialisés sur la Figure I-10 par des flèches.

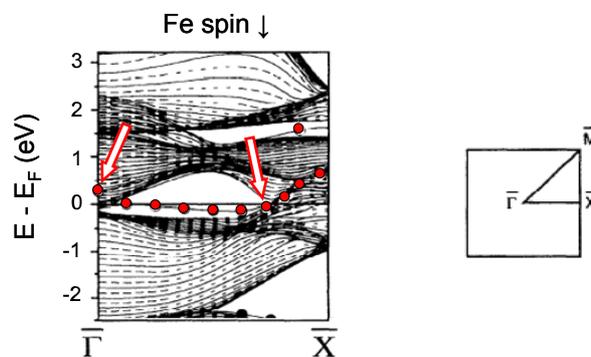


Figure I-10 – A gauche : Structure de bandes du *bcc* Fe(001) dans la direction $\bar{\Gamma} - \bar{X}$. Les lignes correspondent aux états du volume ; les états de surface sont représentés par les lignes marquées de cercles rouges. A droite : Position de la direction $\bar{\Gamma} - \bar{X}$ dans la première zone de Brillouin de la surface (001) du Fe. D'après [20].

Ainsi, cet état croise une première fois les bandes du volume à l'énergie de Fermi pour une valeur de $k_{//}$ non nulle : c'est précisément la contribution de cette résonance qui apparaît sur les conductances $G^{\downarrow\downarrow}(k_{//})$ et $G_{AP}(k_{//})$ pour les faibles épaisseurs de barrière. Du fait de sa large valeur de $k_{//}$, cet état ne participe plus au transport dans le régime asymptotique. Toutefois, cet état de surface est aussi résonant au point $\bar{\Gamma}$ pour une énergie E égale à $E_F + 0.2$ eV ; cela signifie que cet IRS en $\bar{\Gamma}$ peut être activé en polarisant la jonction, et ainsi contribuer à la conductance [21, 22].

I - 1.2.6 Confrontation avec les réalisations expérimentales

Nombre de résultats expérimentaux sur le système Fe/MgO/Fe ont été publiés depuis la parution des prédictions théoriques de Butler *et al.* concernant les mécanismes de transport dans ces systèmes. Nous présentons brièvement dans cette section les arguments permettant de valider ce modèle de filtrage en symétrie des électrons tunnel, ainsi que les aspects demeurant divergents entre la théorie et les observations expérimentales.

I - 1.2.6.1 Des signatures du filtrage en symétrie

La validité du modèle de filtrage en symétrie a été éprouvée par Greullet *et al.* [23], dans des jonctions Fe/Cr/Fe/MgO/Fe(001). Dans de tels systèmes, ils ont observé l'apparition d'états de puits quantiques dans la fine couche de Fe présente entre le Cr et le MgO, provenant de l'absence d'états de symétrie Δ_1 au niveau de Fermi dans le Cr : ces états de Bloch se retrouvent alors confinés dans la fine couche de fer, et subissent des réflexions aux interfaces Cr/Fe et Fe/MgO. L'apparition de ces états de puits se manifeste par la présence de pics à des énergies quantifiées dans la conductance P . Notons que ces états ont été également observés par Niizeki *et al.* [24], dans une étude sur un système similaire, apportant ainsi une seconde confirmation de l'existence d'un filtrage en symétrie dans les systèmes épitaxiés.

De plus, le modèle de transport multi-canal permet d'apporter une explication aux caractéristiques observées sur les dépendances en tension de la conductance parallèle, et que le modèle des électrons libres ne peut justifier. Nous nous plaçons, dans la suite du paragraphe, dans la limite du régime asymptotique, où les états de symétrie Δ_i dominent le transport. Dans le modèle multi-canal, la conductance P (Figure I-11 (a)) résulte de la somme des contributions des canaux $\Delta_1^{\uparrow} \rightarrow \Delta_1^{\uparrow}$, $\Delta_5^{\uparrow} \rightarrow \Delta_5^{\uparrow}$ et $\Delta_5^{\downarrow} \rightarrow \Delta_5^{\downarrow}$, la contribution dominante étant celle, parabolique, des états Δ_1 (pointillés serrés puis ligne noire sur la Figure I-11 (b)). Comme le schématise la Figure I-11 (b), le maximum de conductance à tension nulle, et les minima locaux à ± 0.2 V reflètent alors la contribution des états Δ_5^{\uparrow} [15] : ceux-ci ne participent en effet au transport qu'à faible tension, le bord de cette bande étant situé à une énergie de 0.2 eV au-dessus de E_F (Figure I-11 (c)).

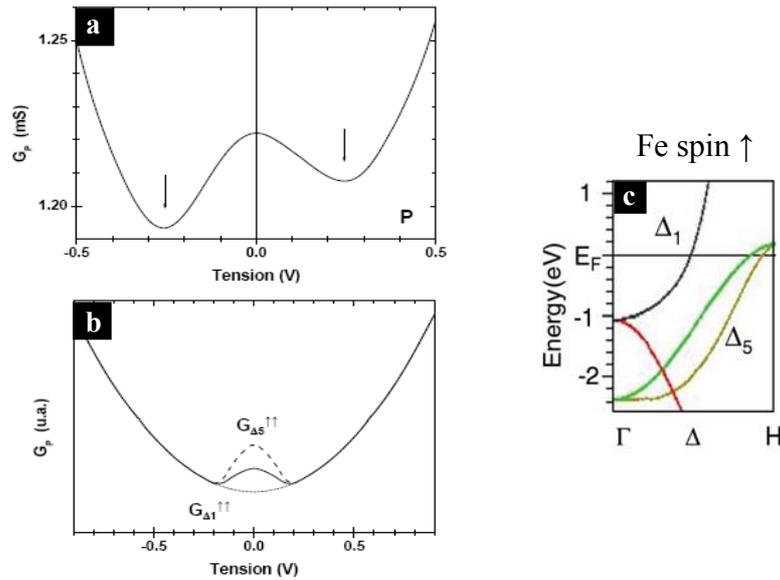


Figure I-11 – (a) Dépendance en tension de la conductance P d'une jonction Fe/MgO/Fe/Co mesurée au laboratoire ; (b) Représentation schématique de la contribution de différents canaux à la conductance P . D'après [16] ; (c) Diagramme de bandes du bcc Fe(001) dans la direction Δ pour les spins majoritaires.

Il est à ce stade utile de noter que cette interprétation des deux minima de G_P (V) ne fait pas consensus, mais qu'il n'en existe toutefois pas d'invalidation ni théorique ni expérimentale à ce jour.

I - 1.2.6.2 Amplitude de la magnétorésistance

Les premiers résultats expérimentaux ont été rapportés en 2001 par Bowen *et al.* [25] sur une jonction Fe/MgO/FeCo élaborée par pulvérisation cathodique et ablation laser, la magnétorésistance s'élevant à 27% à 300 K (60% à 30 K). A partir de 2003, des résultats sont publiés sur des JTMs Fe/MgO/Fe élaborées par épitaxie par jets moléculaires (MBE⁷), par Faure-Vincent *et al.* [26], qui obtiennent une TMR de 67% à 300 K (100% à 80 K). L'année suivante, Yuasa *et al.* [27] rapportent une magnétorésistance de 180% à température ambiante (250% à 20 K) ; cette amplitude a été depuis reproduite par plusieurs groupes de recherche et en particulier au laboratoire [15, 21, 28], et constitue donc l'état de l'art pour ces systèmes.

Les meilleurs résultats pour les systèmes épitaxiés dérivés de Fe/MgO/Fe(001) ont été à ce jour obtenus sur des JTMs contenant une faible quantité de Co. Ainsi, Yuasa *et al.* [29] ont obtenu une TMR de 410% à température ambiante (500% à 20 K) en insérant 4 MC de *bcc* Co au niveau des interfaces Fe/MgO (jonctions Fe/Co(4 MC)/MgO/Co(4 MC)/Fe(001)). De même, très récemment, Bonell *et al.* [30] ont publié des résultats concernant des jonctions Fe_{0.75}Co_{0.25}/MgO/Fe_{0.75}Co_{0.25} où la TMR atteint 300% à température ambiante (530% à 20 K).

⁷ MBE : Molecular Beam Epitaxy.

Parallèlement, l'élaboration de JTMs par des techniques compatibles avec la production à une échelle industrielle, comme la pulvérisation cathodique, a été optimisée, conduisant à l'obtention dans des systèmes CoFeB/MgO/CoFeB à texture (001) de valeurs record de TMR (jusqu'à 604% à 300 K et plus de 1000% à basse température [31]), supérieures à celles observées dans les JTMs épitaxiées Fe/MgO/Fe(001).

I - 1.2.6.3 Synthèse

Des effets de filtrage en symétrie sont donc bel et bien à l'œuvre dans les JTMs épitaxiées Fe/MgO/Fe(001), permettant l'obtention de fortes TMR dans ces systèmes. Ces valeurs restent néanmoins en-deçà de celles prédites par les calculs *ab initio*. Il est souvent souligné que la qualité cristalline des jonctions, et en particulier celle de leurs interfaces, est primordiale en vue d'obtenir des fortes amplitudes de TMR. Ainsi, les défauts structuraux sont-ils généralement mis en cause pour expliquer les divergences entre les amplitudes attendues d'après les travaux théoriques et celles effectivement observées expérimentalement. Toutefois, les taux de TMR obtenus pour les systèmes épitaxiés s'avèrent inférieurs à ceux observés dans les jonctions texturées CoFeB/MgO/CoFeB, dont la qualité cristalline est moindre, tant au niveau de la cristallinité des électrodes et de la barrière que de la définition des interfaces avec le MgO.

Il s'avère ainsi compliqué d'imputer avec certitude à des défauts, brisant la symétrie de l'empilement, la divergence entre les valeurs attendues et mesurées dans les JTMs Fe/MgO/Fe. Nous aborderons donc dans la section suivante l'impact de plusieurs types de défauts sur le transport tunnel polarisé en spin et la TMR.

De plus, alors que les prédictions sont réalisées pour une température nulle, les mesures ont toujours lieu à une température finie. On peut ainsi légitimement supposer que cette température, même faible, permet l'ouverture de canaux de conduction non cohérents (où le spin, la symétrie ou $k_{//}$ peuvent être modifiés), faisant intervenir des diffusions spéculaires et non spéculaires. Nous discuterons ainsi l'effet de la température sur le transport tunnel dépendant du spin dans la dernière section de cette partie.

I - 1.3 Effet des défauts sur le transport polarisé en spin

Nous effectuons dans cette section une revue des études menées sur plusieurs types de défauts, et concernant, d'une part, leur mise en évidence expérimentale dans le système Fe/MgO/Fe monocristallin considéré, et d'autre part, leur impact attendu et/ou observé sur le transport tunnel polarisé en spin et la TMR. Nous aborderons ainsi les cas des lacunes d'oxygène et des dislocations qui affectent la barrière en volume, et enfin ceux de l'oxydation et de la contamination au carbone qui affectent les interfaces.

I - 1.3.1 Lacunes d'oxygène dans la barrière

Les lacunes d'oxygène sont des défauts très courants dans les oxydes ; c'est donc assez naturellement que leur présence a aussi été envisagée dans la barrière de MgO. Bien que cette présence de lacunes n'ait pas été démontrée dans le MgO épitaxié déposé sur MgO/Fe(001), elle a été mise en évidence dans des couches de MgO texturées (001) évaporées sur GaAs/Fe(001) [32]. La présence de ces lacunes permettrait en effet de compenser la déformation du MgO, qui est contraint en compression lorsqu'il est déposé sur Fe(001).

Plusieurs études théoriques ont par ailleurs montré que leur présence favorise des diffusions non spéculaires, c'est-à-dire non conservatives en k_{\parallel} , ceci ayant pour effet d'augmenter la résistance des jonctions et de fortement diminuer la TMR [33, 34], en accord avec les observations expérimentales de Miao *et al.* [35]. L'analyse des deux articles théoriques diverge toutefois concernant le mécanisme responsable de cette chute de TMR. Ainsi, dans l'article [33], Velev *et al.* indiquent que les diffusions non spéculaires affectent plus particulièrement les électrons de spin majoritaire, engendrant une augmentation du taux d'atténuation des états Δ_1^{\uparrow} et ainsi une réduction de G_P ; de plus, dans ces travaux, la présence de lacunes n'apparaît pas avoir un impact prononcé sur la transmission des états de spin \downarrow en configuration P et sur la transmission en configuration AP. A l'inverse, pour Ke *et al.* [34], la chute de TMR provient d'une augmentation de G_{AP} . Elle serait due aux diffusions non spéculaires sur les lacunes permettant aux électrons de spin minoritaire de se coupler aux états de symétrie Δ_1 du MgO les plus faiblement atténués, réduisant alors l'efficacité du filtrage en symétrie dans le système. Ces auteurs soulignent par ailleurs l'importance de la position dans la barrière de ces lacunes : la réduction de TMR est en effet nettement plus importante lorsqu'elles sont localisées près d'une interface Fe/MgO.

Notons toutefois qu'il est difficile expérimentalement de moduler leur concentration, et de contrôler la quantité de lacunes se trouvant réellement dans un empilement complet, contrairement aux autres types de défauts évoqués dans ce paragraphe.

I - 1.3.2 Défauts structuraux liés au désaccord paramétrique

Nous avons précédemment évoqué l'existence d'un faible désaccord paramétrique entre le Fe et le MgO. S'il est suffisamment faible pour permettre l'épitaxie des deux matériaux, il engendre néanmoins l'apparition d'un réseau de dislocations à l'interface, qui permet de relaxer une partie des contraintes épitaxiales. D'un point de vue expérimental, la présence de dislocations à l'interface Fe/MgO a été clairement mise en évidence [15, 17, 27, 36].

L'influence de ce réseau de dislocations sur le transport tunnel a été étudiée et clairement établie par Bonell *et al.* [2, 37, 38]. En élaborant des électrodes à base d'alliages $Fe_{1-x}V_x$ de concentrations x variées, ils ont ainsi fait varier le désaccord paramétrique f entre le paramètre

de l'électrode et celui du MgO ; ce faisant, ils parviennent à augmenter la distance L entre dislocations et ainsi réduire leur densité (Figure I-12 (a)).

Enfin, ils ont démontré une relation directe entre la densité de dislocations dans la barrière et l'amplitude de la TMR (Figure I-12 (b)). Sur cette figure, on peut en effet observer que pour les jonctions $\text{Fe}_{1-x}\text{V}_x/\text{MgO}/\text{Fe}$ (courbe noire), où la densité de dislocations à l'interface inférieure est réduite, la TMR augmente jusqu'à une concentration de V de 10%. Au-delà, la TMR décroît comme pour les deux autres séries de JTMs présentées sur cette Figure I-12 (b), du fait d'une polarisation dans le Fe-V inférieure à celle du Fe.

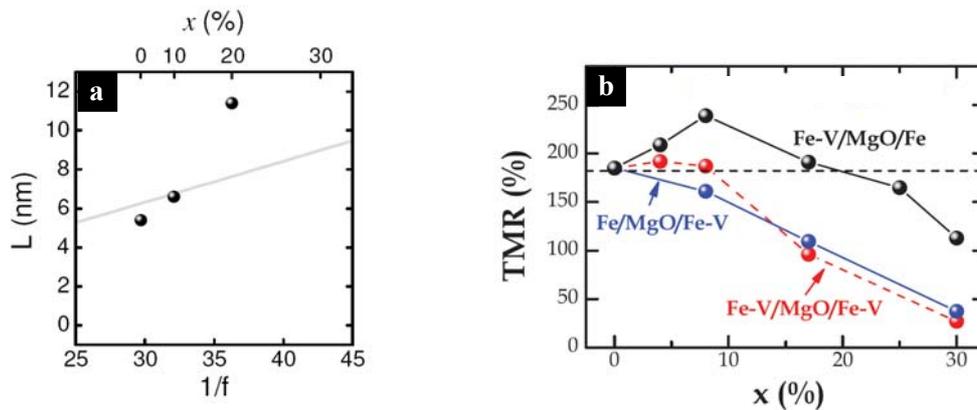


Figure I-12 – (a) Distance moyenne L entre dislocations à l'interface inférieure $\text{Fe-V}/\text{MgO}$ (points noirs) mesurée dans des JTMs $\text{Fe}_{1-x}\text{V}_x/\text{MgO}/\text{Fe}(001)$, tracée en fonction du désaccord paramétrique f et de la concentration x de vanadium. D'après [2]; (b) Variation de la TMR à température ambiante avec la concentration x de vanadium dans différentes séries de JTMs. D'après [38].

Par ailleurs, plusieurs études de caractérisation structurale fine des interfaces notent que, du fait de la présence de dislocations dans la barrière, l'interface Fe/MgO supérieure présente une rugosité un peu plus importante que l'interface inférieure [39, 40]. Il est aussi mentionné que cette rugosité accrue est susceptible de favoriser l'hybridation entre le fer et l'oxygène, pour les atomes de fer situés en bord de marche ou en vis-à-vis de dislocations. Or, comme nous allons le voir dans la section suivante, le rôle de l'oxydation des interfaces est fortement suspecté dans la limitation des valeurs de TMR expérimentales.

I - 1.3.3 Oxydation d'interface

Dès 2001, Meyerheim *et al.* [41] rapportent la présence d'une couche d'oxyde de Fe sous-stœchiométrique à l'interface Fe/MgO , se formant lors de la croissance de la barrière ; ils ouvrent ainsi la voie à des recherches prolifiques sur l'influence possible de cette couche sur le transport polarisé en spin, et ce, tant d'un point de vue expérimental que théorique. Notons toutefois que si cette formation de FeO_x à l'interface a été ultérieurement observée par d'autres équipes [42], elle demeure controversée. En effet, de nombreuses études, basées sur

différentes techniques expérimentales, font état d'une oxydation interfaciale absente [43–45], ou au mieux très modérée [39, 40] ; ces dernières observations sont par ailleurs confortées par des calculs *ab initio*, qui prédisent une très faible interaction entre le Fe et le MgO [18].

I - 1.3.3.1 Etudes théoriques

De multiples études théoriques sur l'influence de l'oxygène interfacial dans les JTMS Fe/MgO/Fe ont été réalisées ; il a ainsi été établi que la présence d'oxygène interfacial dans ces JTMS, même en quantité inférieure à une monocouche, devait réduire la TMR d'au moins un ordre de grandeur par rapport aux valeurs prédites supérieures à 1000% [46, 47], et avoir un effet important sur les dépendances en tension des conductances [48–50].

D'après les calculs de Zhang *et al.* [46] considérant un transport tunnel cohérent et se plaçant dans le régime asymptotique, la réduction de TMR engendrée par la présence d'oxygène proviendrait d'une forte réduction de la conductance parallèle en présence d'oxygène, la conductance AP n'étant que peu affectée (Figure I-13 (a)). Cette réduction de conductance parallèle en présence d'oxydation est attribuée par les auteurs à une forte réduction de l'injection des états de symétrie Δ_1 dans la barrière.

En présence d'oxygène interfacial, comme on peut le remarquer sur la Figure I-13 (b), la densité électronique due aux états Δ_1 subit en effet d'importants réarrangements dans la région interfaciale. Ainsi, le recouvrement des nuages électroniques du Fe interfacial et de l'O du premier plan de MgO (encerclés sur la Figure I-13 (b)) est fortement réduit dans le cas d'une couche de FeO à l'interface (à droite) : la transmission des états Δ_1 à travers l'interface est donc plus faible.

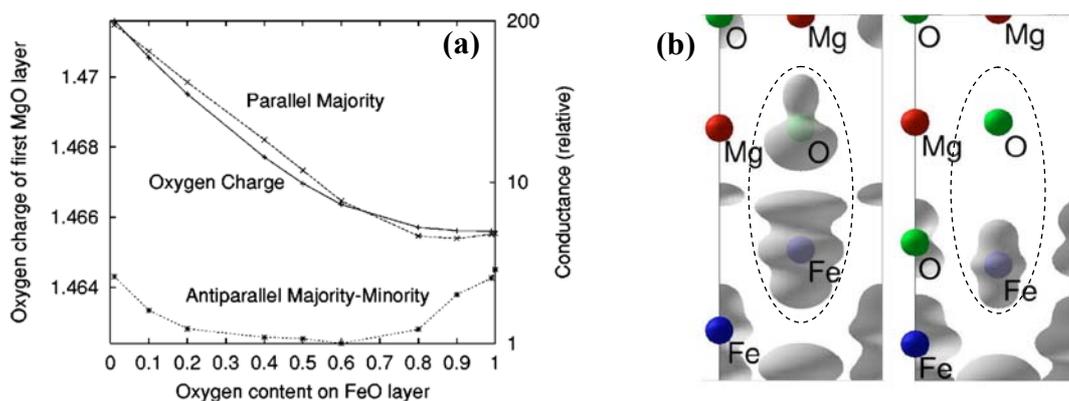


Figure I-13 – (a) Evolution en fonction de la concentration d'oxygène dans la couche de FeO : de la charge sur l'atome d'oxygène de la couche de MgO interfaciale en contact avec le FeO (trait continu) et des conductances P ($\uparrow\uparrow$) et AP ($\uparrow\downarrow$) normalisées (pointillés) ; (b) Densité d'états partielle au niveau de Fermi due aux états Δ_1 dans le cas d'une interface Fe/MgO (à gauche), ou Fe/p(1×1)-O/MgO (à droite). D'après [46].

Zhang *et al.* [46] ont analysé le mécanisme responsable de cette moindre transmission : ainsi, la formation de liaisons dans la couche de Fe-O induit un déplacement de la charge électronique vers les atomes d'oxygène au point que le courant tunnel circulant par la couche de FeO s'écoule principalement par ces sites oxygène. Or, le raccordement des fonctions d'onde entre les couches de FeO et de MgO s'avère être médiocre, du fait de compositions orbitales s et p de la DOS différentes sur les sites O du MgO et du FeO. La transmission des fonctions d'onde pour les états Δ_1 est donc considérablement réduite, conduisant à une forte diminution de conductance P et de TMR.

La présence d'oxygène aux interfaces a également été considérée dans des calculs de dépendance en tension de la TMR et des conductances [48–50]. Une revue plus étendue des résultats de ces études est disponible dans les références [2, 51]. Nous retiendrons pour notre part que dans les différentes études, la conductance AP apparaît dominée par la contribution de l'IRS du Fe ; toute modification de la dépendance en tension de cette conductance est donc supposée refléter l'altération de cet état.

I - 1.3.3.2 Réalisations expérimentales

Récemment, Bonell *et al.* [2, 51] ont étudié l'influence de l'oxygène interfacial sur les propriétés de transport de jonctions tunnel magnétiques Fe/MgO/Fe(001). Contrairement aux prédictions, ils n'observent qu'une faible diminution de TMR en présence d'oxygène, pour une quantité d'oxygène à l'interface Fe/MgO correspondant à une monocouche organisée (Figure I-14, point P(1×1)). Lorsque la couche d'oxygène n'est pas ordonnée (symboles pleins), la diminution de TMR est plus marquée : dans ce cas, selon les auteurs, l'effet du désordre, engendrant une brisure de la symétrie de l'empilement au niveau de l'interface, s'ajoute alors à l'effet du confinement de la densité électronique dans les liaisons Fe-O. Aucun des deux effets (désordre ou liaisons Fe-O) n'a cependant d'impact dramatique sur la TMR.

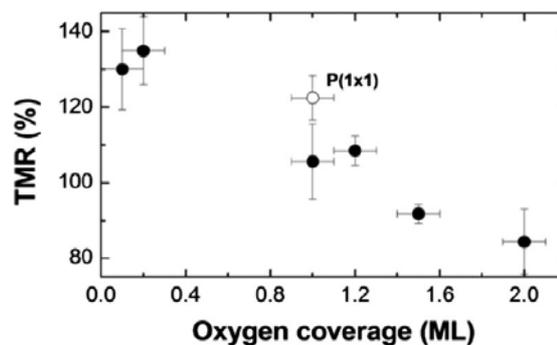


Figure I-14 – TMR mesurée à température ambiante et à l'équilibre (10 mV) dans des JTMs Fe/O/MgO/Fe(001) tracée en fonction du recouvrement en oxygène de l'interface Fe/MgO inférieure. D'après [51].

De plus, Bonell *et al.* identifient clairement une signature des liaisons Fe-O dans la conductance parallèle ; celles-ci engendrent ainsi une diminution de conductance à faible tension et lorsque les électrons sont émis depuis l'électrode oxydée, en accord avec les prédictions des calculs *ab initio*.

I - 1.3.4 Contamination au C

La présence d'une contamination au carbone à l'interface Fe/MgO inférieure est également un défaut assez couramment rencontré, mais contre lequel on peut aisément se prémunir (cf. Chapitre II, § II - 1.1.1). Les effets d'une telle contamination sur le transport polarisé en spin ont été relativement étudiés d'un point de vue expérimental [15, 21, 52], mais les études théoriques manquent cruellement pour appuyer ou interpréter les résultats expérimentaux. A notre connaissance seule une étude *ab initio* est parue [53] : les résultats expérimentaux y sont qualitativement reproduits, mais aucun mécanisme n'est clairement proposé.

Il a ainsi été observé expérimentalement qu'en présence de carbone, l'amplitude de la TMR à basse tension est légèrement diminuée [52]. L'effet le plus drastique se manifeste lorsqu'une tension est appliquée [15, 21, 52] : une inversion du signe de la TMR est en effet observée lorsque les électrons sont injectés vers l'électrode inférieure, contaminée au carbone (en tension positive sur la Figure I-15 (a), d'après la convention de signe). Comme le montre la Figure I-15 (b), ce changement de signe résulte d'une forte augmentation de la conductance AP, qui devient supérieure à la conductance parallèle au-delà de +0.4 V.

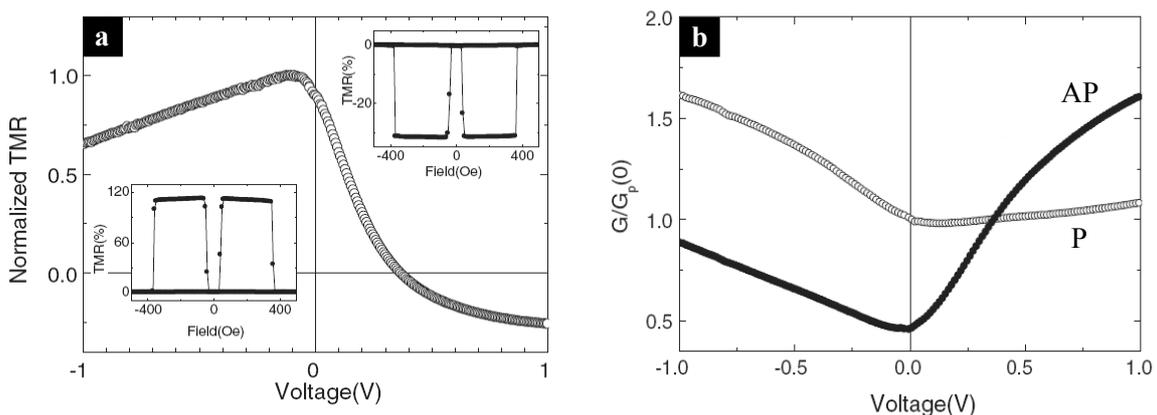


Figure I-15 – Mesures de magnéto-transport sur une JTM Fe/MgO/Fe présentant une contamination au C à l'interface Fe/MgO inférieure. (a) Evolution en tension de la TMR normalisée par rapport à sa valeur à tension nulle. Inserts : Cycles de magnéto-résistance en fonction du champ planaire, mesurés à -10 mV (à gauche) et à +0.6 V (à droite) ; (b) Dépendance en tension des conductances P et AP. D'après [15]. Convention de signe : les électrons sont injectés depuis l'électrode supérieure vers l'électrode inférieure en tension positive.

Pour expliquer ce phénomène surprenant, les auteurs font intervenir dans la conductance antiparallèle la contribution de l'IRS du Fe se développant à l'interface inférieure⁸. Celui-ci ayant un caractère orbitalaire compatible avec la symétrie Δ_1 , son activation par l'application d'une tension (cf. § I - 1.2.5) permet l'ouverture d'un canal de conduction pour les états de symétrie Δ_1^\uparrow en configuration AP. Notons que ce mécanisme est supposé présent également dans les JTMs sans contamination ; l'inversion de signe de la TMR en présence de C proviendrait alors d'une augmentation du poids de la symétrie Δ_1 dans l'IRS par l'hybridation fer-carbone à l'interface⁹.

En résumé et de manière plus simple, en présence de carbone à l'interface Fe/MgO, une hybridation Fe-C se produit, engendrant une importante modification de la structure électronique d'interface, qui a des répercussions drastiques sur les propriétés de transport des JTMs. La contribution au transport de l'interface paraît alors exacerbée ; la polarisation d'interface étant négative, contrairement à la polarisation du volume qui est positive, la présence de C interfacial se traduit par une inversion du signe de la TMR.

I - 1.3.5 Synthèse

Ainsi, parmi les différents types de défauts dont il a été question au cours de ce paragraphe, seules les dislocations paraissent avoir un effet réellement significatif sur l'amplitude de la TMR. La densité du réseau de dislocations est ainsi un paramètre à prendre en compte afin d'améliorer les performances des JTMs.

A l'inverse, la présence de contamination au carbone ou d'oxygène interfacial ne conduit pas à une réduction marquée de la TMR ; en revanche, la présence de ces espèces se traduit par l'apparition de signatures nettes sur les dépendances en tension des conductances. L'introduction contrôlée de C ou d'O offre ainsi la possibilité d'ajuster les caractéristiques en tension des JTMs [52].

I - 1.4 Effet de la température sur le transport polarisé en spin

Tout ce qui a été discuté précédemment se rapporte uniquement à la contribution du tunnel direct et cohérent, qui plus est, à température nulle. Or, les mesures ont en réalité lieu à une température nécessairement finie ; cela implique en particulier que des mécanismes de transport non cohérent (diffusions spéculaires ou non, processus non conservatifs en spin...)

⁸ Sur la base d'observations expérimentales [21], il est supposé qu'à l'interface supérieure, l'IRS est détruit par une plus grande rugosité d'interface (l'état de surface n'est pas couplé au volume).

⁹ Cette supposition est issue de calculs de DOS intégrées en $k_{//}$ et projetées sur les différentes symétries d'états de Bloch, par le code Wien2k [170] ; ces courbes seront présentées au cours du Chapitre IV.

peuvent également contribuer au transport, et ainsi limiter la valeur de la magnétorésistance atteinte à température ambiante.

Un moyen d'évaluer ces effets de température finie consiste à étudier l'évolution en température des conductances et de la TMR dans les JTMs. Plusieurs groupes se sont ainsi penchés sur cette problématique, et divers mécanismes ont alors été proposés puis assemblés de manière empirique afin de reproduire correctement les observations expérimentales. Précisons que si ces modèles ont été pour la plupart développés pour des JTMs à barrière d'alumine amorphe ou polycristalline, ils sont aussi souvent appliqués aux systèmes à barrière de MgO(001) texturée ou monocristalline.

Nous présenterons au cours de cette section tout d'abord les variations en température observées dans des JTMs à barrière de MgO texturée ou monocristalline, puis nous décrirons succinctement les principaux mécanismes habituellement invoqués pour reproduire les observations expérimentales. Ainsi, l'effet d'une température non nulle sera tout d'abord traité comme un terme correctif au transport tunnel direct, provoquant un élargissement en énergie autour du niveau de Fermi, ou une variation de la polarisation due à la décroissance en température de l'aimantation. Enfin, de nouveaux mécanismes de conduction activés par la température seront envisagés pour rendre compte d'une augmentation de conductance en température croissante : transport par sauts, assisté par des magnons et éventuellement des phonons, diffusions non spéculaires par des impuretés ou aux interfaces.

Nous garderons à l'esprit que d'une manière générale, même si des exceptions existent, l'explication des comportements en température nécessite de faire intervenir plusieurs mécanismes.

I - 1.4.1 Observations expérimentales

Les mesures en température rapportées par différentes équipes ont révélé une très forte augmentation de TMR lorsque la température diminue, et ce tant pour des JTMs monocristallines Fe/MgO/Fe(001) [26, 28] que pour des JTMs CoFeB/MgO/CoFeB à texture (001) [54, 55]. Ainsi, la TMR augmente typiquement d'un facteur deux entre 300 K et 10 K, comme on peut le voir sur les deux exemples de la Figure I-16 (graphes (a) et (c)). La généralité de ce phénomène semble par ailleurs confirmée par les travaux de Ma *et al.* [56] sur des JTMs Fe/MgO/Fe monocristallines dont l'épaisseur de barrière est comprise entre 1.5 nm et 3 nm (7 à 14 MC) : ils observent en effet une chute de TMR d'un facteur deux entre la basse température et la température ambiante quelle que soit l'épaisseur de la barrière.

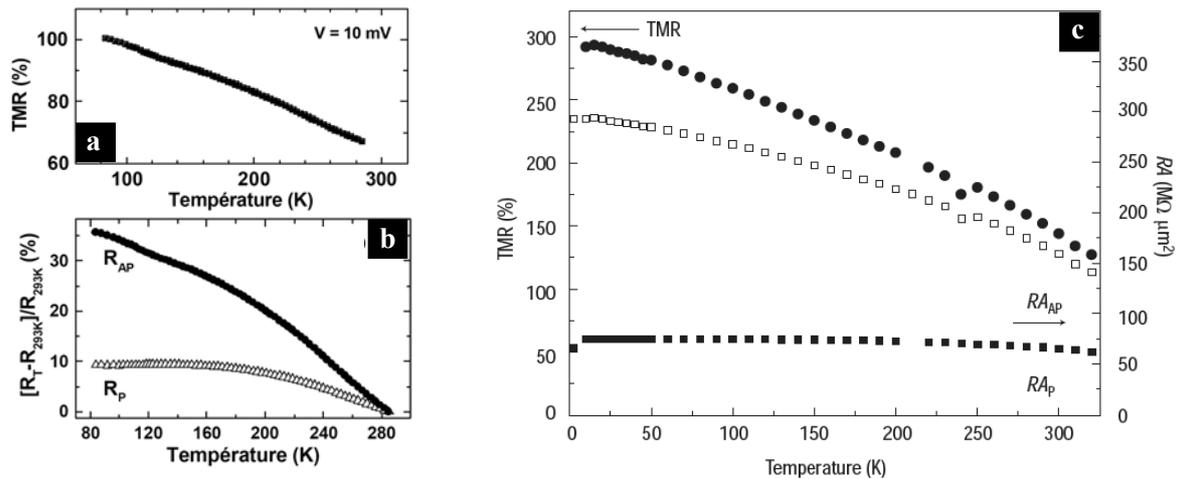


Figure I-16 – Evolution en température de la TMR et des résistances P et AP pour des JTMs (a) et (b) Fe/MgO/Fe monocristalline [26], et (c) CoFeB/MgO/CoFeB à texture (001) [57].

L'analyse de la variation thermique des résistances montre que cette forte décroissance de la TMR en température croissante résulte de la variation en température de la résistance antiparallèle (Figure I-16 (b) et (c)) ; en effet, la résistance AP décroît fortement lorsque la température augmente, alors que la résistance parallèle est presque indépendante de la température.

I - 1.4.2 Effets thermiques correctifs sur le transport tunnel direct et cohérent

I - 1.4.2.1 Elargissement en énergie autour du niveau de Fermi

Tout d'abord, nous considérons la variation du courant tunnel direct et cohérent engendrée par l'élargissement des distributions de Fermi dans les électrodes lorsque la température augmente, ou *thermal smearing*. La dépendance en température des conductances engendrée par ce processus peut s'écrire sous la forme [58, 59] :

$$G_T = G_0 \frac{CT}{\sin(CT)} \quad (\text{I-11})$$

Dans cette équation, G_0 est la conductance à $T = 0$ K ; C caractérise l'amplitude de l'élargissement en énergie, et est relié aux paramètres de la barrière, à savoir son épaisseur d (en Å) et sa hauteur ϕ (en eV), par :

$$C = 1.387 \times 10^{-4} \frac{d}{\sqrt{\phi}} \quad (\text{I-12})$$

Notons que, généralement, la variation de conductance engendrée par ce terme est seulement de l'ordre de quelques pourcents entre 10 K et 300 K. Ceci explique pourquoi elle est parfois négligée ; toutefois, étant donnée la très faible variation de R_p dans les JTMs monocristallines, sa contribution doit être prise en compte dans ces systèmes.

I - 1.4.2.2 Variation thermique de la polarisation

Nous considérons ici un mécanisme de variation en température des conductances liées à un tunnel direct et cohérent, basé sur l'accroissement du désordre magnétique et la perte de polarisation avec l'augmentation de la température.

Shang *et al.* [60] reprennent l'expression de la conductance tunnel de Slonczewski [9] $G(\theta) = G(0)(1 + P_1 P_2 \cos(\theta))$, en y introduisant la dépendance en température de la polarisation des électrodes P_i . Ils supposent alors que cette polarisation décroît avec la température comme l'aimantation, dont la dépendance en température est correctement décrite par l'excitation thermique d'ondes de spin suivant une loi de Bloch, lorsque la température est très inférieure à la température de Curie du matériau ferromagnétique. Par analogie, la polarisation s'écrit donc, avec α une constante dépendant du matériau ferromagnétique :

$$P(T) = P_0(1 - \alpha T^{3/2}) \quad (\text{I-13})$$

Les expressions des conductances parallèle et antiparallèle sont alors données par les relations (I-14), où G_T est la variation de la conductance liée à l'élargissement en température autour de E_F (§ I - 1.4.2.1) :

$$\begin{aligned} G_p(T) &= G_T [1 + P_1(T)P_2(T)] \\ G_{AP}(T) &= G_T [1 - P_1(T)P_2(T)] \end{aligned} \quad (\text{I-14})$$

On voit ici immédiatement que ce modèle donne lieu à une dépendance en température opposée des conductances P et AP : ainsi, la résistance P augmente lorsque la température s'élève, alors que la résistance AP décroît.

Notons que ce modèle, développé pour des JTMs à barrière d'alumine, a également été utilisé pour reproduire les variations en températures observées dans des JTMs CoFeB/MgO/CoFeB à texture (001) [61, 62]. Une variante dédiée aux systèmes Fe/MgO/Fe épitaxiés en a par ailleurs été proposée récemment par Wang *et al.* [28].

Ainsi, Wang *et al.* [28] tentent d'intégrer les notions de filtrage en symétrie dans la dépendance en température des conductances. Supposant qu'un désalignement des aimantations a des conséquences plus importantes sur la conductance en configuration antiparallèle (le blocage de la configuration AP par les effets de filtrage en symétrie est dans

ce cas moins efficace, donc la conductance augmente fortement), ces auteurs reformulent les expressions (I-14). Ils remplacent la polarisation P par l'aimantation M , dont la dépendance en température est décrite par une loi de Bloch (cf. relation (I-13)). De plus, ils introduisent un paramètre empirique β_γ , relatif à la configuration magnétique $\gamma = P$ ou AP et incluant une relation de proportionnalité entre P et M . Les conductances en fonction de la température s'expriment alors [28, 56] :

$$\begin{aligned} G_P(T) &= G_P^0 [1 + \beta_P M_1(T) M_2(T)] \\ G_{AP}(T) &= G_{AP}^0 [1 - \beta_{AP} M_1(T) M_2(T)] \end{aligned} \quad (\text{I-15})$$

Comme pour le modèle de Shang, des variations en température opposées sont attendues pour R_P et R_{AP} . Enfin, ces auteurs précisent que le paramètre β_P est étroitement lié aux états majoritaires de symétrie Δ_1 , qui dominent le transport en configuration parallèle ; de même, β_{AP} est relié aux états Δ_i participant à la conductance AP : $\Delta_5, \Delta_2, \Delta_2'$. Aucun indice n'est cependant donné quant à la relation existant entre les paramètres et les symétries des états de Bloch se propageant...

I - 1.4.3 Processus de transport non élastiques induits thermiquement

I - 1.4.3.1 Transport par sauts à travers des chaînes de N états localisés

Ce type de processus de transport indirect est un mécanisme thermiquement activé qui conduit à une augmentation des conductances lorsque la température augmente. Les électrons tunnel passent alors par sauts d'un état localisé dans la barrière à l'autre, en émettant ou absorbant un phonon lors de la transition, pour compenser la différence d'énergie entre les deux états.

La description théorique d'un transport par sauts à travers des chaînes de N états localisés dans une barrière isolante a été donnée par L. I. Glazman et K. A. Matveev [63] ; la dépendance en température de la conductance d'une chaîne contenant au moins un état localisé ($N \geq 1$) suit alors une loi de puissance :

$$G(T) \propto T^{\nu_N} \quad \text{avec} \quad \nu_N = N - \frac{2}{N+1} \quad (\text{I-16})$$

Notons que pour $N = 1$, aucune évolution en température n'est attendue.

Afin de reproduire correctement leurs observations dans le cas d'une barrière d'alumine, Shang *et al.* [60] ont ajouté aux conductances P et AP liées au transport direct et polarisé en spin décrites par les équations (I-15), un terme non polarisé décrit par la relation (I-16). Cette nouvelle contribution est une conductance indépendante du spin, résultant d'un

transport par sauts via les états localisés que constituent les défauts dans une barrière Al_2O_3 . L'ajustement des dépendances en température expérimentales leur permet alors d'obtenir un exposant ν égal à $4/3$, correspondant à $N = 2$.

On trouve également un exemple d'utilisation de ce terme dans des JTMs à barrière de MgO texturées dans les travaux de Kou *et al.* [62] et de Khan *et al.* [64]. Kou *et al.* observent comme Shang *et al.* la signature en température d'une chaîne conductrice de $N = 2$ états localisés ; ils signalent par ailleurs que ce terme de transport non polarisé par sauts a un poids plus faible que dans le cas de jonctions à barrière d'alumine. Les JTMs texturées CoFeB/MgO/CoFeB présentent en effet une meilleure qualité cristalline, la densité de défauts et par conséquent la probabilité d'un processus de transport par sauts sont donc nettement réduites.

Enfin, une généralisation de la théorie de Glazman-Matveev au cas d'un transport par sauts polarisé en spin a été proposée par Lu *et al.* [65] pour décrire les variations en température observées dans des JTMs CoFeB/MgO/CoFeB à texture (001). Ils adaptent donc le modèle au cas d'un processus inélastique durant lequel le spin est conservé. Ils obtiennent ainsi des conductances dans les configurations P et AP qui s'écrivent en fonction de la polarisation des électrodes P :

$$\begin{aligned} G_P(T) &\propto (k_B T)^{\nu_N} \left((1+P)^{2\beta_N} + (1-P)^{2\beta_N} \right) \\ G_{AP}(T) &\propto (k_B T)^{\nu_N} \left(2(1-P^2)^{\beta_N} \right) \end{aligned} \quad (\text{I-17})$$

Dans ces relations, $\beta_N = 1/(N+1)$, et la variation en température de la polarisation est prise en compte par une loi de Bloch (relation (I-13)).

I - 1.4.3.2 Transport tunnel assisté par des magnons et des phonons

Un autre mécanisme de transport inélastique et impliquant un processus de renversement du spin (*spin-flip*) a été proposé par S. Zhang *et al.* [66]. Ces auteurs ont élaboré un modèle pour reproduire les variations en tension et en température des conductances et de la TMR, basé sur l'excitation d'ondes de spin (magnons) par les électrons tunnel à l'interface métal ferromagnétique/isolant. Dans la limite d'une tension appliquée tendant vers zéro, et pour un processus tunnel non cohérent, la dépendance en température de la conductance dans la configuration magnétique $\gamma = P, AP$ est du type :

$$G_\gamma(T) \propto B^\gamma T \ln \left(\frac{k_B T}{E_c} \right) \quad (\text{I-18})$$

E_c est la limite inférieure du spectre énergétique des magnons, introduite pour éviter la divergence du nombre de magnons excités à température finie ; une signification physique à

cette grandeur peut correspondre, selon les auteurs [66], soit à une anisotropie pour les spins présents à l'interface, soit à une longueur de cohérence maximale, due par exemple aux joints de grains. B^γ est une constante reliée aux densités d'états majoritaire et minoritaire dans les deux électrodes, et qui est telle que $B^{AP} > B^P$. Cela signifie que, dans le cas d'une polarisation d'électrode positive, l'augmentation de conductance avec la température prévue par ce modèle est plus importante en configuration AP, et que par conséquent, la TMR doit diminuer avec la température.

Plusieurs extensions à ce modèles ont par la suite été publiées ; tout d'abord, Han *et al.* [67] ont introduit une limite inférieure du spectre des ondes de spin anisotrope notée E_c^γ et présentant deux valeurs correspondant aux états magnétiques $\gamma = P$ ou AP. On peut également citer l'adaptation de Drewello *et al.* [68], qui inclut l'élargissement en énergie autour de l'énergie de Fermi dans le modèle de S. Zhang (relation (I-18)), et qui a été utilisée pour reproduire les résultats obtenus avec des JTMs à barrière MgO texturée [64, 68].

Enfin, une correction est parfois apportée à cette contribution de transport assisté par des magnons, faisant intervenir des interactions avec des phonons. Ce mécanisme de transport inélastique et conservatif en spin a été proposé par A. M. Bratkovski [69]. La dépendance en température de ce transport assisté par des phonons est donnée par une intégrale de Debye standard. L'augmentation de conductance avec la température est alors plus importante en configuration P qu'en configuration AP ; il résulte donc de ce mécanisme une augmentation de la TMR, qui se superpose à la diminution engendrée par les magnons et l'atténue. Plusieurs études [69, 70] mentionnent ainsi la possibilité de réduire l'effet néfaste pour la TMR d'un transport assisté par des magnons.

I - 1.4.3.3 Diffusions non spéculaires aux interfaces

Récemment, X. Zhang *et al.* [71] ont développé un modèle de transport tunnel tenant compte des processus faisant intervenir des diffusions non spéculaires. D'après ces auteurs, la contribution de diffusions non spéculaires à l'interface entre la barrière et l'électrode réceptrice augmenterait la conductance AP : ces diffusions permettraient en effet de coupler les états Δ_1 majoritaires évanescents aux états de Bloch minoritaires disponibles dans l'électrode réceptrice. Les états Δ_1 pouvant alors contribuer à la conductance AP, la TMR s'en trouverait alors fortement réduite.

En considérant ce type de diffusions, et en supposant une résistance parallèle indépendante de la température, ils établissent alors une expression prédisant la variation en température de la conductance AP :

$$\frac{1}{R_{AP}(T)} = \frac{1}{R_{AP}(0)} + \frac{\xi(T)}{R_P(0)} \quad (\text{I-19})$$

Dans cette expression, $\xi(T)$ est un taux de diffusion effectif ; celui-ci accepte une expression simple pour l'ajustement des dépendances en température expérimentales observées pour des JTMs CoFe/MgO/CoFe(001) texturée [57] et Co/MgO/Co(001) épitaxiée [29], de la forme :

$$\xi(T) = a \left(\frac{T}{T_0 - T} \right)^{3/2} \quad (\text{I-20})$$

I - 1.4.3.4 Diffusions sur des impuretés paramagnétiques dans la barrière

Une diminution de TMR avec la température, associée à une forte variation de la conductance AP, peut également être causée par la présence d'impuretés paramagnétiques dans la barrière permettant un processus tunnel résonant via leurs niveaux d'énergie, comme l'ont suggéré Vedyayev *et al.* [72]. La conductance antiparallèle assistée par les impuretés magnétiques augmenterait alors dramatiquement avec l'augmentation de la température, par l'excitation thermique de processus à la fois conservatifs et non conservatifs en spin.

Ce mécanisme est néanmoins peu probable dans le cas de jonctions tunnel magnétiques épitaxiées, étant donnée la haute qualité structurale des barrières de MgO élaborées par épitaxie par jets moléculaires, et peut ainsi être écarté dans le cadre d'une étude sur des JTMs Fe/MgO/Fe monocristallines.

I - 1.4.3.5 Processus contribuant à faibles tension et température

Dans la gamme des très basses températures (< 50 K) et tensions (< 10 mV), la conductance tunnel peut être affectée par deux autres effets : d'une part, l'effet Kondo, dû à des impuretés magnétiques présentes dans la barrière ou proches des interfaces, peut engendrer des variations très abruptes des résistances P et AP et une chute importante de la TMR lorsque la température décroît en-dessous de 50 K [73]. D'autre part, des effets de localisation faible dans les zones amorphes des électrodes ont été rapportés par Bernos *et al.* [74], dans des JTMs CoFeB/MgO/CoFeB élaborées par pulvérisation cathodique.

Ces processus engendrent des variations du deuxième ordre, qui ne peuvent par ailleurs être observées que dans le cadre d'études spécifiques à très basse tension et à très basse température.

I - 1.4.4 Synthèse

Une chute de la TMR d'environ 50% entre 5 K et 300 K est souvent observée pour des jonctions à barrière de MgO ; elle est principalement imputable à une augmentation importante de la conductance AP, la conductance parallèle ne variant que très peu en température.

La très forte variation de G_{AP} ne peut être raisonnablement expliquée par la prise en compte d'effets thermiques dans le processus de transport tunnel direct et cohérent, à moins d'introduire des paramètres phénoménologiques qui n'ont par ailleurs pas d'assise physique. Il est alors nécessaire de faire intervenir des mécanismes diffusifs, à l'origine de l'ouverture de nouveaux canaux de conduction non cohérents. Plusieurs mécanismes ont été proposés, tous engendrant une augmentation des conductances P et AP avec l'augmentation de la température.

La faible variation de G_P ne peut quant à elle être reproduite que par la superposition de deux mécanismes ayant des variations opposées en température, et se compensant en grande partie. Parmi les processus recensés, seul celui invoquant une variation en température de la polarisation (§ I - 1.4.2.2) permettrait de modéliser une diminution de la conductance parallèle avec une augmentation de la température.

I - 2 Régime des barrières fines : couplages magnétiques entre les deux électrodes ferromagnétiques

Nous nous intéressons dans cette seconde partie aux interactions magnétiques dans des multicouches {ferromagnétique/couche séparatrice non-magnétique/ferromagnétique}. Ces interactions ont la particularité de favoriser une orientation spontanée (sans tension et sans champ appliqué) des aimantations des deux électrodes dans une configuration parallèle, antiparallèle, à 90°, ou même formant des angles quelconques (phases cantées). Dans ce manuscrit, il sera uniquement question des trois premiers cas, aimantations (anti)parallèles ou orthogonales.

Nous recensons donc ici les principaux mécanismes proposés pour expliquer ces couplages, et passons en revue des observations expérimentales. Ce paragraphe commencera par la présentation des modèles élaborés pour rendre compte d'un couplage bilinéaire dans des multicouches {ferromagnétique/métal/ferromagnétique}, celles-ci étant les systèmes historiques dans lesquels ce couplage a été observé. Les modèles de couplage bilinéaire dans des multicouches à couche séparatrice non-métallique feront l'objet de la section suivante. Les mécanismes proposés pour rendre compte d'un couplage biquadratique seront abordés

dans le troisième paragraphe. Nous terminerons par une revue des travaux expérimentaux menés sur des systèmes {ferromagnétique/couche non-métallique/ferromagnétique}.

I - 2.1 Couplage bilinéaire à travers une couche séparatrice métallique

L'objectif de ce paragraphe est de présenter succinctement les caractéristiques du couplage bilinéaire observé dans des multicouches {ferromagnétique/métal/ferromagnétique}, ainsi que divers modèles développés pour en rendre compte. Nous présenterons ensuite l'approche proposée par P. Bruno dans le cadre d'une approximation d'électrons libres, permettant une description de l'évolution en température de ce couplage. Enfin, dans une dernière section, nous vérifierons que les prédictions de ce modèle en termes de dépendance en température peuvent s'appliquer aux systèmes expérimentaux.

I - 2.1.1 Introduction

Grünberg *et al.* [75] sont les premiers en 1986 à faire état d'une interaction antiferromagnétique entre deux couches de Fe séparées par une couche de Cr, souvent appelée couplage d'échange ou IEC¹⁰. Ce couplage est par la suite observé dans de nombreux systèmes [54, 76, 77] et apparaît ainsi comme une caractéristique quasiment systématique des multicouches {matériau ferromagnétique/métal de transition/matériau ferromagnétique} ; de plus, il présente un caractère oscillatoire, alternant des interactions F et AF, en fonction de l'épaisseur de la couche séparatrice non-magnétique (Figure I-17).

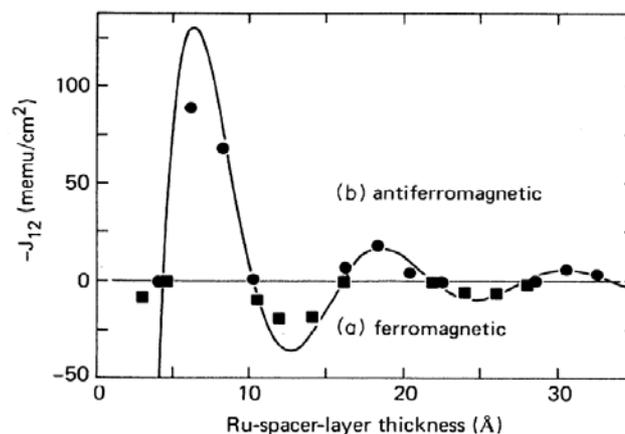


Figure I-17 – Evolution de l'intensité du couplage d'échange J_{12} entre deux couches de $Ni_{80}Co_{20}$ séparées par une couche de Ru en fonction de l'épaisseur de la couche de Ru. La ligne continue correspond à une simulation des données à partir d'un modèle de type RKKY. D'après [77].

¹⁰ IEC : Interlayer Exchange Coupling.

D'un point de vue théorique, ce couplage est interprété comme une interaction de type Heisenberg entre les deux électrodes, qui s'écrit sous la forme :

$$E_{\text{int}} = -J_1 \cos \theta \quad (\text{I-21})$$

où θ est l'angle entre les aimantations des deux couches, et J_1 la constante de couplage bilinéaire ou de Heisenberg, négative (respectivement positive) dans le cas d'une interaction antiferromagnétique (respectivement ferromagnétique). Plusieurs approches théoriques ont été proposées pour donner une expression de J_1 rendant compte des observations expérimentales. Les approches les plus générales, développées par P. Bruno [78] et M. D. Stiles [79] dans des termes similaires, décrivent le couplage entre les deux électrodes ferromagnétiques en termes d'interférences quantiques dues aux réflexions dépendantes du spin des ondes de Bloch aux interfaces matériau ferromagnétique/métal.

Dans leur formulation la plus générale, ces théories [78, 79] englobent les différentes approches proposées et utilisées auparavant pour modéliser le couplage entre les électrodes. Ces dernières peuvent en effet être dérivées des théories d'interférences quantiques, moyennant des approximations propres à chaque approche. Parmi ces modèles simplifiés, les plus couramment employés sont ceux basés sur un traitement perturbatif de la théorie Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) [80–82]. On peut également citer les calculs effectués dans une approximation d'électrons libres [83–85] ou à l'opposé, dans un modèle de liaisons fortes [86].

Dans la suite, nous nous concentrons sur une de ces approches simplifiées, afin de décrire de manière analytique le comportement du couplage bilinéaire dans des multicouches {ferromagnétique/métal/ferromagnétique}. Nous nous appuyons sur les travaux de P. Bruno [87, 88], dans lesquels les dépendances en épaisseur et en température du couplage sont dérivées dans une hypothèse d'électrons libres, à partir des expressions exactes obtenues dans le modèle d'interférences quantiques.

Notons que dans cette formulation, le traitement du couplage ne se limite pas au cas d'une couche séparatrice métallique ; il peut également s'appliquer au cas d'une couche isolante. Le même formalisme sera ainsi repris plus loin (§ I - 2.2) pour décrire le couplage à travers une couche séparatrice isolante.

I - 2.1.2 Couplage bilinéaire à température non nulle : modèle de Bruno

Bruno se place donc dans le cadre du modèle des électrons libres, schématisé sur la Figure I-18. Il considère deux électrodes ferromagnétiques F_A et F_B semi-infinies, dont les aimantations respectives forment un angle θ . Ces électrodes sont séparées par une couche métallique d'épaisseur D . L'origine des énergies est prise au bas de la bande de conduction

majoritaire des électrodes ferromagnétiques, le décalage d'échange entre les bandes majoritaire et minoritaire est noté Δ , et la couche séparatrice a un potentiel égal à U inférieur à E_F , cette couche étant métallique.

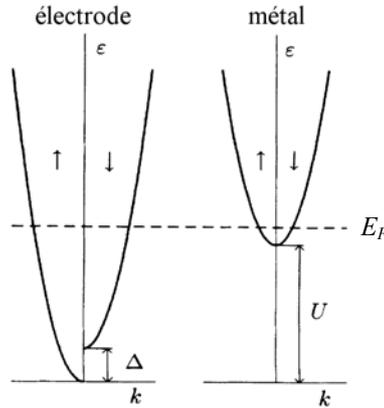


Figure I-18 – Schéma du modèle des électrons libres, et notations utilisées.

Du fait de l'invariance par translation dans le plan des couches, la composante $k_{//}$ du vecteur d'onde dans le plan est conservée après réflexion ou transmission aux interfaces. Pour un électron incident, de vecteur d'onde dans la couche séparatrice $\vec{k}^i = (k_{//}, k_z^i)$, les vecteurs d'onde des ondes réfléchies et transmises s'écrivent respectivement $\vec{k}^r = (k_{//}, -k_z^i)$ et $\vec{k}^t = (k_{//}, k_z^t)$. Le coefficient complexe de réflexion r est alors donné par :

$$r = \frac{k_z^i - k_z^t}{k_z^i + k_z^t} \quad (\text{I-22})$$

Dans l'article [78], Bruno établit l'expression exacte du couplage entre les électrodes en termes de coefficients de réflexion ; par unité d'aire, cette énergie s'écrit :

$$E_{AB}(\theta) = \frac{1}{4\pi^3} \text{Im} \int d^2 k_{//} \int_{-\infty}^{+\infty} d\varepsilon f(\varepsilon) \times \ln [1 - 2(\bar{r}_A \bar{r}_B + \Delta r_A \Delta r_B \cos \theta) e^{iq_z D} + (\bar{r}_A^2 - \Delta r_A^2)(\bar{r}_B^2 - \Delta r_B^2) e^{2iq_z D}] \quad (\text{I-23})$$

où $q_z = k_z^r - k_z^i$ représente le vecteur de diffusion, $f(\varepsilon)$ est la fonction de Fermi-Dirac, et $\bar{r}_{A(B)}$ et $\Delta r_{A(B)}$ sont respectivement la moyenne et l'asymétrie de spin de l'amplitude réfléchie à l'interface avec l'électrode F_A (F_B) :

$$\bar{r}_{A(B)} = \frac{r_{A(B)}^\uparrow + r_{A(B)}^\downarrow}{2} \quad \text{et} \quad \Delta r_{A(B)} = \frac{r_{A(B)}^\uparrow - r_{A(B)}^\downarrow}{2} \quad (\text{I-24})$$

Les deux électrodes ferromagnétiques sont supposées identiques : les amplitudes réfléchies sur les électrodes F_A et F_B sont alors égales : $r_A^\uparrow = r_B^\uparrow \equiv r^\uparrow$ et $r_A^\downarrow = r_B^\downarrow \equiv r^\downarrow$.

L'expression de $E_{AB}(\theta)$ peut être développée en puissances de $\cos \theta$:

$$E_{AB}(\theta) = J_0 - J_1 \cos \theta - J_2 \cos^2 \theta - \dots \quad (\text{I-25})$$

où J_0 est la constante de couplage non-magnétique, J_1 est la constante de couplage d'Heisenberg (bilinéaire), et J_2 la constante de couplage biquadratique. La convention de signe est ici telle que $J_1 < 0$ correspond à un couplage antiferromagnétique¹¹. Le terme général J_n du développement (I-25) s'écrit, pour $n \geq 1$:

$$J_n = \frac{1}{4\pi^3} \text{Im} \int d^2 k_{\parallel} \int_{-\infty}^{+\infty} d\varepsilon f(\varepsilon) \frac{1}{n} \left[\frac{2\Delta r^2 e^{iq_z D}}{1 - 2\bar{r}^2 e^{iq_z D} + (\bar{r}^2 - \Delta r^2)^2 e^{2iq_z D}} \right]^n \quad (\text{I-26})$$

Après intégration, en considérant que la contribution principale provient des électrons au voisinage de E_F et en se plaçant dans la limite d'une épaisseur importante de la couche séparatrice, Bruno obtient l'expression suivante du couplage bilinéaire en fonction de la température [88] :

$$J_1(T) = J_1(0) \times \frac{T/T_0}{\sinh(T/T_0)}, \quad (\text{I-27})$$

$$\text{avec :} \quad T_0 = \frac{\hbar^2 k_F}{2\pi k_B D m} \quad (\text{I-28})$$

$$\text{et :} \quad J_1(0) = -\frac{1}{4\pi^2} \frac{\hbar^2 k_F^2}{m D^2} \text{Im}(\Delta r^2 e^{2ik_F D}) \quad (\text{I-29})$$

où $k_F = \sqrt{2m(E_F - U)/\hbar^2}$ est le vecteur d'onde au niveau de Fermi dans le séparateur métallique, k_B la constante de Boltzmann, et m la masse de l'électron. $J_1(0)$ est la valeur du couplage à température nulle, qui contient le caractère oscillant du couplage en fonction de l'épaisseur D de la couche séparatrice métallique.

L'évolution du couplage avec la température prévue par l'expression (I-27) est représentée schématiquement par la courbe en traits pleins sur la Figure I-19, où « x » représente le rapport T/T_0 , et « y » le couplage J_1 normalisé par rapport à sa valeur à température nulle. Ainsi, dans le cas d'une couche séparatrice métallique, lorsque la température augmente, il est attendu une diminution de l'intensité du couplage entre les deux électrodes ferromagnétiques. Ce comportement peut se comprendre simplement : à température nulle, le couplage oscille avec un vecteur d'onde $2k_F$. Lorsque la température augmente, le vecteur d'onde de Fermi k_F subit un élargissement Δk_F , conduisant à

¹¹ Par souci d'uniformisation des conventions dans le chapitre, la convention de signe est ici définie de manière opposée à celle choisie par Bruno dans [88].

l'amortissement des oscillations de couplage, et donc à une diminution de l'amplitude du couplage.

La courbe en traits pointillés correspond au cas du couplage à travers une couche séparatrice isolante, qui sera discuté ultérieurement (au § I - 2.2.1).

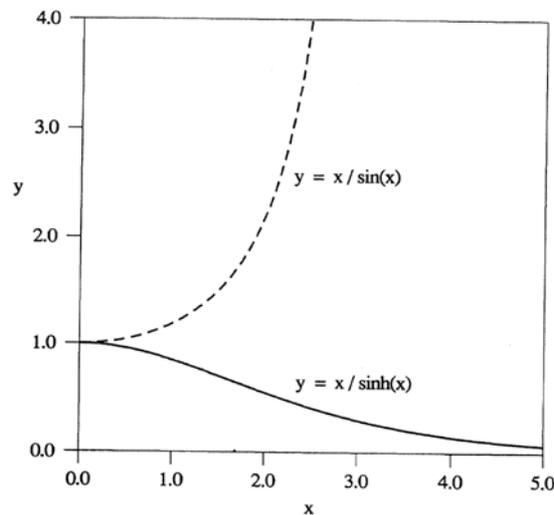


Figure I-19 – Tracé des fonctions $y = x / \sinh x$ (en traits pleins) et $y = x / \sin x$ (en traits pointillés). D'après [88].

Nous présentons dans la section suivante quelques exemples de réalisations expérimentales présentant un bon accord avec les prédictions du modèle présenté ci-dessus, et plus particulièrement concernant la dépendance en température de l'intensité du couplage.

I - 2.1.3 Confrontation avec des observations en température

Zhang *et al.* [89] ont étudié la dépendance en température de l'intensité du couplage d'échange dans des multicouches Co/Ru/Co, et ainsi vérifié certains points clés des prédictions du modèle de Bruno. Ainsi, ces auteurs ont observé une diminution du couplage lorsque la température augmente, qui peut être correctement reproduite par une variation de la forme $(T/T_0) / \sinh(T/T_0)$ (expression (I-27)). De plus, comme le suppose l'expression théorique de la température caractéristique T_0 (relation (I-28)), Zhang *et al.* observent une variation en température plus importante pour les plus fortes épaisseurs de la couche séparatrice, c'est-à-dire une température T_0 qui diminue lorsque l'épaisseur D augmente.

Ce modèle permet également de reproduire les variations en température observées pour d'autres types de multicouches {ferromagnétique/métal/ferromagnétique}. On peut par exemple citer les travaux de Lee *et al.* sur des multicouches CoFe/Cu/CoFe [90], et de Persat et Dinia sur Co/Cu/Co [91]. Dans ces études comme dans celle de Zhang *et al.* [89–91], la température caractéristique T_0 adopte une valeur de l'ordre de la centaine de Kelvins.

Signalons toutefois que plusieurs auteurs [91, 92] tempèrent l'accord entre les observations et le modèle de Bruno : ils mentionnent en effet que la valeur de T_0 obtenue expérimentalement est au moins un ordre de grandeur inférieure à celle évaluée théoriquement, à partir de valeurs calculées du vecteur d'onde k_F .

On retiendra donc que la dépendance en température prévue par le modèle de Bruno correspond globalement aux observations expérimentales. Toutefois, la température caractéristique T_0 est un paramètre dont la signification semble plutôt empirique.

I - 2.2 Couplage bilinéaire à travers une couche séparatrice isolante

Nous entrons à présent dans le vif du problème, en abordant la problématique du couplage antiferromagnétique entre deux électrodes ferromagnétiques séparées par une couche isolante, et non plus métallique. La convention de signe est la même que précédemment, $J_1 < 0$ correspondant à une interaction antiferromagnétique entre les deux électrodes.

Nous nous intéresserons dans cette section aux développements théoriques menés pour décrire ce phénomène. Ainsi, nous commencerons par une approche simple basée sur une approximation d'électrons libres. Dans la continuité de la section précédente, nous reprendrons le modèle de Bruno généralisé [88] et nous nous intéresserons au cas des couches séparatrices isolantes ; nous verrons que malgré un traitement identique pour les deux natures de couches séparatrices, les variations du couplage avec l'épaisseur de la couche et avec la température sont très différentes dans les deux cas.

Dans le cadre d'une étude expérimentale du couplage, deux hypothèses de ce modèle sont toutefois très discutables. D'une part, les résultats sont établis dans l'approximation d'une barrière épaisse, alors qu'expérimentalement, le couplage AF n'est observé qu'à très faible épaisseur de barrière (typiquement trois plans atomiques). D'autre part, la périodicité de l'empilement implique une structure électronique complexe qui n'est absolument pas reproduite dans une approximation d'électrons libres. Des approches plus élaborées, tenant compte de ces deux aspects, seront donc développées dans la suite de cette section.

I - 2.2.1 Modèle de Bruno appliqué au cas d'une couche isolante

Comme nous l'avons mentionné plus haut, le modèle d'interférences quantiques de P. Bruno [78, 87, 88] permet un traitement unifié du couplage à travers une couche séparatrice, qu'elle soit métallique ou isolante, grâce à l'utilisation du concept de surface de Fermi complexe. Les électrons dans la couche séparatrice sont alors décrits soit par des ondes de Bloch avec un vecteur d'onde k_F réel (séparateur métallique), soit par des ondes évanescentes de vecteur d'onde k_F imaginaire (séparateur isolant).

Ainsi, les expressions (I-27) et (I-28) établies plus haut sont également valables dans le cas d'une couche séparatrice isolante [88], c'est-à-dire pour $E_F < U$ avec les notations précédentes (Figure I-18), avec toutefois une restriction supplémentaire, consistant à se placer dans la limite des basses températures ($T < \hbar^2 \kappa_F / 2mk_B D$). Rappelons que les autres hypothèses sous-jacentes à l'établissement de ces expressions sont un modèle d'électrons libres, des électrodes identiques et semi-infinies et une barrière épaisse.

Le vecteur d'onde dans la barrière k_F est complexe dans le cas d'une couche isolante ; nous le réécrivons donc comme le produit $k_F = i\kappa_F$, où $\kappa_F = \sqrt{2m(U - E_F)/\hbar^2}$. Les expressions (I-27) à (I-29) deviennent alors :

$$J_1(T) = J_1(0) \times \frac{T/T_0}{\sin(T/T_0)}, \quad (\text{I-30})$$

$$\text{avec :} \quad T_0 = \frac{\hbar^2 \kappa_F}{2\pi k_B D m} \quad (\text{I-31})$$

$$\text{et :} \quad J_1(0) = \frac{1}{4\pi^2} \frac{\hbar^2 \kappa_F^2}{mD^2} \text{Im}(\Delta r^2 e^{-2\kappa_F D}) \quad (\text{I-32})$$

La dépendance en température prévue par la relation (I-30) est schématiquement représentée sur la Figure I-19 page 41 (courbe en pointillés). Ainsi, en dépit du traitement unifié proposé par Bruno, la dépendance en température du couplage est totalement différente pour une couche séparatrice métallique ou isolante. Dans le premier cas, comme nous l'avons vu plus haut, le couplage diminue avec la température (Figure I-19, traits pleins), alors que dans le second (pointillés), il augmente fortement.

Cette forte augmentation du couplage lorsque la température croît est liée au fait que le couplage augmente de façon exponentielle avec l'énergie ε des électrons incidents : en effet, $\kappa = \sqrt{2m(U - \varepsilon)/\hbar^2}$ diminue si ε augmente, ce qui engendre l'augmentation de $J_1(0)$ donné par la relation (I-32). Avec l'augmentation de la température, la contribution due aux électrons situés dans une gamme d'énergie $k_B T$ en-dessous du niveau de Fermi diminue au profit de celle due aux électrons dans une gamme d'énergie $k_B T$ au-dessus du niveau de Fermi : le couplage doit donc augmenter avec la température dans le cas d'une couche séparatrice isolante.

A température nulle, le couplage bilinéaire se réduit à $J_1(0)$ (relation (I-32)) ; cette expression est strictement équivalente¹² au résultat obtenu par J. Slonczewski [9], en évaluant

¹² Il suffit en effet de développer l'expression (I-32), en remplaçant dans le calcul de Δr (relation (I-24)) les notations propres au modèle de Bruno par celles utilisées par Slonczewski. Ainsi, $k_z^{i\uparrow(\downarrow)}$ devient $k_{\uparrow(\downarrow)}$, et k_z^i est à présent complexe (barrière tunnel) et devient $i\kappa$.

pour une température nulle, le couple exercé par la rotation de l'aimantation d'une électrode sur l'aimantation de la seconde, les hypothèses sous-jacentes au calcul étant identiques à celles utilisées par Bruno (approximation d'électrons libres, limite des barrières épaisses, et électrodes supposées identiques et semi-infinies). L'expression du couplage d'échange par effet tunnel obtenue par Slonczewski est alors la suivante :

$$J_1(T = 0 K) = \frac{U_0 - E_F}{8\pi^2 d^2} \cdot \frac{8\kappa^3 (\kappa^2 - k_\uparrow k_\downarrow) (k_\uparrow - k_\downarrow)^2 (k_\uparrow + k_\downarrow)}{(\kappa^2 + k_\uparrow^2)^2 (\kappa^2 + k_\downarrow^2)^2} e^{-2\kappa d}, \quad (\text{I-33})$$

$$\text{avec } k_\uparrow > k_\downarrow > 0$$

Dans cette expression, $(U_0 - E_F)$ et d représentent respectivement la hauteur et l'épaisseur de la barrière tunnel, k_\uparrow et k_\downarrow sont les vecteurs d'onde des électrons majoritaires et minoritaires dans les électrodes, et $i\kappa$ est le vecteur d'onde dans la barrière tunnel, ces différents vecteurs d'onde étant évalués au niveau de Fermi.

Cette expression (I-33) met en évidence deux aspects essentiels du couplage à travers une couche séparatrice isolante. Le premier est la forte décroissance de ce coupage avec l'épaisseur de la couche séparatrice, en $(\exp(-2\kappa d) / d^2)$, qui fournit une signature nette du couplage par effet tunnel. Le second aspect est que dans ce modèle, la nature du couplage (F ou AF) est déterminée par le signe du terme $(\kappa^2 - k_\uparrow k_\downarrow)$, appelé facteur de cohérence quantique de Slonczewski. Ainsi, le couplage est antiferromagnétique pour $\kappa^2 < k_\uparrow k_\downarrow$ (signe négatif du facteur de cohérence quantique), et ferromagnétique pour $\kappa^2 > k_\uparrow k_\downarrow$ (signe positif).

Ces résultats ont été dérivés, comme cela a été mentionné plusieurs fois, dans la limite des barrières épaisses, c'est-à-dire dans une limite continue. Cependant, dans le régime des faibles épaisseurs de barrière, du point de vue expérimental, cette approximation continue n'est pas valide. Nous allons voir dans le paragraphe suivant les conséquences de la relaxation de cette approximation.

I - 2.2.2 Extension aux faibles épaisseurs d'isolant : contribution d'un mécanisme résonant

Toujours dans une approche d'électrons libres, Zhuravlev *et al.* [93] ont réalisé, à partir des équations de Slonczewski, un calcul complet sans se placer dans la limite continue, et donc applicable au cas des faibles épaisseurs d'isolant. Ils trouvent alors qu'un couplage ferromagnétique est attendu dans la gamme d'épaisseurs où le couplage AF est expérimentalement observé. Seul l'ajout d'une contribution correspondant à un mécanisme tunnel résonant permettrait d'obtenir un couplage de signe opposé (AF) dans le cadre de cette approche.

Deux origines distinctes à ce mécanisme résonant ont été proposées dans la littérature. Ainsi, Zhuravlev *et al.* [93, 94] ont évoqué la contribution de défauts ou d'impuretés dans la barrière, engendrant le développement d'états localisés dans la bande interdite de l'isolant. Plus précisément, dans l'article [94], ils associent ce mécanisme résonant à la présence de lacunes d'oxygène dans la barrière de MgO.

Alternativement à la présence de tels défauts, Tiusan *et al.* [15, 21] revendiquent une origine plus intrinsèque au système Fe/MgO/Fe épitaxié pour justifier l'existence de ce mécanisme résonant. En effet, dans ces JTMs, un niveau électronique résonant est naturellement présent à l'interface entre le fer et le MgO : l'état de résonance interfaciale (IRS) du Fe(001), localisé dans la bande minoritaire, dont il a été question plus haut dans ce chapitre (§ I - 1.2.5).

Concernant la dépendance en température, il paraît difficile d'attribuer une signature unique pour ce type de mécanisme ; la variation en température est en effet fortement liée dans ce cas à la position en énergie du niveau résonant. Ainsi, dans le cas d'impuretés dont l'énergie se trouve au niveau de Fermi, Zhuravlev *et al.* [93] attendent une décroissance du couplage lorsque la température augmente, du fait d'une résonance moins marquée lorsque la température augmente. En revanche, pour un état localisé d'énergie supérieure à E_F , on peut supposer que l'élargissement de la distribution de Fermi permet au contraire de peupler cet état et renforcer son caractère résonant, engendrant une augmentation du couplage avec l'augmentation de la température.

Si l'approximation de barrière épaisse initialement utilisée par Bruno et Slonczewski est relaxée dans ce modèle, la structure électronique des électrodes n'est toujours pas prise en compte de manière réaliste. Ceci est particulièrement problématique dans les multicouches monocristallines, comme le système Fe/MgO/Fe étudié. Nous nous intéressons dans la section suivante aux résultats obtenus par le biais d'évaluations *ab initio* de l'intensité de couplage.

I - 2.2.3 Approches *ab initio* dans des empilements Fe/MgO/Fe

Le signe et l'intensité du couplage entre les deux électrodes peuvent en effet être obtenus grâce à des approches *ab initio*. Pour cela, le système est défini à partir d'une super-cellule comportant une séquence de couches de Fe et de MgO (voir par exemple la Figure I-20), reproduite périodiquement dans les trois directions de l'espace. L'énergie totale de l'empilement est ensuite calculée dans les configurations parallèle (E_P) et antiparallèle (E_{AP}) des aimantations des deux couches de fer adjacentes. La constante de couplage bilinéaire J est enfin déduite grâce à la relation : $J = (E_{AP} - E_P) / 2$.

De tels calculs ont été réalisés par Yang *et al.* [95] sur le système Fe/MgO/Fe, pour une structure ayant été relaxée dans une position de moindre énergie (Figure I-20). Ils obtiennent

ainsi un couplage AF dans le cas d'une structure sans défauts, contrairement aux résultats obtenus par Zhuravlev *et al.* [93] dans l'approche d'électrons libres. Ils étudient également l'impact des conditions d'oxydation de la barrière sur le couplage ; la présence de lacunes apparaît ainsi amplifier le couplage AF, conformément aux résultats d'un calcul *ab initio* de Zhuravlev *et al.* [94]. A l'inverse, une sur-oxydation s'avère néfaste, puisque le couplage est alors inférieur à celui observé pour une structure sans défauts, et change même de signe pour les quantités d'oxygène les plus importantes.

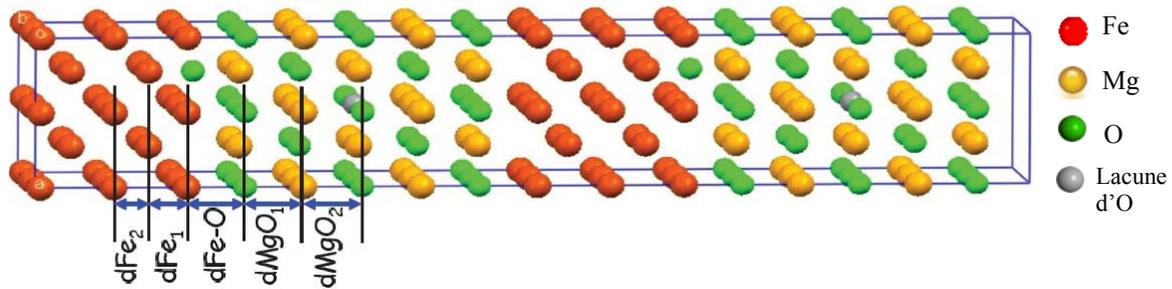


Figure I-20 – Super-cellule élémentaire utilisée dans les calculs d'énergie de Yang *et al.* [95], présentant aussi les positions des lacunes ou O supplémentaires choisies pour étudier leur influence.

Ce type d'approche n'est toutefois pas exempt de défauts. En particulier, la description du système donnée par la cellule élémentaire est un paramètre crucial : un changement des distances atomiques, même très minime, peut avoir des conséquences dramatiques sur l'amplitude et même le signe du couplage. A titre d'exemple, on peut citer la divergence entre les travaux de Zhuravlev *et al.* [94] et ceux de Yang *et al.* [95] : ces auteurs obtiennent ainsi des signes de couplage différents, pour des structures pourtant similaires et ne présentant que quelques dixièmes d'angströms de différences sur les distances interatomiques.

I - 2.2.4 Synthèse

Un modèle de couplage par effet tunnel direct, élaboré dans une approche d'électrons libres tel que le modèle de Bruno, ne permet donc pas de décrire le couplage AF observé dans les JTMs Fe/MgO/Fe ou plus généralement les systèmes {ferromagnétique / isolant / ferromagnétique}. Dans le cadre d'une étude moins restrictive du point de vue des approximations de calcul, il a été montré que l'assistance du processus tunnel par un mécanisme résonant est nécessaire pour expliquer les observations expérimentales. L'origine de ce mécanisme résonant demeure toutefois controversée entre un effet d'états d'impuretés et une caractéristique intrinsèque au système.

De plus, les études *ab initio* menées jusqu'à présent ne permettent pas de trancher en faveur de l'une ou l'autre des deux origines supposées, en raison de résultats contradictoires, et d'une (trop) grande sensibilité vis-à-vis de la description du système.

Enfin, précisons qu'une description plus générale de ce phénomène de couplage d'échange est possible dans un formalisme de type transfert de spin. Ce couplage y est décrit via la valeur à tension nulle de la composante perpendiculaire du torque T_{\perp} , la composante parallèle T_{\parallel} correspondant au transfert de spin (STT¹³). Ce formalisme permet en outre la modélisation théorique de l'effet d'une tension sur ces deux composantes, et donc sur l'intensité et le signe du couplage d'échange. Ainsi, on peut par exemple citer le développement effectué dans le cadre d'une approche d'électrons libres de Manchon *et al.* [96], ou celui de Kalitsov *et al.* [97] se situant dans un modèle de liaisons fortes.

I - 2.3 Couplage biquadratique

Le couplage entre deux couches ferromagnétiques séparées par une couche non-magnétique (métallique ou isolante) n'a pas toujours la forme simple d'un couplage de type Heisenberg (bilinéaire) ; des termes d'ordres supérieur peuvent en effet parfois se manifester. Intrinsèquement d'une part, comme nous l'avons vu au paragraphe I - 2.1.2, ces termes existent dans le développement de l'énergie d'interaction en puissances de $\cos \theta$. D'autre part, des mécanismes résultant de la non-idéalité du système peuvent aussi contribuer à favoriser un alignement non colinéaire des aimantations des deux électrodes. Dans ce cas, l'énergie d'interaction entre les deux couches ferromagnétiques (I-21) doit être complétée, en y ajoutant des termes d'ordre supérieur. Généralement, l'ajout du terme de couplage biquadratique suffit, et on a :

$$E_{\text{int}} = -J_1 \cos \theta - J_2 \cos^2 \theta \quad (\text{I-34})$$

Pour $J_2 < 0$, cette seconde interaction favorise un alignement à 90° des aimantations des deux électrodes.

Il n'existe toutefois pas de théorie générale du couplage biquadratique qui puisse être adoptée pour tous les systèmes expérimentaux, mais plusieurs approches ont été proposées pour décrire l'interaction observée dans des cas particuliers. Nous présenterons donc dans les prochaines sections ces différents modèles, le couplage biquadratique apparaissant soit de manière intrinsèque, soit en résultat de la non-idéalité du système expérimental, via la rugosité de l'interface ou la présence d'impuretés magnétiques dans la couche séparatrice.

De plus amples détails concernant ces différents mécanismes peuvent être trouvés dans les articles de revue de S. O. Demokritov [98] et J. C. Slonczewski [99].

¹³ STT : *Spin Transfert Torque*

I - 2.3.1 Origine intrinsèque

Ce couplage biquadratique intrinsèque apparaît dans l'énergie d'interaction sans intervention de facteur extérieur ou d'imperfections du système considéré, du seul fait de son développement en puissances de $\cos \theta$. Nous avons en donné un exemple plus haut dans une approche d'électrons libres (terme d'ordre $n = 2$ dans l'équation (I-26)).

Divers calculs, comme par exemple ceux des références [84, 88] indiquent que ce couplage biquadratique intrinsèque est de plus faible intensité que le couplage bilinéaire, et que dans le cas d'une couche séparatrice métallique de forte épaisseur, il oscille avec une période deux fois plus courte que J_1 : le couplage biquadratique ne peut donc pas prendre le dessus sur le couplage bilinéaire. Pour des épaisseurs faibles, le calcul d'Erickson *et al.* [84] prévoit toutefois que les nœuds de J_2 sont décalés par rapport à ceux de J_1 , une orientation à 90° des aimantations étant favorisée aux épaisseurs où J_1 s'annule : cela permet alors l'apparition du couplage biquadratique pour des épaisseurs précises de la couche séparatrice.

Enfin, une estimation de la variation en température de J_2 a été proposée par Bruno [88] dans des approximations d'électrons libres et de couche séparatrice épaisse. Il prévoit ainsi une variation en température deux fois plus rapide pour le couplage biquadratique que pour le couplage bilinéaire.

L'intensité de ce couplage biquadratique d'origine intrinsèque est néanmoins souvent trop faible pour rendre compte des observations expérimentales. Il faut dans ce cas faire appel à des mécanismes résultant de la non-idéalité des systèmes réels. En effet, comme cela est discuté dans les deux sections suivantes, l'existence d'une rugosité d'interface ou la présence d'impuretés magnétiques dans la couche séparatrice peuvent également être responsables de l'apparition d'un couplage biquadratique entre les deux électrodes.

I - 2.3.2 Mécanismes liés à la topographie des interfaces

I - 2.3.2.1 Fluctuations d'épaisseur de la couche séparatrice

Ce mécanisme a été initialement proposé par Slonczewski [100] pour expliquer l'apparition d'un couplage biquadratique dans les multicouches Fe/Cr/Fe. Ainsi, dans ce mécanisme, le couplage biquadratique provient des fluctuations spatiales du couplage bilinéaire, causées par des fluctuations de l'épaisseur de la couche séparatrice de Cr.

En effet, dans ces multicouches, le couplage oscille avec une période égale à deux plans atomiques, ce qui signifie qu'il change de signe lorsque l'épaisseur varie d'une monocouche, c'est-à-dire lorsque des terrasses de hauteur monoatomique sont présentes à l'interface Fe/Cr. Si la distance L entre deux bords de terrasses n'est pas trop grande, le couplage entre les

couches et l'interaction d'échange intra-couche se retrouvent en compétition. L'énergie d'interaction est alors minimale lorsque les aimantations des deux couches sont orthogonales.

Dans sa plus simple version, où l'on considère des terrasses de longueur infinie et de largeur L , et où les deux électrodes ferromagnétiques sont identiques et d'épaisseur D (Figure I-21), la théorie prévoit l'expression suivante de J_2 :

$$J_2 = -\frac{4(\Delta J_1)^2 L}{\pi^3 A} \coth\left(\frac{\pi D}{L}\right) \quad (\text{I-35})$$

où A est la constante d'échange du matériau ferromagnétique, et le couplage bilinéaire varie de $\pm \Delta J_1$ au passage d'une marche de hauteur monoatomique : la valeur de ΔJ_1 dépend donc du matériau constituant la couche séparatrice.

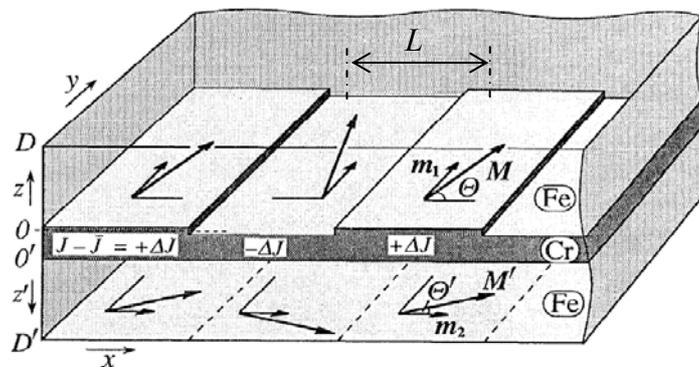


Figure I-21 – Vue en perspective de la section d'une tricouche Fe/Cr/Fe présentant des terrasses à l'interface Fe/Cr. D'après [100].

Il est intéressant d'observer que cette expression (I-35) prévoit une augmentation du couplage biquadratique avec L , soit lorsque les terrasses sont plus espacées et que le système devient plus « parfait » ; cette expression est donc mise en défaut dans la limite de terrasses larges. De plus, pour des valeurs de L supérieures à la largeur d'une paroi, la théorie ne s'applique plus, puisque les changements de signe de J_1 peuvent être accommodés par la formation de domaines magnétiques.

Enfin, dans ce modèle, la dépendance en température du couplage biquadratique est principalement liée à la variation de ΔJ_1 avec la température. Cette variation étant proportionnelle à celle de J_1 , J_2 (T) varie donc de manière proportionnelle à $[J_1$ (T)]².

I - 2.3.2.2 Couplage induit par le champ dipolaire

Dans ce mécanisme, suggéré par Demokritov *et al.* [101], la présence de couplage biquadratique résulte du champ dipolaire créé par la rugosité aux interfaces entre le matériau

ferromagnétique et la couche séparatrice. S'il n'existe pas de corrélation entre les rugosités des deux interfaces, celles-ci peuvent être prises en compte séparément pour estimer l'énergie d'interaction dipolaire.

Le modèle permettant d'établir l'influence de la rugosité sur le couplage biquadratique est défini comme suit. On considère deux électrodes ferromagnétiques d'épaisseur D , constituées du même matériau, et séparées par une couche non magnétique d'épaisseur d . Il est supposé que la surface de l'une des deux électrodes est parfaitement lisse, alors que la deuxième électrode est constituée de terrasses et de vallées infiniment longues, se succédant avec une période L (Figure I-22). Une structure telle que celle de l'interface rugueuse crée un champ dipolaire, dont la projection suivant la direction x s'écrit :

$$H_{dip}(x, z) = -\frac{8\pi M\delta}{L} \sum_{m=1}^{\infty} (-1)^{m-1} \cos\left(\frac{2\pi}{L}(2m-1)x\right) \exp\left(-\frac{2\pi}{L}(2m-1)z\right) \quad (I-36)$$

Dans cette expression, δ et L sont la hauteur et la période de la structure en terrasses, et M l'aimantation du film ferromagnétique.

Le champ dipolaire décrit par la relation (I-36) est colinéaire à l'aimantation du film rugueux, et oscille suivant la direction x ; comme le montre la Figure I-22, le film à interface lisse est alors soumis à un champ alternatif, favorisant localement un alignement P ou AP des aimantations des deux électrodes. Comme pour le mécanisme de fluctuations de Slonczewski exposé précédemment, l'interaction de couplage entre les couches et celle d'échange intra-couche se retrouvent en compétition. L'énergie du système est alors minimisée lorsque le moment moyen du film est orthogonal au champ dipolaire, et donc à l'aimantation de la couche à interface rugueuse, comme le représente la Figure I-22.

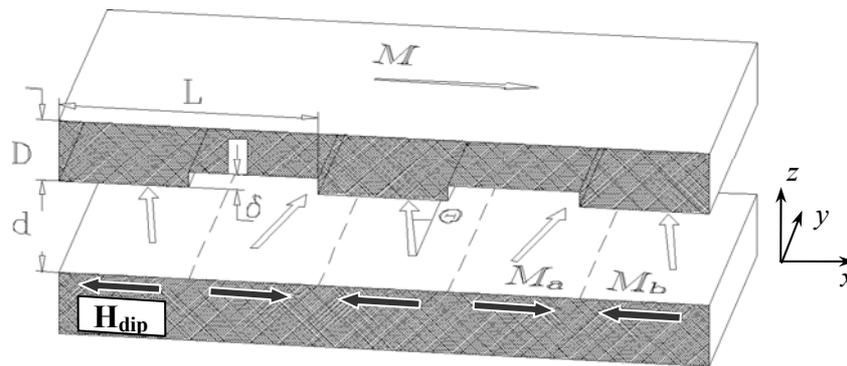


Figure I-22 – Vue en perspective de deux films ferromagnétiques d'épaisseur D séparés par une couche non-magnétique d'épaisseur d . Le film supérieur présente à l'interface des terrasses de hauteur δ avec une période L ; l'interface inférieure est lisse. D'après [98].

En prenant en compte deux contributions indépendantes au couplage biquadratique issues de la rugosité des deux interfaces, la constante de couplage biquadratique intégrée sur l'épaisseur du film ferromagnétique s'écrit, avec A la constante d'échange du matériau ferromagnétique :

$$J_2 = -\frac{M^4 \delta^2 L}{\pi A} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{(-1)^{m-1}}{(2m-1)^3} \exp\left(-\frac{4\pi d}{L}(2m-1)\right) \times \left[1 - \exp\left(-\frac{8\pi D}{L}(2m-1)\right)\right] \quad (\text{I-37})$$

L'intensité du couplage biquadratique dépend donc de la rugosité des interfaces entre les électrodes ferromagnétiques et la couche séparatrice, via la distance caractéristique L et la hauteur des terrasses δ , comme le mécanisme précédent (fluctuations d'épaisseur de la couche séparatrice). Toutefois, contrairement à ce mécanisme de fluctuations, l'intensité du couplage obtenue ici est indépendante du matériau constituant la couche séparatrice.

Les auteurs n'analysent pas la dépendance en température attendue pour ce mécanisme ; cependant, compte tenu de l'expression du couplage (I-37), on peut s'attendre à ce que cette variation en température résulte principalement de celle de l'aimantation, et que la variation en température de la constante d'échange du matériau ferromagnétique A intervienne peu relativement à la variation de M en puissance quatre. Ainsi, $|J_2|$ devrait diminuer de manière assez importante lorsque la température augmente.

I - 2.3.3 Modèle de *loose spins*

Ce modèle a été introduit par Slonczewski [102] pour reproduire les fortes variations en température du couplage biquadratique observées dans certains systèmes (Fe/Ag/Fe par exemple). Il suppose la présence d'impuretés magnétiques situées dans la couche séparatrice ou aux interfaces avec les électrodes, couplant de manière indirecte les deux électrodes ferromagnétiques entre elles.

Ce modèle considère deux électrodes ferromagnétiques identiques et semi-infinies dont les aimantations sont représentées par les vecteurs unitaires \mathbf{m}_1 et \mathbf{m}_2 . Un atome magnétique (ou agrégat d'atomes) de spin S , ou « *loose spin* », se trouve à la position z dans la couche séparatrice (Figure I-23).

Cet atome (ou agrégat d'atomes) est soumis aux champs d'échange $\mathbf{U}_1 = U(z) \mathbf{m}_1$ et $\mathbf{U}_2 = U(w-z) \mathbf{m}_2$. Le potentiel résultant $U(\theta, z)$ peut être exprimé de la façon suivante, θ étant l'angle entre \mathbf{m}_1 et \mathbf{m}_2 :

$$U(\theta, z) = |\mathbf{U}_1 + \mathbf{U}_2| = \sqrt{U_1^2 + U_2^2 + 2U_1U_2 \cos \theta} \quad (\text{I-38})$$

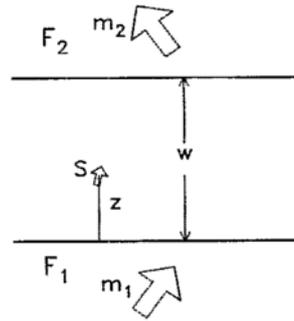


Figure I-23 – Vue en coupe des électrodes semi-infinies F_1 et F_2 séparées par une couche non-magnétique d'épaisseur w . A une distance z de F_1 , dans la couche séparatrice se trouve un spin S isolé ou « loose spin ». D'après [102].

En ne considérant que les excitations thermiques des spins isolés dans la couche non-métallique, et en négligeant celles des spins dans les électrodes, l'énergie libre par *loose spin* s'écrit :

$$f(T, \theta) = -k_B T \ln \left(\frac{\sinh \left[\left(1 + (2S)^{-1} \right) U(\theta, z) / k_B T \right]}{\sinh \left[U(\theta, z) / 2S k_B T \right]} \right) \quad (\text{I-39})$$

Soit N le nombre de *loose spins* supposés identiques par unité de surface. Si les conditions sont telles que seuls J_1 et J_2 contribuent au couplage entre les deux électrodes (pas de termes d'ordre supérieur dans le développement de l'énergie d'interaction), la contribution des spins isolés au couplage biquadratique s'écrit [99] :

$$J_2 = -\frac{1}{2} N \left[f(T, 0) + f(T, \pi) - 2f(T, \pi/2) \right] \quad (\text{I-40})$$

Ces relations (I-39) et (I-40) prévoient une forte diminution du couplage biquadratique $|J_2|$ avec l'augmentation de la température. Elles permettent de plus de reproduire les dépendances en température du couplage biquadratique mesurées, avec un nombre raisonnable de paramètres d'ajustement. Ainsi, généralement, la valeur du spin S est fixée à 1, peu de différences étant attendues pour d'autres valeurs de S [102]. Deux cas particuliers sont alors favorables à l'ajustement de données expérimentales : le cas où les impuretés se trouvent au milieu de la couche séparatrice, et celui où elles sont situées aux interfaces.

Dans le premier cas, les champs d'échange \mathbf{U}_1 et \mathbf{U}_2 auxquels est soumise une impureté magnétique ont la même intensité $|U_1| = |U_2|$; il ne reste alors que deux paramètres d'ajustement à trouver, à savoir la densité surfacique d'impuretés N , et l'intensité $|U_1|$. Dans le second cas, correspondant à $|U_1| \ll |U_2|$, la densité d'impuretés est fixée de telle sorte qu'une couche de *loose spins* se forme à chaque interface (Figure I-24). Comme dans le cas précédent, il ne reste alors que deux paramètres à ajuster, les deux intensités $|U_1|$ et $|U_2|$.

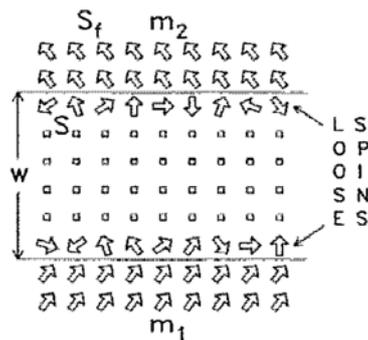


Figure I-24 – Illustration d'un système présentant des loose spins d'interface. La largeur w de la couche séparatrice inclut les deux couches d'impuretés magnétiques aux interfaces. D'après [102].

Notons que les spins isolés sont supposés indépendants dans ce modèle ; il n'est donc théoriquement applicable que pour les faibles concentrations d'impuretés magnétiques. Slonczewski le suppose néanmoins valable dans le cas des *loose spins* interfaciaux, en dépit de leur grande concentration : il considère en effet que le couplage de ces spins isolés aux électrodes est beaucoup plus grand que les interactions entre *loose spins*.

I - 2.3.4 Synthèse

Ainsi, plusieurs origines ont été proposées pour expliquer le couplage biquadratique observé dans de nombreux systèmes. Une origine intrinsèque existe, mais est souvent de trop faible intensité pour rendre compte des observations. D'autres mécanismes ont donc été avancés, prenant en compte l'influence de la non-idéalité des systèmes expérimentaux.

Ainsi, un couplage indirect entre les deux électrodes, via des impuretés magnétiques (ou *loose spins*) dans la couche séparatrice ou aux interfaces, a été considéré. La rugosité de l'interface a également été prise en compte à travers deux mécanismes, ayant pour point commun d'engendrer localement une compétition entre des couplages bilinéaires F et AF . Ainsi, par extension, toute frustration du couplage bilinéaire peut engendrer l'apparition de couplage biquadratique, même si les couplages F et AF ont des origines différentes, comme par exemple dans le cas d'un couplage bilinéaire AF en compétition avec un couplage ferromagnétique direct par des *pinholes*.

I - 2.4 Observations expérimentales pour une couche séparatrice non-métallique

Nous abordons dans cette dernière partie l'aspect expérimental du couplage entre deux électrodes ferromagnétiques séparées par une couche non-magnétique et non-métallique. Les premières observations de couplage magnétique dans ce type de système sont rapportées en 1992 et concernent les multicouches Fe/Si-amorphe/Fe [103]. Au début des années 2000, des

observations de couplage bilinéaire dans des systèmes à ordre cristallin plus important sont rapportées. Ainsi, un couplage ferromagnétique est mentionné dans des multicouches à barrière de ZnS cristallisé par Dinia *et al.* [104] et Fix *et al.* [105]; un couplage antiferromagnétique est également observé dans des multicouches épitaxiées, d'abord par Gareev *et al.* dans des empilements Fe/Si/Fe [106], puis par Faure-Vincent *et al.* dans le système Fe/MgO/Fe [107].

De nombreux travaux ont eu lieu suite à ces mises en évidence, explorant les divers aspects du couplage entre les deux électrodes ferromagnétiques : dépendance avec l'épaisseur de la barrière, évolution en température, mise en évidence et caractérisation d'un éventuel couplage biquadratique...

Nous exposerons donc rapidement dans une première partie les principaux résultats obtenus avec une couche séparatrice semi-conductrice, en distinguant les cas d'une couche amorphe ou épitaxiée. Nous présenterons ensuite de manière plus exhaustive les travaux menés sur les systèmes à barrière de MgO en particulier les JTMs Fe/MgO/Fe épitaxiées.

I - 2.4.1 Couplage à travers une couche semi-conductrice

I - 2.4.1.1 Semi-conducteur amorphe

Comme nous l'avons mentionné plus haut, une interaction magnétique a été mise en évidence entre les deux couches de Fe dans des systèmes Fe/Si-amorphe/Fe [103]. Ce couplage présente une variation oscillante avec l'épaisseur de Si, comme dans le cas d'une couche séparatrice métallique ; de plus, dans la gamme d'épaisseurs de Si où un signe antiferromagnétique est observé, ce couplage est de très faible intensité (de l'ordre de quelques 10^{-3} erg.cm⁻²) [103, 108, 109]. La variation en température du couplage bilinéaire observée dans ces multicouches est en revanche assez atypique, puisque l'intensité de couplage $|J_1|$ augmente très fortement avec la température [109].

Un comportement similaire, avec notamment cette caractéristique d'un couplage thermiquement activé, est également observé pour d'autres systèmes à électrodes de fer et barrière semi-conductrice amorphe comme par exemple Fe/Ge-amorphe/Fe [110] ou Fe/ZnSe-amorphe/Fe [111] (Figure I-25).

La présence d'un couplage biquadratique dans ces systèmes a également été mentionnée ; cette seconde interaction est notamment présente à basse température, son amplitude diminuant avec l'augmentation de la température [112].

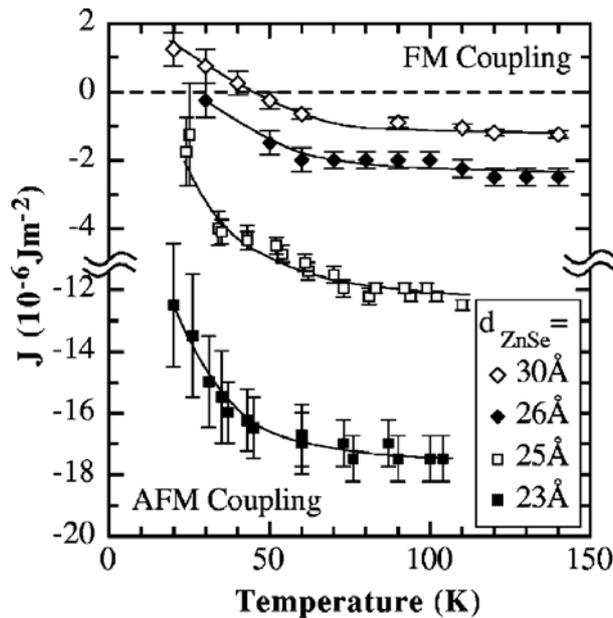


Figure I-25 – Intensité de couplage bilinéaire (noté J) dans des multicouches $\text{Fe}/\text{ZnSe-amorphe}$ (d_{ZnSe})/ Fe en fonction de la température, pour différentes épaisseurs de ZnSe d_{ZnSe} . D'après [111].

Note : $1 \text{ erg.cm}^{-2} = 10^{-3} \text{ J.m}^{-2}$.

I - 2.4.1.2 Silicium épitaxié

Les caractéristiques du couplage bilinéaire sont radicalement différentes lorsque la couche semi-conductrice est épitaxiée. Il a en effet été montré que dans le cas des systèmes $\text{Fe}/\text{Si}/\text{Fe}$ épitaxiés, le couplage est antiferromagnétique et a une intensité beaucoup plus grande que dans le cas d'une couche amorphe (quelques erg.cm^{-2}) [106, 113]. De plus, il décroît de manière exponentielle avec l'épaisseur de silicium (Figure I-26 (a)). L'analyse de Bürgler *et al.* [114] montre cependant que la relation de Slonczewski ne permet pas un ajustement satisfaisant de la variation du couplage avec l'épaisseur : les valeurs obtenues pour la hauteur de barrière et la masse effective sont en effet physiquement aberrantes (une barrière de plusieurs keV de hauteur et une masse effective correspondant à 10^5 fois la masse de l'électron !).

La dépendance en température du couplage dans ces systèmes a également été étudiée. Ainsi, Bürgler *et al.* [114] et Strijkers *et al.* [115] observent une diminution de $|J_1|$ lorsque la température augmente (Figure I-26 (b)), sur une large gamme d'épaisseurs de Si. Ce comportement est en désaccord avec la prédiction de Bruno dans le cas d'une couche isolante (courbe en traits pleins sur la Figure I-26 (b)), le couplage étant alors supposé augmenter avec la température (§ I - 2.2.1).

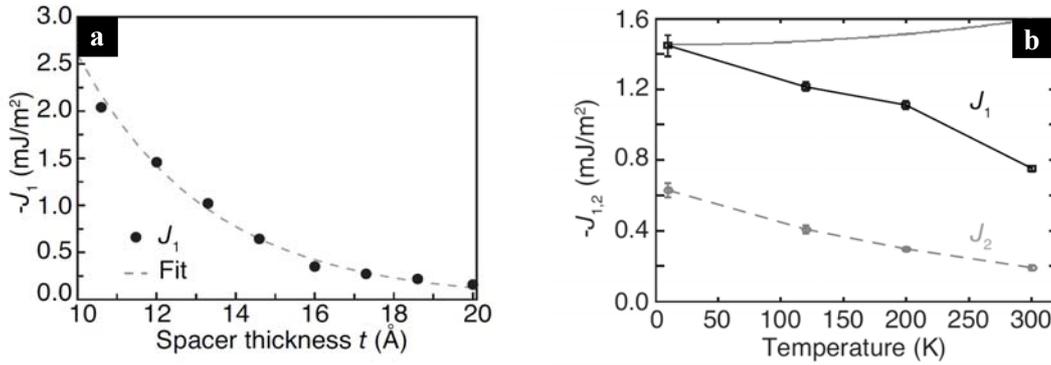


Figure I-26 – (a) Evolution du couplage bilinéaire J_1 avec l'épaisseur t de Si dans des systèmes $\text{Fe/Si}(t)/\text{Fe}$ épitaxiés [113] ; (b) Constantes de couplage bilinéaire J_1 et biquadratique J_2 en fonction de la température, pour des échantillons de structure $\text{Fe/Si}(10 \text{\AA})/\text{Fe}$. La ligne continue correspond à la variation en température du couplage bilinéaire prédite par le modèle de Bruno pour les isolants (expressions (I-30) à (I-32)) [114].

Enfin, on peut aussi noter la présence d'un couplage biquadratique J_2 important, puisque du même ordre de grandeur que J_1 [114, 115]. Ce couplage décroît faiblement avec l'épaisseur de Si, mais présente une décroissance marquée lorsque la température augmente (Figure I-26 (b) et [115]). Du fait de sa forte variation en température, ce couplage biquadratique est attribué par Strijkers *et al.* [115] au mécanisme de *loose spins* introduit par Slonczewski (§ I - 2.3.3).

I - 2.4.2 Couplage à travers une barrière de MgO

Nous nous intéressons à présent aux caractéristiques des interactions bilinéaire et biquadratique observées dans les multicouches Fe/MgO/Fe . Nous présenterons dans un premier temps les variations du couplage AF en fonction de l'épaisseur de MgO, puis en fonction de la température. Nous aborderons ensuite les observations concernant le couplage biquadratique qui accompagne généralement ce couplage bilinéaire antiferromagnétique. Enfin, nous terminerons en considérant l'influence des conditions d'oxydation des interfaces sur ces deux interactions.

I - 2.4.2.1 Evolution de J_1 avec l'épaisseur de l'isolant

La variation du couplage bilinéaire en fonction de l'épaisseur de la couche de MgO a été étudiée par Faure-Vincent *et al.* [107] (Figure I-27) et Katayama *et al.* [116]. Qualitativement, ces deux études rapportent un comportement identique lorsque l'épaisseur de l'isolant augmente. Ainsi, un couplage AF est obtenu entre 5 et 8 \AA , son intensité $|J|$ augmentant exponentiellement lorsque l'épaisseur de MgO diminue (région (2) sur la Figure I-27). A très faible épaisseur (région (1)), le couplage décroît, du fait de la présence de *pinholes* dans l'isolant, favorisant un couplage direct ferromagnétique. Enfin, au-delà de 8 \AA (région (3)), le

couplage change de signe et devient ferromagnétique. Faure-Vincent *et al.* expliquent ce changement de signe et la persistance du couplage F pour de plus fortes épaisseurs par un couplage ferromagnétique de type peau d'orange [117], lié à la rugosité corrélée des deux interfaces Fe/MgO.

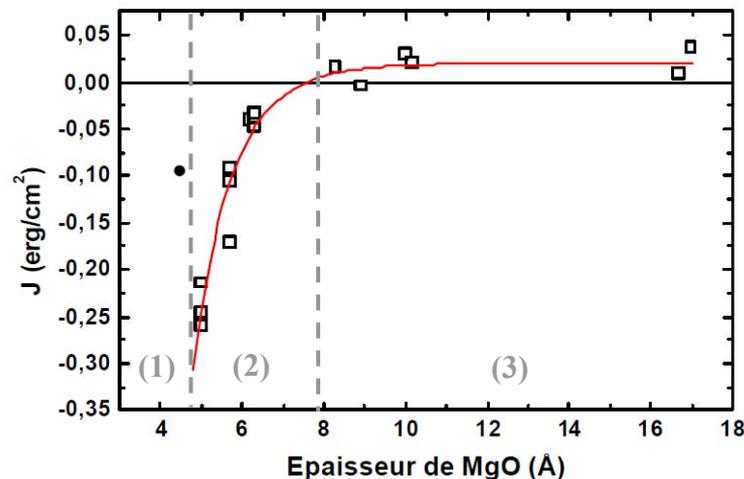


Figure I-27 – Couplage bilinéaire J mesuré dans un système Fe/MgO/Fe (points), et son ajustement à l'aide de la formule de Slonczewski (relation (I-33)) (trait) ; les paramètres d'ajustement sont : une hauteur de barrière $(U-E_F) = 1 \text{ eV}$, une masse $m = 0.4 m_{\text{électron}}$, $k_{\uparrow} = 1.09 \text{ \AA}^{-1}$, $k_{\downarrow} = 0.43 \text{ \AA}^{-1}$. L'intensité du couplage ferromagnétique de Néel se manifestant aux plus fortes épaisseurs a été évaluée à 0.02 erg.cm^{-2} . D'après [1].

Concernant la région où le couplage AF est observé (région (2)), Faure-Vincent *et al.* [107] parviennent à reproduire la variation en épaisseur du couplage grâce au modèle développé par Slonczewski [9] (ligne continue sur la Figure I-27). Ils attribuent de ce fait leurs observations à un couplage d'échange par effet tunnel à travers le MgO. Or, en réalité, dans cette gamme d'épaisseurs, la formule de Slonczewski, dérivée dans une approximation continue, ne s'applique pas (cf. I - 2.2.2) ; un mécanisme résonant doit alors contribuer pour expliquer le signe AF observé [93]. S'appuyant sur cette dernière étude, Katayama *et al.* [116] interprètent donc leurs observations comme résultant d'un processus tunnel assisté d'un mécanisme résonant, via des lacunes d'oxygène dans la barrière.

Enfin, on peut signaler certaines différences entre les deux études. Ainsi, Katayama *et al.* [116] rapportent un couplage dont l'intensité est un ordre de grandeur en-dessous de celle observée par Faure-Vincent *et al.* De plus, à forte épaisseur, le couplage F disparaît dans le cas de l'étude japonaise, alors qu'il persiste dans l'autre. Ces légères différences sont très certainement liées à des conditions d'élaboration différentes, la seconde électrode de Fe étant déposée à plus haute température dans l'étude de Katayama *et al.*

I - 2.4.2.2 Evolution de J_1 avec la température

Peu d'études existent concernant la dépendance en température du couplage bilinéaire ; à notre connaissance, seules deux études indépendantes sont en effet parues. La première est une analyse qualitative par résonance ferromagnétique (ou FMR¹⁴) de Popova *et al.* [118, 119]. Des échantillons Fe/MgO/Fe présentant un couplage AF ont été étudiés par FMR entre 5 K et 300 K ; l'intensité de couplage est alors déduite à partir d'un lien empirique avec d'une part l'écart entre les modes optiques et acoustiques, et d'autre part le rapport des intensités de ces deux modes. Popova *et al.* [118, 119] obtiennent finalement une intensité croissante du couplage AF avec l'augmentation de la température, ce qui est qualitativement en accord avec les prédictions de Bruno pour le couplage à travers une couche isolante (I - 2.2.1). Toutefois, l'intensité de couplage bilinéaire $|J_1|$, de même que l'amplitude de sa variation dans la gamme [5 K ; 300 K] ne sont pas quantifiées dans cette étude, et aucune mesure magnétique directe par magnétométrie ne vient appuyer ces résultats.

La seconde mention dans la littérature d'une étude en température du couplage bilinéaire dans des systèmes Fe/MgO/Fe(001) figure dans les travaux de Chiang *et al.* [120]. Grâce à des mesures par effet Kerr longitudinal (MOKE¹⁵), ces auteurs observent également une augmentation de l'intensité de couplage bilinéaire AF lorsque la température augmente (Figure I-28, cercles évidés).

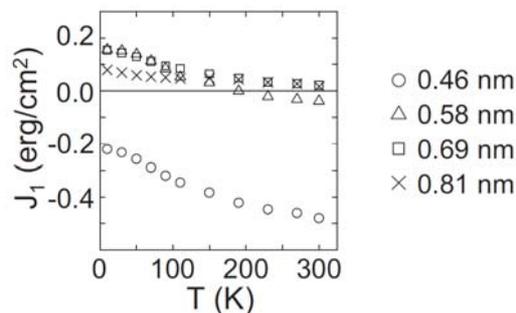


Figure I-28 – Dépendance en température du couplage bilinéaire J_1 pour un échantillon Fe/MgO(t_{MgO})/Fe, pour différentes valeurs de l'épaisseur de MgO t_{MgO} . D'après [120].

La variation en température du couplage AF observée dans les empilements Fe/MgO/Fe épitaxiés semble donc opposée à celle relevée dans les tricouches épitaxiées Fe/Si/Fe.

¹⁴ FMR : *FerroMagnetic Resonance*.

¹⁵ MOKE : *Magneto-Optical Kerr Effect*

I - 2.4.2.3 Couplage biquadratique

Dans les systèmes Fe/MgO/Fe épitaxiés, les cycles d'aimantation présentent souvent un palier entre les états saturé (aimantations parallèles) et antiferromagnétique (aimantations antiparallèles), et où les aimantations des deux électrodes sont orientées à 90° l'une de l'autre [119, 121, 122] (encart (b) sur la Figure I-29). La largeur de ce plateau a pu être modulée par des modifications structurales, induites par irradiation d'ions légers (N^+) [121].

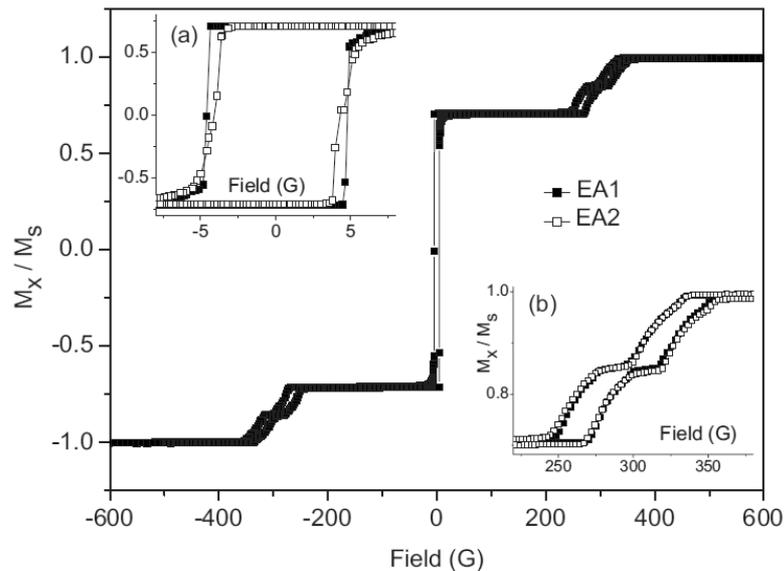


Figure I-29 – Cycle d'aimantation mesuré à température ambiante suivant un axe de facile aimantation du fer. Les encarts sont des agrandissements (a) à faible champ, et (b) au niveau du renversement de la couche douce. D'après [122].

Bellouard *et al.* [122] se sont intéressés à l'origine de cet état, et ont établi, grâce à une étude combinant des mesures à température ambiante de magnétométrie et de diffusion de neutrons polarisés (PNR¹⁶) avec un modèle analytique, que l'orientation à 90° des aimantations résultait principalement de l'anisotropie d'ordre quatre du fer. L'intensité du couplage biquadratique ne représente en effet que 5 à 10% de l'intensité du couplage bilinéaire dans leurs mesures à 300 K, et peut ainsi être négligée.

I - 2.4.2.4 Influence de l'état d'oxydation des interfaces

Deux études parues récemment mentionnent la présence d'un couplage AF dans des systèmes épitaxiés à électrodes constituées d'oxydes de fer : $Fe_3O_4/MgO/Fe$ et $Fe_2O_3/MgO/Fe$ [123] ou $Fe_3O_4/MgO/Fe_3O_4$ [124]. Le couplage y atteint même une valeur maximale de $|J_1|$

¹⁶ PNR : Polarized Neutron Reflectometry.

supérieure à 1.2 erg.cm^{-2} : il serait ainsi plus important dans ces systèmes que dans les jonctions Fe/MgO/Fe, où la valeur maximale est de l'ordre de 0.35 à 0.45 erg.cm^{-2} [120, 122].

Une augmentation du couplage AF a également été observée en présence d'oxydation interfaciale dans des JTM's Fe/MgO/Fe par F. Bonell [2]. Ainsi, la présence d'une couche d'oxygène ordonnée à l'interface inférieure s'avère avoir un effet spectaculaire sur le couplage AF, qui est presque un ordre de grandeur supérieur à celui observé pour un échantillon sans oxygène élaboré dans les mêmes conditions.

Enfin, l'état d'oxydation de l'interface inférieure a également une influence importante sur le couplage biquadratique : Chiang *et al.* [120] ont en effet observé que dans des jonctions à interface inférieure oxydée, le couplage biquadratique était renforcé. De plus, il présente alors une forte variation en température, augmentant beaucoup lorsque la température diminue (Figure I-30).

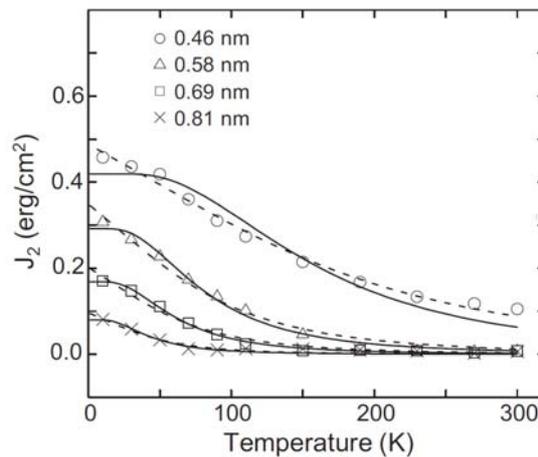


Figure I-30 – Dépendance en température du couplage biquadratique J_2 pour un échantillon Fe/MgO(t_{MgO})/Fe, pour différentes valeurs de l'épaisseur de MgO t_{MgO} . D'après [120].

L'observation de cette forte variation en température conduit d'ailleurs Chiang *et al.* à la conclusion que le mécanisme de *loose spins* est à l'origine du couplage biquadratique observé.

I - 3 Contexte de la thèse, problématique et plan

Dans cette dernière section, nous présentons les interrogations constituant le point de départ de ce travail de thèse. Nous rappelons tout d'abord en quelques lignes le contexte dans lequel ce travail s'inscrit, cela servant de base aux problématiques traitées dans ce manuscrit. Nous présentons ensuite les stratégies envisagées pour répondre à ce questionnement et enfin,

les méthodes expérimentales mises en œuvre durant la thèse, chacune étant au centre d'un chapitre de ce manuscrit.

I - 3.1 Contexte

Pour résumer brièvement ce qui a été écrit depuis le début de ce chapitre, nous retiendrons que dans les multicouches épitaxiées Fe/MgO/Fe(001), deux régimes de propriétés peuvent être distingués, suivant l'épaisseur de la couche de MgO. Ainsi, aux fortes épaisseurs de barrière (supérieures à dix plans atomiques), le système présente des propriétés magnétorésistives intéressantes (§ I - 1), alors qu'aux fines épaisseurs (de trois à cinq plans), une interaction antiferromagnétique se manifeste entre les deux électrodes de Fe (§ I - 2).

Dans la limite des fortes épaisseurs de barrière, dénommée régime asymptotique, des études théoriques se plaçant dans le cadre d'empilements parfaits et d'un transport tunnel cohérent à travers la barrière (conservant le spin, la symétrie, le vecteur d'onde $k_{//}$ des électrons) ont été menées. Elles prédisent un transport multi-canal, chaque canal étant associé à un spin et une symétrie, et possédant un taux d'atténuation propre dans la barrière (§ I - 1.2). Des signatures de ces effets de filtrage en symétrie ont été relevées expérimentalement dans des systèmes Fe/MgO/Fe monocristallins. Toutefois, une des conséquences attendues du filtrage en symétrie est l'obtention de fortes valeurs de magnétorésistance. Or, le record de TMR a été observé pour des JTMs CoFeB/MgO/CoFeB à texture (001) élaborées par pulvérisation cathodique, les systèmes Fe/MgO/Fe de haute qualité cristallographique présentant de plus faibles taux de TMR (§ I - 1.2.6). Cette observation a conduit la communauté scientifique à s'interroger quant au rôle des défauts et des contaminants sur les propriétés des JTMs. Ainsi, seules les dislocations paraissent avoir un impact négatif sur la TMR, la présence de contaminants aux interfaces tels que l'oxygène ou le carbone s'avérant avoir une signature sur la réponse en tension des JTMs mais très peu d'effet sur la valeur de la magnétorésistance (§ I - 1.3). Enfin, l'effet d'une température non nulle sur les caractéristiques des jonctions a été étudié, et plusieurs mécanismes ont été proposés et superposés. Cependant, aucune approche de la variation en température des caractéristiques des JTMs ne s'avère vraiment universelle (§ I - 1.4).

Concernant les systèmes à barrière de faible épaisseur, l'interaction antiferromagnétique observée entre les deux électrodes de fer a été attribuée à un transport tunnel assisté d'un mécanisme résonant, dont l'origine ne fait cependant toujours pas consensus. Il pourrait ainsi résulter de la présence de lacunes d'oxygène dans la barrière, ou bien de la contribution d'un état résonant d'interface, ou IRS, se développant à l'interface entre le Fe et le MgO (§ I - 2.2). Ce couplage bilinéaire est souvent accompagné d'une interaction biquadratique, favorisant l'orientation à 90° des aimantations des deux électrodes. Il a aussi été montré que l'état

d'oxydation des interfaces joue un rôle important, l'intensité de couplage étant fortement accrue en présence d'oxygène interfacial (§ I - 2.4.2.4). Enfin, les études en température de ces interactions dans les systèmes Fe/MgO/Fe sont rares, et les résultats sont par ailleurs discordants avec les observations rapportées sur les systèmes Fe/Si/Fe épitaxiés (§ I - 2.4.2.2). De plus, aucune modélisation de la variation thermique du couplage AF n'a été proposée à ce jour ; les seules approches théoriques existant concernent l'évolution en température du terme biquadratique (§ I - 2.3).

Jusqu'à présent, ces deux régimes de propriétés n'ont été étudiés que de manière indépendante ; un des objectifs de cette thèse est d'essayer de les relier. La stratégie générale adoptée au cours de la thèse consiste à effectuer des modifications contrôlées de la structure ou de la chimie des dispositifs dans leur volume et/ou à leurs interfaces, afin d'en cerner l'impact sur leurs propriétés. L'effet de certaines modifications sera bien entendu étudié dans les deux régimes de propriétés, afin d'établir la corrélation recherchée entre propriétés de transport et de couplage.

I - 3.2 Axes d'étude

La compréhension des mécanismes régissant les propriétés des JTMs épitaxiées Fe/MgO/Fe(001) demeure ainsi incomplète dans les deux régimes d'épaisseur de barrière.

D'une part, dans le régime asymptotique, le rôle de la qualité structurale est plus que jamais ouvert, les performances des JTMs texturées élaborées par pulvérisation cathodique excédant celles des jonctions monocristallines élaborées par MBE. Nous nous intéresserons donc à l'influence de la structure cristalline en volume, permise par une croissance hybride MBE-pulvérisation cathodique. Nous étudierons ainsi des systèmes dits hybrides, constitués d'une électrode de CoFeB déposée sur un empilement Fe/MgO monocristallin, puis les propriétés de JTMs Fe/MgO/Fe à texture (001). Nous agirons également de manière sélective sur la topographie de l'interface inférieure, sans passer par la voie déjà explorée de l'introduction de contaminants, mais en introduisant de manière contrôlée une rugosité artificielle à l'échelle atomique.

D'autre part, l'origine du couplage AF dans le régime des faibles épaisseurs de MgO n'est pas complètement élucidée, le mécanisme résonant n'étant pas identifié de manière non ambiguë. Nous nous intéresserons donc particulièrement à l'influence des interfaces, dans le but de cerner un rôle éventuel de l'IRS du fer dans l'interaction entre les deux électrodes. Les modifications sur les interfaces que nous envisagerons seront de nature chimique ou structurale. Les modifications chimiques auront lieu par le biais d'une contamination au carbone. Cet élément a en effet un fort impact sur la structure électronique d'interface, à l'instar de l'oxygène, comme en témoignent les caractéristiques de transport des JTMs à

barrière épaisses : il est donc légitime de supposer que comme l'O, le C influence également l'interaction AF dans les systèmes à barrière fine. Enfin, les modifications structurales seront permises par l'introduction contrôlée d'une rugosité artificielle à l'échelle d'une hauteur atomique, sachant que cette rugosité est supposée avoir un effet important sur le profil en énergie de l'IRS du fer, comme l'ont montré Bischoff *et al.* [125].

I - 3.3 Organisation du manuscrit

Ces différents aspects seront donc développés dans la suite du présent manuscrit, qui est organisée en trois autres chapitres.

Le Chapitre II développe des aspects concernant la croissance et l'élaboration des systèmes étudiés, dont la morphologie est modulée par plusieurs voies : la modification chimique et structurale de l'interface inférieure, l'utilisation d'une nouvelle électrode supérieure (CoFeB), et la modulation de la structure cristalline de l'empilement en élaborant des JTMs à texture (001). L'ensemble des résultats issus de la caractérisation *in situ* et *ex situ* des empilements élaborés et étudiés sont ainsi exposés dans ce chapitre.

Le Chapitre III est focalisé sur l'étude de jonctions tunnel magnétiques à barrières épaisses. Les caractéristiques de transport polarisé en spin et en symétrie de ces JTMs sont étudiées par des mesures magnéto-électriques et de spectroscopie tunnel de type IETS (*Inelastic Electron Tunneling Spectroscopy*), dans des gammes de tension et de température variables. Ces mesures permettent une analyse fine de l'influence de la structure électronique des électrodes et interfaces sur les effets de filtrage, et ouvrent ainsi des pistes originales pour l'amélioration de la TMR, via la maîtrise de la structure chimique de l'interface électrode-barrière.

Enfin, le Chapitre IV expose l'étude par magnétométrie des interactions magnétiques, et en particulier du couplage antiferromagnétique, dans des JTMs à barrières fines. Une analyse comparative concernant la dépendance en température de l'intensité du couplage, dans les systèmes classiques Fe/MgO/Fe et des systèmes à interface modulée d'un point de vue structural ou chimique, permet d'identifier et d'étudier les mécanismes impliqués dans le couplage AF observé.

Chapitre II - Elaboration de jonctions à morphologie modulée

Tous les échantillons monocristallins étudiés au cours de cette thèse ont été élaborés par épitaxie par jets moléculaires (MBE¹), dans une chambre de dépôt munie pour l'analyse en cours de croissance d'un canon à électrons de haute énergie ; une description détaillée du bâti est disponible dans la thèse de Jérôme Faure-Vincent [1]. Cette chambre d'épitaxie est par ailleurs couplée à un ensemble de chambres dédiées à l'analyse ou à l'élaboration d'échantillons, en particulier à un bâti de pulvérisation cathodique, le complexe étant dénommé MPGA, pour MBE, Pulvérisation, Gravure, Analyse. Ce complexe a ainsi permis l'élaboration d'échantillons mixtes, élaborés successivement par MBE et pulvérisation cathodique.

Parmi les techniques d'analyses disponibles dans ce complexe, la diffraction par réflexion d'électrons de haute énergie ou RHEED² est la technique d'analyse privilégiée au cours de cette thèse ; nous l'utiliserons dans ce chapitre aussi bien pour déterminer la structure cristallographique des couches que pour suivre et caractériser leur croissance. La littérature fourmille de descriptions très complètes quant à son principe de fonctionnement ; en particulier, un chapitre entier y est consacré dans l'ouvrage de S. Andrieu et P. Muller [126]. Des descriptions plus concises peuvent par exemple être trouvées dans les thèses [1, 127].

Dans une première partie de ce chapitre, nous rappellerons les conditions d'élaboration d'échantillons monocristallins, et nous caractériserons les modifications de l'interface Fe/MgO effectuées par voie chimique ou structurale. Une seconde partie sera dédiée à l'étude d'un système hybride, où une électrode amorphe de CoFeB est déposée sur un empilement monocristallin constitué d'une électrode de Fe et d'une barrière de MgO. La dernière section sera consacrée à la croissance d'un système Fe/MgO/Fe à texture (001).

¹ MBE : abréviation anglo-saxonne de *Molecular Beam Epitaxy*

² RHEED : *Reflective High Energy Electron Diffraction*

II - 1 Jonctions Fe/MgO/Fe(001) à interface inférieure modulée

Afin de moduler l'interface Fe/MgO inférieure dans des jonctions tunnel magnétiques de type Fe/MgO/Fe, deux voies ont été suivies. La première est la modification de sa nature chimique par la présence d'atomes de carbone à l'interface ; la seconde est une modulation de sa topographie, par l'insertion d'îlots de fer de hauteur monoatomique.

Nous décrirons dans une première partie la croissance de la première électrode de Fe, où nous distinguerons la préparation d'échantillons à interface MgO/Fe avec ou sans carbone. Nous introduirons ensuite, par souci didactique, différentes notions de croissance et d'analyse de clichés de diffraction RHEED. Nous présenterons également la procédure expérimentale que nous avons suivie, afin caractériser dans les deux dernières sections, les îlots de Fe déposés sur l'électrode inférieure de Fe, puis la croissance de la barrière de MgO sur des surfaces de morphologies différentes.

II - 1.1 Elaboration de l'électrode inférieure

L'électrode de Fe inférieure peut présenter une surface soit exempte de contamination ou « propre », soit être « dopée-carbone ». La préparation de couches de Fe présentant ces deux types de surfaces est similaire, et ne diffère que par la présence (ou l'absence) d'une couche de piégeage du C. Nous décrirons dans un premier paragraphe la procédure d'élaboration en vue de l'obtention d'échantillons à interface « propre », et présenterons par la suite les caractéristiques spécifiques aux échantillons « dopés-carbone ».

II - 1.1.1 Préparation d'une surface de Fe lisse et non contaminée

Tous les échantillons épitaxiés sont élaborés sur des substrats de MgO monocristallin, orientés suivant la direction (001). Après introduction dans la chambre d'épitaxie, le substrat est chauffé à 650°C, afin de dégazer les contaminants adsorbés en surface. Au cours du refroidissement, à une température d'environ 450°C, une couche de 10 nm de MgO est épitaxiée. Cette couche permet en particulier de prévenir la diffusion non désirée du carbone résiduel lors des recuits, et sa ségrégation à la surface de la couche de fer déposée ultérieurement.

Une couche de Fe de 50 nm est ensuite déposée, à une température inférieure à 100°C, et recuite durant 20 minutes à 500°C, afin de lisser sa surface. A l'issue du recuit, la figure de diffraction RHEED présente des raies intenses et fines (voir par exemple la Figure II-1 (a)), témoignant d'une surface plane, au moins à l'échelle de la longueur de cohérence du faisceau d'électrons RHEED (de l'ordre de 100 Å). De précédentes mesures par microscopie à force atomique [1] et à effet tunnel [2] ont quantifié la planéité de la surface de telles couches de

Fe : celles-ci présentent ainsi de larges terrasses, dont les dimensions sont typiquement de l'ordre de 50 à 100 nm, et qui sont délimitées par des marches de hauteur monoatomique.

Signalons que l'obtention de surfaces constituées de terrasses les plus larges possible, est nécessaire en vue de caractériser des îlots de Fe déposés en surface et dont la taille est très inférieure à celle des terrasses. Enfin, cette procédure de préparation de la première électrode de Fe est celle employée dans tous les échantillons monocristallins, à l'exception des échantillons contenant du carbone à l'interface Fe/MgO, comme nous allons le voir dans la section suivante.

II - 1.1.2 Préparation d'une électrode de fer dopée-carbone

Sans la présence de la couche tampon de MgO décrite précédemment, le carbone résiduel du substrat est libre de diffuser à travers la couche de Fe lors de son recuit, et de ségréger à la surface. Si la concentration du C interfacial n'est pas mesurable, elle est toutefois contrôlable grâce aux clichés de diffraction RHEED. Selon la concentration de carbone à la surface, celui-ci présente en effet des caractéristiques très différentes. Ainsi, la Figure II-1 montre des clichés de diffraction enregistrés pour l'azimut [11] du Fe, en l'absence de contaminant (Figure II-1 (a)) et pour différentes quantités de C présentes en surface (Figure II-1 (b) et (c)).

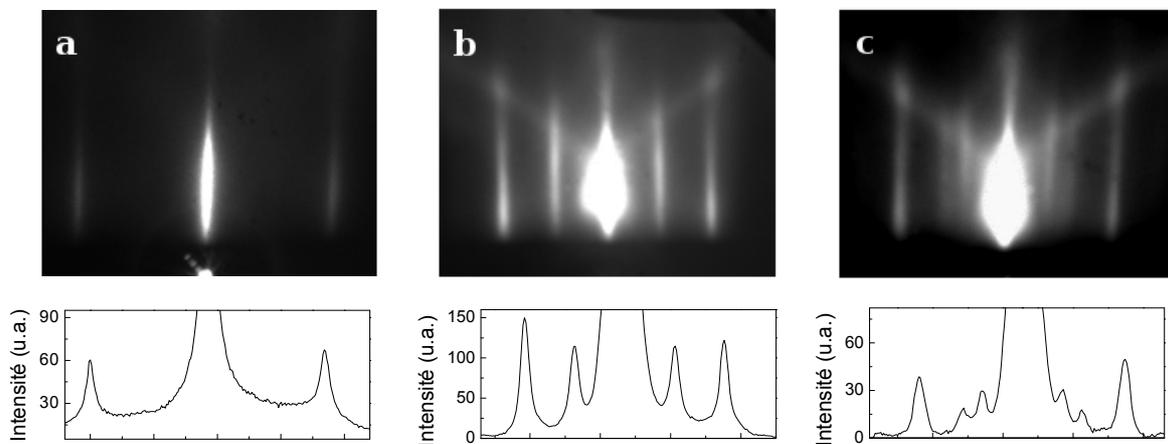


Figure II-1 – Clichés RHEED de la surface Fe(001) dans l'azimut [11], et profils d'intensité pour différentes surfaces de Fe : (a) propre, ou présentant une reconstruction de surface : (b) de type $c(2 \times 2)$, et (c) atypique.

Ainsi, comme on peut le voir sur les clichés (b) et (c), en présence de carbone, des raies additionnelles apparaissent entre les raies de diffraction typiques du Fe (cliché (a)). Ces raies additionnelles proviennent de reconstructions de surface engendrées par la présence du carbone, c'est-à-dire d'arrangements ordonnés d'atomes de C à la surface de la couche de Fe. Le cliché (b) correspond à une reconstruction de surface de type $c(2 \times 2)$, sur laquelle nous reviendrons plus bas. Le cliché (c) présente une reconstruction de surface plus atypique, les

raies additionnelles visibles étant situées approximativement en $(2/5, 3/5)$. Ce cliché (c) a été obtenu avec un substrat de MgO de 1×3 cm, d'une provenance différente de celui utilisé pour le cliché (b), dont les dimensions étaient par ailleurs plus isotropes (2×2 cm). On peut également signaler qu'un autre type de reconstruction de surface atypique a été précédemment mentionné par J. Faure-Vincent [1], avec des raies situées en $(1/3, 2/3)$.

Ces clichés (b) et (c) montrent une ségrégation de carbone conduisant à des concentrations à la surface du Fe différentes, et ce, bien que la température affichée lors du recuit de la couche de Fe soit identique. La ségrégation du carbone est en réalité très sensible à la température de recuit effective de l'échantillon et à son homogénéité, qui dépendent en particulier de la taille et du mode de fixation du substrat. Pour assurer la reproductibilité des résultats, tous les échantillons dopés-carbone ont donc été réalisés dans des conditions rigoureusement similaires, en conservant une même dimension de substrat, et les mêmes attaches de fixation sur le porte-échantillon. Un cliché de diffraction RHEED de type (b) (reconstruction de surface $c(2 \times 2)$), avec des raies en $1/2$ très intenses, a ainsi été observé pour tous les échantillons étudiés. De plus, l'utilisation d'un cache *in situ*, positionné de façon identique pour tous les échantillons pendant le dépôt de la couche tampon de MgO, permet l'obtention de deux zones avec et sans carbone sur un même substrat, tout en maintenant constants les autres paramètres de croissance.

La présence de carbone en surface avec une reconstruction $c(2 \times 2)$ a une autre conséquence notable sur les clichés de diffraction dans l'azimut [11]. Ainsi, comme on peut le voir sur la Figure II-2 représentant des profils de l'intensité perpendiculairement aux raies de diffraction, les raies de diffraction d'ordre ± 1 sont plus espacées en présence de carbone (Figure II-2, en haut) que dans le cas d'une surface non contaminée (en bas). L'espacement entre les raies est ainsi 1.2% plus grand en présence de carbone. Cette observation traduit le fait que la présence de carbone engendre une légère contraction du paramètre de maille en surface, qui est inversement proportionnel à cette distance entre raies de diffraction (cf. § II - 1.2).

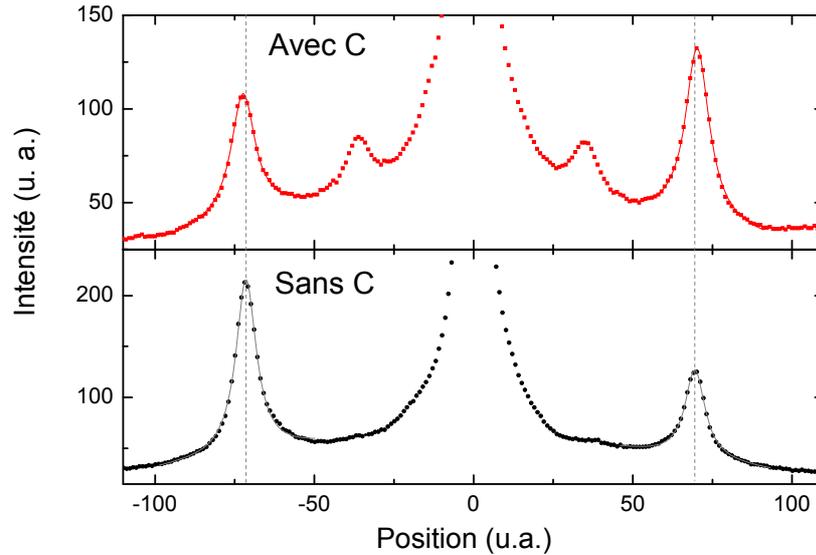


Figure II-2 – Profils d'intensité RHEED perpendiculairement aux raies de diffraction, dans l'azimut $[11]$ d'une surface de $\text{Fe}(001)$ propre (en bas) ou présentant une reconstruction $c(2 \times 2)$ due à la présence de carbone (en haut). Les points correspondent aux valeurs d'intensité mesurées, et les lignes à un ajustement par des courbes lorentziennes avec un fond linéaire.

Un modèle structural de l'arrangement des atomes de carbone à la surface du Fe pour la reconstruction $c(2 \times 2)$ est présenté sur la Figure II-3. On peut ainsi constater que les atomes de C se situent à la surface dans une partie des sites interstitiels octaédriques de la maille cubique centrée (ou bcc^3) du $\text{Fe}(001)$, et forment un réseau dont la périodicité est deux fois plus grande que celle du Fe.

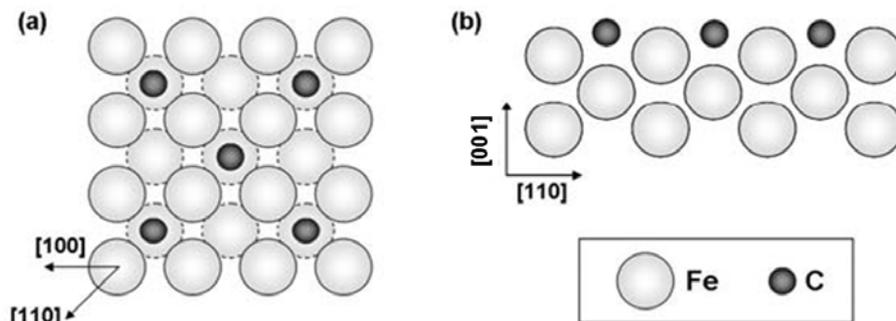


Figure II-3 – Modèle structural de la reconstruction $c(2 \times 2)$ après ségrégation du C à la surface du $\text{Fe}(001)$; (a) vue de dessus, (b) vue en coupe. D'après [16].

³ bcc : body-centered cubic

II - 1.2 Apport de la diffraction RHEED pour l'étude de la croissance

II - 1.2.1 Introduction

On considère une croissance bidimensionnelle⁴, c'est-à-dire se produisant par nucléation et croissance d'îlots de hauteur monoatomique, suivie par diffraction RHEED. Trois types de données peuvent alors être extraites des clichés RHEED, qui renseignent sur cette croissance : l'intensité diffractée, qui permet de maîtriser avec précision l'épaisseur des couches déposées ; la distance entre les raies de diffraction de Bragg, qui est inversement proportionnelle au paramètre de surface moyen $\langle a_{||} \rangle$; et enfin la largeur à mi-hauteur de ces raies de diffraction, ou $FWHM$ ⁵, grâce à laquelle la distance moyenne $\langle L \rangle$ entre les îlots peut être obtenue. Ces affirmations sont reprises schématiquement par la Figure II-4, et seront détaillées dans les sections suivantes.

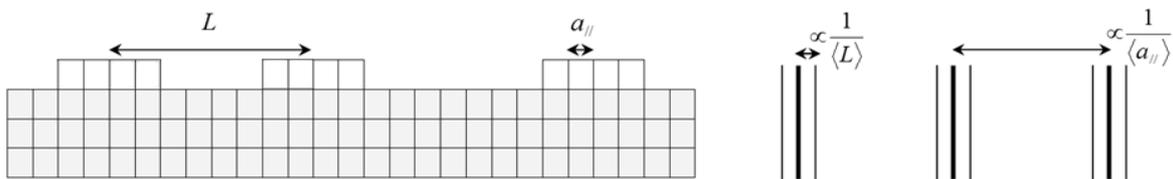


Figure II-4 – Représentation schématique d'une surface recouverte par des îlots, et du cliché RHEED associé. $a_{||}$ est le paramètre de surface, L la distance entre îlots.

Des études approfondies sur l'utilisation de la diffraction RHEED en cours de croissance ont été précédemment menées au laboratoire par P. Turban [127] et F. Dulot [128], afin d'extraire des informations sur la croissance d'une couche sur un substrat, à partir de l'observation des variations de l'intensité, de la largeur et de la position des raies de diffraction RHEED. Nous en ferons un résumé dans les sections suivantes ; pour de plus amples détails, le lecteur est invité à consulter la thèse de P. Turban [127] ainsi que les références [129, 130].

Ainsi, nous commencerons par un rappel de l'origine des oscillations d'intensité de RHEED ; les mécanismes de relaxation engendrant les variations du paramètre de surface moyen, et par conséquent de la distance entre les raies de diffraction, seront ensuite discutés ; enfin, nous verrons comment extraire la distance entre îlots à partir des variations de largeur à mi-hauteur des raies de diffraction. Nous terminerons par une présentation détaillée de la procédure expérimentale que nous avons suivie.

⁴ Ce mode de croissance 2D est aussi dit croissance plan par plan ou de type Franck et Van der Merwe

⁵ $FWHM$: Full-Width at Half-Maximum

II - 1.2.2 Oscillations d'intensité RHEED

Lors d'une croissance bidimensionnelle, on peut observer le phénomène bien connu des oscillations d'intensité RHEED : l'intensité des raies de diffraction oscille avec une période correspondant exactement à la complétion d'une monocouche. Ce phénomène est interprété comme un effet d'interférences entre les ondes diffractées par les couches atomiques ($n-1$) et n , la couche n étant la couche en cours de croissance. L'effet est maximal en géométrie d'anti-Bragg ou d'antiphase, pour laquelle les ondes diffractées par deux couches successives (en l'occurrence ($n-1$) et n) interfèrent de manière destructive : l'intensité est maximale pour des recouvrements entiers de la surface, et minimale (nulle) pour des recouvrements demi-entiers. Une telle géométrie d'anti-Bragg est obtenue lorsque les paramètres du système vérifient la relation suivante :

$$2 d \sin \phi = (n + 1/2) \lambda \quad (\text{II-1})$$

Avec d la distance entre deux plans atomiques (d n'est donc pas nécessairement égal au paramètre de maille), λ la longueur d'onde du faisceau électronique et ϕ son angle d'incidence par rapport au substrat, n un entier naturel.

II - 1.2.3 Variations du paramètre moyen

Deux phases peuvent être distinguées lorsque l'on considère la croissance épitaxiale bidimensionnelle d'un matériau A sur un substrat B, représentées schématiquement sur la Figure II-5 dans le cas où le désaccord paramétrique⁶ f entre A et B est positif, comme c'est le cas par exemple pour la croissance de MgO sur Fe.

Tout d'abord, en début de croissance, le matériau A adopte le paramètre dans le plan du substrat B, lors d'un régime que l'on qualifie de pseudomorphe. Le paramètre du matériau A n'étant pas nécessairement égal à celui que lui impose B, de l'énergie élastique s'accumule dans la couche A au fur et à mesure que son épaisseur augmente, et ce jusqu'à une épaisseur dite critique. A cette épaisseur critique, il devient plus favorable pour le système de former des dislocations pour libérer une partie de l'énergie élastique accumulée. On arrive alors dans le second régime dit de relaxation plastique : des dislocations se créent puis se propagent, et le matériau A commence à relaxer vers son paramètre propre. Enfin, un ralentissement important de la relaxation se produit à partir d'une certaine épaisseur. Ce ralentissement est lié

⁶ Le désaccord paramétrique f est ici défini au sens de Franck et Van der Merwe ; dans le cas de l'épitaxie de A sur un substrat B, on l'exprime de la manière suivante : $f = \frac{a_A - a_B}{a_B}$, a_i étant le paramètre de maille.

à un mécanisme dénommé blocage de Freund, lors duquel la progression des dislocations est bloquée par la rencontre d'autres dislocations qui leur sont orthogonales.

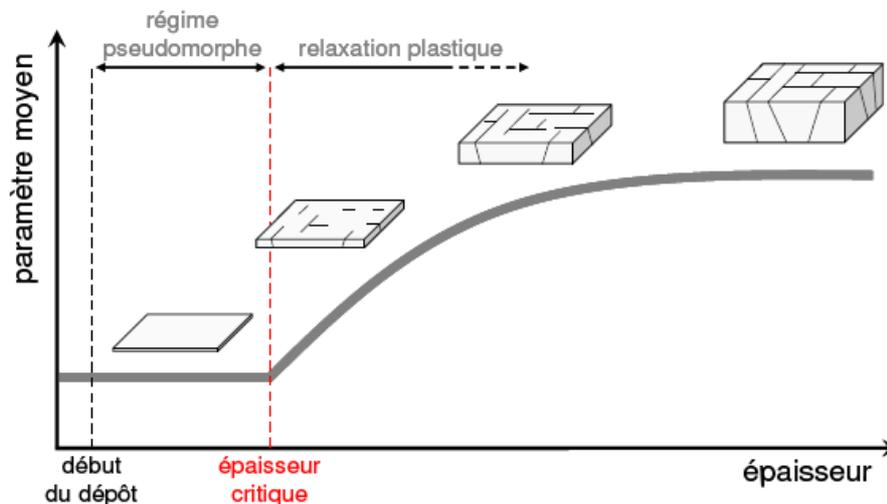


Figure II-5 – Représentation schématique de la variation du paramètre de maille dans le cas d'une couche A contrainte en compression par le substrat B. D'après [2].

Revenons à présent au régime pseudomorphe. Si aucune dislocation n'est créée lors de cette phase initiale de la croissance, un autre mécanisme permet une relaxation partielle des contraintes épitaxiales, lorsque la couche en cours de croissance est incomplète. En effet, pour des recouvrements partiels, des îlots sont présents en surface. Les atomes situés en périphérie de ces îlots peuvent s'écarter de la position imposée par le substrat, et ainsi relaxer une partie de l'énergie élastique en adoptant un paramètre plus proche de leur paramètre propre. Cette relaxation élastique en lisière d'îlots conduit alors à une déformation des îlots et à une variation du paramètre de surface moyen $\langle a_{||} \rangle$, avec une période correspondant à la complétion d'un plan atomique, comme on peut le constater sur les schémas de la Figure II-6.

Sur cette Figure II-6, on observe que le paramètre est minimal pour des recouvrements demi-entiers, et maximal pour des nombres entiers de plans déposés ; dans ce cas, les oscillations de paramètre sont donc en phase avec les oscillations d'intensité (cf. § II - 1.2.2). Ceci n'est bien entendu pas un cas général, puisqu'en réalité les relations de phase entre les oscillations d'intensité et de paramètre dépendent du signe du désaccord paramétrique. Ainsi, le cas de la Figure II-6 (oscillations en phase) correspond à un désaccord paramétrique négatif : la relaxation conduit à un paramètre de surface moyen inférieur au paramètre du substrat. A l'inverse, pour f positif (cas de la croissance de MgO sur Fe, paragraphe II - 1.4), la relaxation conduit à un paramètre de surface moyen supérieur à celui du substrat pour des recouvrements demi-entiers ; les oscillations d'intensité et de paramètre sont dans ce cas en antiphase.

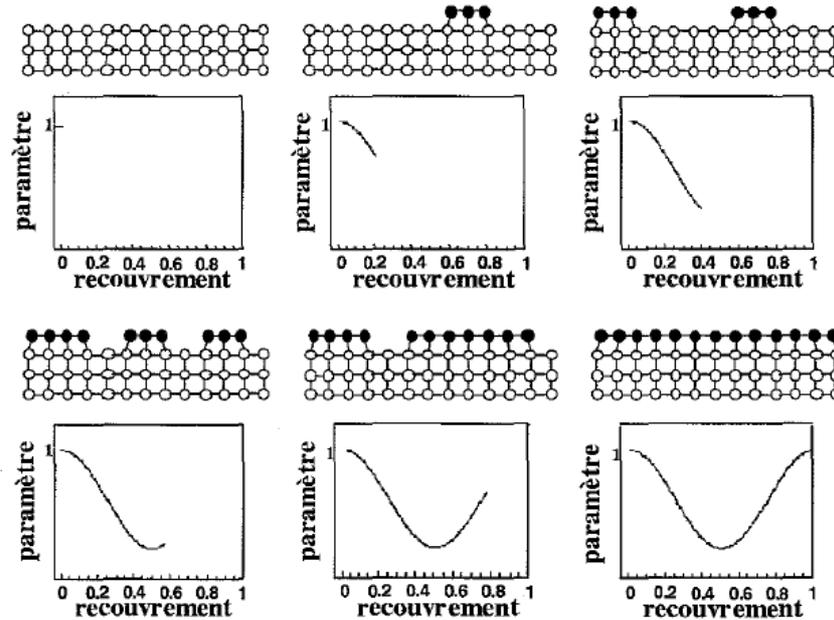


Figure II-6 – Illustration schématique du phénomène de relaxation élastique et corrélation avec l'évolution du paramètre de surface moyen. D'après [127].

Enfin, l'observation de ces oscillations de paramètre moyen n'est pas exclusivement réservée au cas de l'hétéroépitaxie. Dans le cas de l'homoépitaxie, l'absence de désaccord paramétrique entre le film et le substrat n'est en effet pas rédhibitoire : la prise en compte d'un effet de taille finie sur le paramètre des îlots permet de définir un désaccord paramétrique effectif entre les îlots de taille nanométrique et le substrat [129]. Ainsi, il est possible de justifier l'existence des oscillations de paramètre liées à la relaxation élastique même dans le cas de l'homoépitaxie. Toutefois, cet effet seul ne permet souvent pas d'expliquer l'amplitude de relaxation observée. Ceci implique qu'une contribution autre doit être prise en compte, liée à une reconstruction et/ou à une contamination de la surface du substrat.

II - 1.2.4 Oscillations de largeur à mi-hauteur

La dernière manifestation de la présence d'îlots en surface sur un cliché de diffraction RHEED est un élargissement des raies de diffraction. On peut s'en persuader en considérant par exemple l'évolution du cliché RHEED d'une couche de Fe épaisse, lors d'un recuit : plus on chauffe la couche, plus elle se lisse et plus les raies deviennent fines. Cet élargissement des raies de diffraction provient de la contribution de la diffusion diffuse, venant s'ajouter à la contribution de Bragg liée à la périodicité du réseau cristallin. Cette contribution diffuse apparaît en présence de marches en surface, et résulte des interférences constructives entre les ondes diffusées sur les bords de marches.

Ainsi, en présence d'îlots de Fe en surface, la diffusion diffuse contribue au profil des raies de diffraction RHEED : elle engendre l'apparition de raies satellite situées de part et d'autre du pic de Bragg (représentées sur la Figure II-4, page 70), et dont la position, proportionnelle à $1/\langle L \rangle$ ne varie quasiment pas avec le recouvrement. Cependant, ces raies ne sont souvent pas résolues expérimentalement, faute à la fois à l'instrumentation (résolution des détecteurs), à l'ordre de grandeur des distances considérées (de l'ordre du nanomètre) et à la distribution de ces distances. Elles donnent néanmoins lieu à un élargissement tout à fait mesurable des raies de diffraction. C'est précisément la mesure de cet élargissement qui permet de remonter à la distance moyenne entre îlots $\langle L \rangle$. En effet, l'intensité des raies satellite présente des oscillations avec le recouvrement θ en antiphase avec les oscillations d'intensité RHEED. Lorsque $\theta = 0.5$ (demi-remplissage de la couche de surface), l'intensité des raies satellite est donc maximale. Or, en se plaçant strictement en géométrie d'anti-Bragg, pour ce même taux de recouvrement l'intensité du pic de Bragg s'annule. On peut alors montrer [129] que dans ces conditions, la largeur à mi-hauteur des raies du cliché RHEED est directement reliée à la position des raies satellite ; on a alors la relation suivante entre $\langle L \rangle$ et la *FWHM* à demi-remplissage :

$$FWHM (\theta = 0.5) = \frac{4\pi}{\langle L \rangle} \quad (\text{II-2})$$

II - 1.2.5 Procédure expérimentale

Afin de déterminer expérimentalement les variations de l'intensité, de la position et de la largeur des raies pendant la croissance de Fe et MgO sur Fe(001), nous procédons de la manière suivante. L'évolution du cliché de diffraction RHEED est enregistrée au moyen d'une caméra CCD durant le dépôt de Fe ou de MgO, et les films sont analysés suite à la mesure. Cette analyse consiste alors à extraire la variation au cours du dépôt du profil en intensité perpendiculairement aux raies de diffraction RHEED (Figure II-7), au moyen d'un logiciel d'analyse d'images. Notons ici que la position de la ligne de profil est un paramètre important, qu'il convient de choisir précisément ; ce choix sera donc détaillé pour les deux systèmes (croissance de Fe/Fe et de MgO/Fe) dans leurs sections respectives.

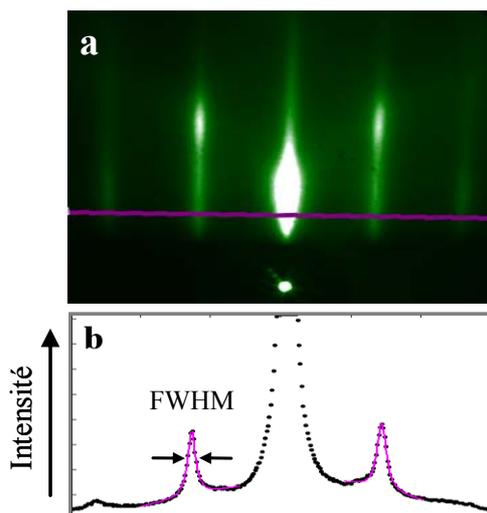


Figure II-7 – (a) Cliché RHEED dans l'azimut $[10]$ d'une surface de Fe(001) et profil étudié ; (b) Profil d'intensité des raies (points) et son ajustement par des courbes lorentziennes (traits).

On procède ensuite à un ajustement du profil d'intensité de chacune des raies de diffraction d'ordre ± 1 par une courbe lorentzienne et un fond diffus linéaire (trait continu rose sur la Figure II-7 (b)), grâce à un algorithme de modélisation de type moindres carrés, développé au laboratoire par Frédéric Bonell au cours de son travail de thèse. Cet ajustement permet d'accéder à l'évolution au cours du temps de l'intensité, de la position et de la largeur à mi-hauteur des raies de diffraction. Les variations de paramètre moyen au cours de dépôt se déduisent ensuite simplement à partir de l'évolution temporelle de la distance entre les deux raies d'ordre ± 1 .

II - 1.3 Dépôt et caractérisation *in situ* des îlots

Nous considérons dans cette partie des îlots de Fe déposés sur une surface de Fe(001) lisse, élaborée selon le protocole décrit au paragraphe II - 1.1.1. Cette surface de Fe recouverte d'îlots sera caractérisée sous différents aspects grâce à la procédure expérimentale décrite ci-dessus.

II - 1.3.1 Conditions expérimentales, influence de la température

Nous avons donc suivi l'évolution du cliché de diffraction RHEED dans l'azimut $[10]$ durant le dépôt de Fe sur Fe(001), pour des températures de substrat comprises entre 100°C et 350°C . Ce dépôt s'effectue par évaporation, au moyen d'une cellule de Knudsen, à une vitesse d'environ $0.05 \text{ \AA}\cdot\text{s}^{-1}$; les conditions expérimentales sont alors telles qu'un minimum de 25 images est enregistré par couche de Fe déposée.

Suite à la mesure, une ligne de profil est choisie de telle sorte que les raies de diffraction d'ordre ± 1 vérifient une condition d'anti-Bragg. Etant donné l'azimut du réseau de surface choisi pour les expériences, cela revient à se placer en condition de Bragg pour la raie d'ordre 0 (raie centrale). De plus, afin d'optimiser l'intensité des raies de diffraction d'ordre ± 1 , les clichés sont enregistrés sous une incidence d'environ 2° .

L'évolution de l'intensité et de la largeur à mi-hauteur de la raie (1,0), ainsi que les variations du paramètre moyen en cours de dépôt, sont reportées à titre d'exemple sur la Figure II-8, pour deux températures de substrat.

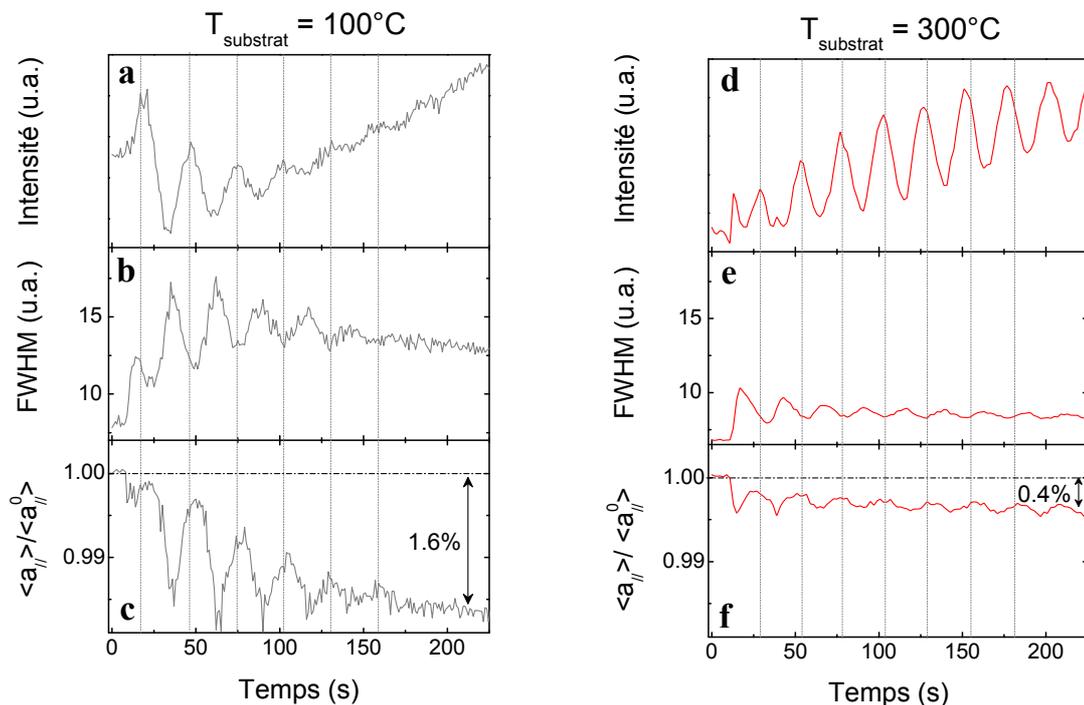


Figure II-8 – Evolution de l'intensité, de la largeur à mi-hauteur de la raie (1,0), et du paramètre de surface moyen au cours du dépôt de Fe/Fe(001) à 100°C ((a), (b) et (c)), et à 300°C ((d), (e) et (f)). Les lignes pointillées sont un guide pour l'œil, indiquant les maxima d'intensité.

On constate que les oscillations d'intensité ((a) et (d)), de largeur à mi-hauteur ((b) et (e)) et de paramètre dans le plan ((c) et (f)) sont clairement visibles sur la Figure II-8, même si ces oscillations s'estompent rapidement pour une température de substrat de 100°C . Conformément aux travaux précédents de P. Turban [130] et en omettant les deux premiers maxima sur la Figure II-8 (d), les oscillations de *FWHM* sont en antiphase avec les oscillations d'intensité ; à l'inverse, les oscillations de paramètre sont en phase avec ces oscillations d'intensité, ce qui correspond à une relaxation élastique vers un paramètre de surface plus petit que le paramètre initial (comme sur la Figure II-6).

On remarque également sur ces figures un effet très net de la température de dépôt (T_{substrat}), effet qui confirme qualitativement les conséquences attendues d'un accroissement

de la diffusion des atomes en surface avec l'élévation de la température. Ainsi, cette plus grande diffusion de surface avec la température permet un renforcement du mode de croissance plan atomique par plan atomique aux plus hautes températures : le nombre d'oscillations d'intensité visibles est en effet plus important à 300°C sur la Figure II-8 (d) qu'à 100°C sur la Figure II-8 (a). De plus, cette mobilité de surface favorise la croissance d'îlots plus larges mais en nombre moins important ; cela se traduit par une diminution entre 100°C et 300°C de l'amplitude des oscillations de *FWHM* (Figure II-8 (b) et (e)), et de paramètre (Figure II-8 (c) et (f)). En effet, en présence de plus larges îlots, la quantité d'atomes situés en bords d'îlots susceptibles de relaxer diminue. Enfin, le décalage entre le paramètre de surface moyen du substrat de fer et le paramètre après un dépôt de Fe de 200 s (soit environ 7 couches atomiques) diminue avec l'augmentation de la température : alors que ce décalage est de 1.6% à 100°C (graphe (c)), il n'est plus que de 0.4% à 300°C (graphe (e)). On retrouve ici un phénomène déjà observé par P. Turban [127, 130], et qui appuie l'hypothèse de l'influence de reconstruction et/ou de contamination de la surface initiale dans le phénomène d'oscillations de paramètre. Le décalage observé correspondrait alors à la différence de paramètre existant entre une surface reconstruite après son recuit et une surface non reconstruite, car déposée à une température insuffisante pour permettre la formation de la reconstruction.

Après ces quelques observations qualitatives sur l'effet de la température, nous allons à présent nous pencher de manière plus quantitative sur la détermination de la distance moyenne entre îlots, puis sur l'analyse des variations du paramètre de surface.

II - 1.3.2 Estimation de la distance entre îlots de Fe/Fe(001)

Pour estimer la distance moyenne entre îlots de hauteur monoatomique, nous soustrayons à la valeur de la *FWHM* à $\theta = 0.5$ (premier maximum de la courbe) sa valeur avant dépôt ; cette dernière valeur est en effet uniquement relative à une largeur de raie intrinsèque à l'appareillage, liée à la résolution de la caméra et la divergence du faisceau électronique, et n'a donc pas à être prise en compte dans le calcul. Par ailleurs, les distances étant données à l'issue du processus de traitement en pixels, il nous faut une valeur de calibration permettant la conversion en Å ; on utilise pour cela la valeur avant dépôt de la distance entre les raies d'ordre +1 et -1, égale à $4\pi/\langle a_{//}^0 \rangle$, en choisissant pour $\langle a_{//}^0 \rangle$ la valeur du Fe massif (soit 2.866 Å)⁷.

⁷ Le paramètre réel de surface est certainement légèrement différent, en raison de la coordination des atomes qui est différente en surface et dans le volume. Cependant, nous n'attendons pas de variation majeure du résultat obtenu, la correction à apporter au paramètre de surface étant très faible.

La Figure II-9 présente les densités d'îlots $N = 1/\langle L \rangle^2$ obtenues pour la croissance de Fe/Fe(001) à plusieurs températures de substrat, comparées à différentes données de la littérature, obtenues soit par observation directe des îlots par microscopie à effet tunnel ou STM⁸ (triangles, [131, 132]), soit de manière indirecte par RHEED (carrés, [133]). Qualitativement, les données de cette figure indiquent que plus la température de dépôt est importante ($1000/T$ petit), plus les îlots présents en surface sont larges et moins ils sont nombreux, la température favorisant la diffusion et l'agrégation des atomes mobiles en surface sur des îlots préexistants, plutôt que la nucléation de nouveaux îlots.

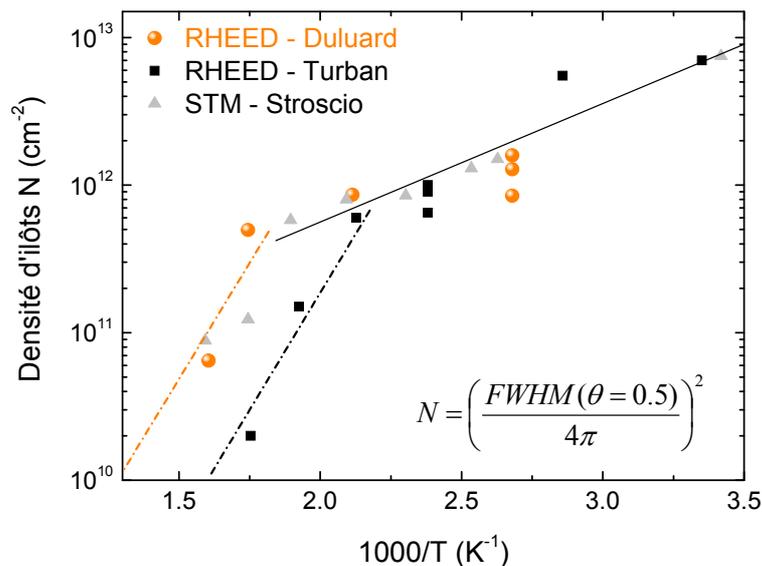


Figure II-9 – Evolution de la densité d'îlots déduite de la FWHM des raies de diffraction RHEED en fonction de l'inverse de la température, lors de la croissance de Fe/Fe(001), et comparaison avec les données de Turban et al. [133], et Strocio et al. [131, 132].

Quantitativement, on observe que nos résultats sont en accord avec les données de la littérature, seul un petit décalage apparaissant sur l'échelle en température. Cet écart est lié au fait que la température lue par un thermocouple est différente de celle ressentie par le substrat. Ainsi, d'un dispositif expérimental à l'autre –où les fours, le matériau du porte substrat, le mode de fixation des échantillons... sont susceptibles de varier–, des différences de température de l'ordre de la cinquantaine de degrés, pour des températures de l'ordre de 300°C, peuvent facilement être constatées.

⁸ STM : Scanning Tunneling Microscopy.

Notons que nous observons également pour nos données un changement de pente, qui est caractéristique de l'augmentation de la taille critique de nucléation⁹ de $i = 1$, pour les croissances aux plus basses températures, à $i = 3$, pour les températures les plus importantes. Dans notre bâti, cette transition a lieu à une température d'environ 300°C, en bon accord avec la température de 250°C annoncée par J. A. Stroscio *et al.* dans [132].

La reproductibilité de nos résultats par rapport à d'autres mesures étant vérifiée, nous pouvons estimer de manière relativement confiante la distance moyenne entre îlots. Ainsi, pour une température de croissance des îlots de 100°C –qui sera celle utilisée pour élaborer les échantillons avec îlots de Fe étudiés aux Chapitres III et IV–, on trouve une distance moyenne entre îlots $\langle L \rangle = 85 \text{ \AA}$.

A partir de ce résultat, il est possible de tenter une estimation de la taille des îlots pour différents taux de recouvrement, pour cette même température de substrat de 100°C. D'après la Figure II-10 (a), qui présente une surface de Fe couverte d'îlots de hauteur monoatomique observée par STM, on constate qu'à cette température, les îlots ont une forme relativement carrée, due à la symétrie d'ordre quatre de la maille cristalline cubique du Fe.

En supposant donc le cas très simple d'une distribution homogène d'îlots carrés, on peut calculer la longueur du côté des îlots a pour différents taux de recouvrement θ de la surface. En effet, le taux de recouvrement s'exprime $\theta = N \cdot a^2$, ce qui conduit à :

$$a = \sqrt{\theta/N} = \langle L \rangle \cdot \sqrt{\theta} \quad (\text{II-3})$$

L'évolution de a avec le recouvrement θ suivant l'équation (II-3) est représentée sur la Figure II-10 (b). Cette estimation permet de se donner une idée de la taille des îlots présents en surface pour des recouvrements inférieurs à ou de l'ordre de la demi-monocouche. En effet, au-delà de $\theta = 0.5$ (partie grisée de la Figure II-10 (b)), les îlots ont une forte probabilité de se rencontrer et de coalescer : leur forme et leur taille deviennent alors beaucoup plus complexes à envisager, et les tailles calculées avec notre estimation ne sont certainement pas représentatives de la réalité.

⁹ La taille critique de nucléation i est telle qu'un îlot de i atomes ou moins est instable et tend à se dissocier, alors qu'un îlot de $i+1$ atomes est stable.

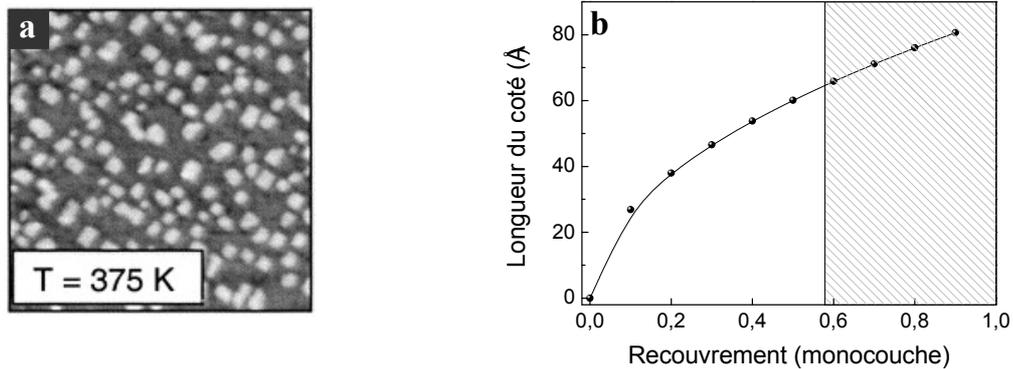


Figure II-10 – (a) Image STM d'îlots de Fe/Fe(001), pour un recouvrement de 0.2 monocouche, de $50 \times 50 \text{ nm}^2$. D'après [134]; (b) Estimation de la variation de la taille latérale des îlots avec le recouvrement, à $T = 100^\circ\text{C}$.

Remarquons que d'après notre estimation, pour un taux de remplissage de 0.1 monocouche, la taille moyenne des îlots serait d'environ 20 \AA . Ainsi, puisque les tailles caractéristiques des îlots considérés dans l'étude de Bischoff et al. [125] sont approximativement comprises entre 5 et 16 \AA , un décalage en énergie l'IRS du Fe par confinement latéral, similaire à celui observé dans cette étude [125] pourrait donc se produire dans notre cas, pour de très faibles taux de remplissage. Par ailleurs, dans la même étude, un autre mécanisme susceptible d'agir sur l'IRS a été mis en évidence, impliquant sa destruction sur les bords de marches. Or, en cours de croissance d'une couche, la densité de bords de marches en surface évolue périodiquement avec le recouvrement : elle croît en effet initialement lors de la nucléation et de la croissance des îlots, atteint un maximum autour du demi-remplissage, et enfin diminue lors de la coalescence des îlots. Nous disposons donc grâce à ces îlots déposés à l'interface Fe/MgO, de deux mécanismes susceptibles d'agir sur l'état de résonance interfaciale du Fe(001).

II - 1.3.3 Relaxation du paramètre moyen de surface

Nous terminons cette caractérisation d'une surface de Fe(001) recouverte d'îlots en nous intéressant aux oscillations du paramètre de surface durant la croissance. Ces oscillations ont été présentées plus haut, à deux températures différentes, sur les Figure II-8 (c) et (f). Nous allons par la suite nous intéresser uniquement à la température de 100°C ; nous avons donc reporté sur la Figure II-11 les oscillations de paramètre moyen de surface à cette température, en fonction de l'épaisseur de Fe déposée, exprimée en monocouches de fer (MC). Les variations du paramètre dans le plan $\langle a_{||} \rangle$ y sont tracées relativement au paramètre de la couche de Fe avant dépôt $\langle a_{||}^0 \rangle$, et non pas calculées de manière absolue : comme nous l'avons déjà mentionné, le paramètre de surface avant dépôt n'est en effet pas connu précisément.

On peut remarquer sur la Figure II-11 que le paramètre est maximal pour un nombre entier de couches, et minimal pour des recouvrements demi-entiers. En effet, pour des recouvrements entiers, le film est contraint par le substrat : son paramètre tend donc vers celui du substrat. A l'inverse, la relaxation est maximale pour des couches demi-entières, et le paramètre de surface s'éloigne de celui du substrat. De manière plus quantitative, on remarque que le dépôt d'une demi-monocouche de Fe s'accompagne d'une relaxation de paramètre de l'ordre de -0.5%, tandis qu'elle atteint -1.3% pour 1.5 MC et un peu plus de -1.5% pour des épaisseurs de fer de 2.5 MC et 3.5 MC.

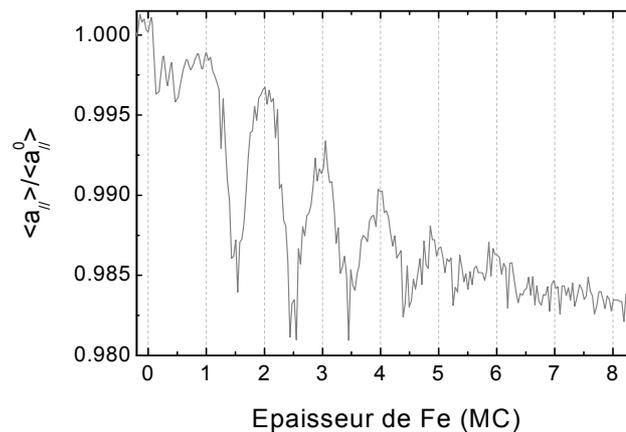


Figure II-11 – Variation relative du paramètre moyen de surface au cours du dépôt de Fe/Fe(001) en fonction de l'épaisseur déposée exprimée en monocouches (MC) de fer, pour une température de substrat de 100°C.

La relaxation plus faible pour la première couche de Fe déposée a été observée systématiquement au cours de notre étude pour des températures de croissance de 100°C et 200°C. Si rien de similaire n'apparaît dans les travaux de P. Turban [130] pour l'homoépitaxie du fer, l'épitaxie de V/V(001) semble présenter à ces températures la même caractéristique, comme le montre la Figure II-12 (a). Notons que dans ces travaux, les couches de Fe et de V présentent des reconstructions de surface, liées à la présence de contaminants en surface. Ainsi, à la surface du fer, une reconstruction en $c(2 \times 2)$ liée à la présence de carbone est observée ; pour la surface du vanadium, une reconstruction en (5×1) résultant de la présence d'oxygène en surface est présente. Dans notre cas, une couche tampon de MgO est déposée préalablement à la couche de Fe pour prévenir la ségrégation du carbone depuis le substrat vers la surface de Fe. Or, comme on peut le voir sur la Figure II-12 (b), une surface propre de Fe est beaucoup plus sensible à l'oxydation qu'une surface de fer présentant une contamination au C. Ainsi, la plus faible relaxation observée pour la première oscillation de paramètre dans le cas de la croissance de Fe/Fe(001) pourrait, comme pour celle de V/V(001), être liée à la présence d'oxygène en surface.

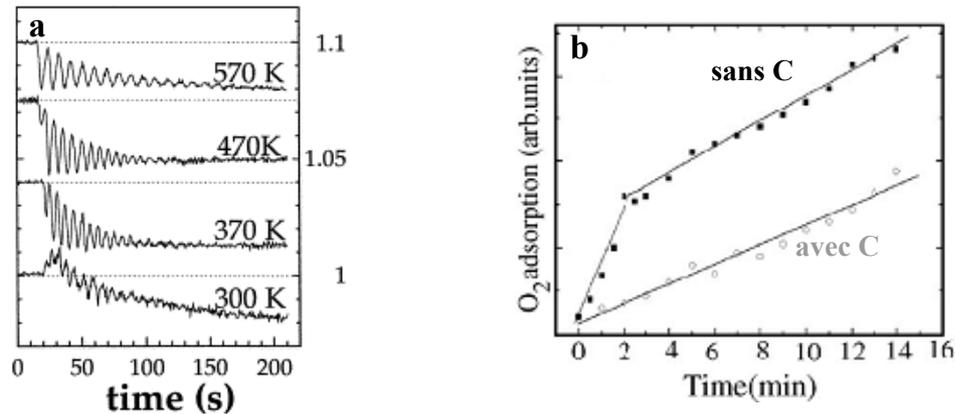


Figure II-12 – (a) Oscillations de paramètre moyen observées lors de la croissance de $V/V(001)$ à différentes températures (D'après [130]) ; (b) Evolution de la quantité d' O_2 adsorbée sur une surface de Fe propre ou contaminée au carbone en fonction du temps d'exposition. D'après [135].

Ayant caractérisé les îlots présents en surface d'une couche tampon de Fe, nous allons à présent nous intéresser à leur influence sur la croissance d'une barrière de MgO.

II - 1.4 Croissance d'une barrière de MgO sur une électrode avec ou sans îlots de fer

II - 1.4.1 Conditions expérimentales et systèmes étudiés

Nous avons également enregistré l'évolution du cliché de diffraction RHEED dans l'azimut $[10]_{Fe}$ lors de la croissance de MgO à $100^\circ C$ sur une surface (001) de Fe. Le MgO est évaporé par bombardement électronique d'une cible constituée de substrats de MgO monocristallin, à une vitesse maintenue constante et comprise entre 0.1 et $0.15 \text{ \AA}\cdot s^{-1}$; les conditions expérimentales sont telles qu'une cinquantaine d'images sont enregistrés par plan de MgO déposé.

Suite à la mesure, le profil d'analyse est choisi afin d'optimiser le rapport signal sur bruit des oscillations de paramètre observées. L'allure de l'évolution au cours du dépôt des oscillations de paramètre étant très sensible à la position de la ligne de profil, cette ligne sera placée de manière identique pour tous les enregistrements, afin de pouvoir les comparer entre eux. Par ailleurs, comme pour le suivi de la croissance de Fe/Fe(001), les clichés sont enregistrés sous une incidence d'environ 2° .

Nous avons étudié la croissance de MgO sur trois morphologies de surface de Fe(001) correspondant à des degrés de désordre différents. La première est une surface de Fe lissée par un recuit à $500^\circ C$, qui est l'échantillon de référence. Les deux autres morphologies correspondent à cette surface lisse recouverte par des îlots de Fe. Ainsi, dans un cas nous

avons considéré une surface de Fe présentant un taux de recouvrement de 0.5 MC, donc avec des îlots de Fe de hauteur monoatomique ; le second cas correspond à une surface recouverte de 1.5 MC de Fe, donc pouvant présenter trois niveaux atomiques. La Figure II-13 présente l'évolution des différents paramètres extraits des clichés de diffraction RHEED, enregistrés dans les trois cas.

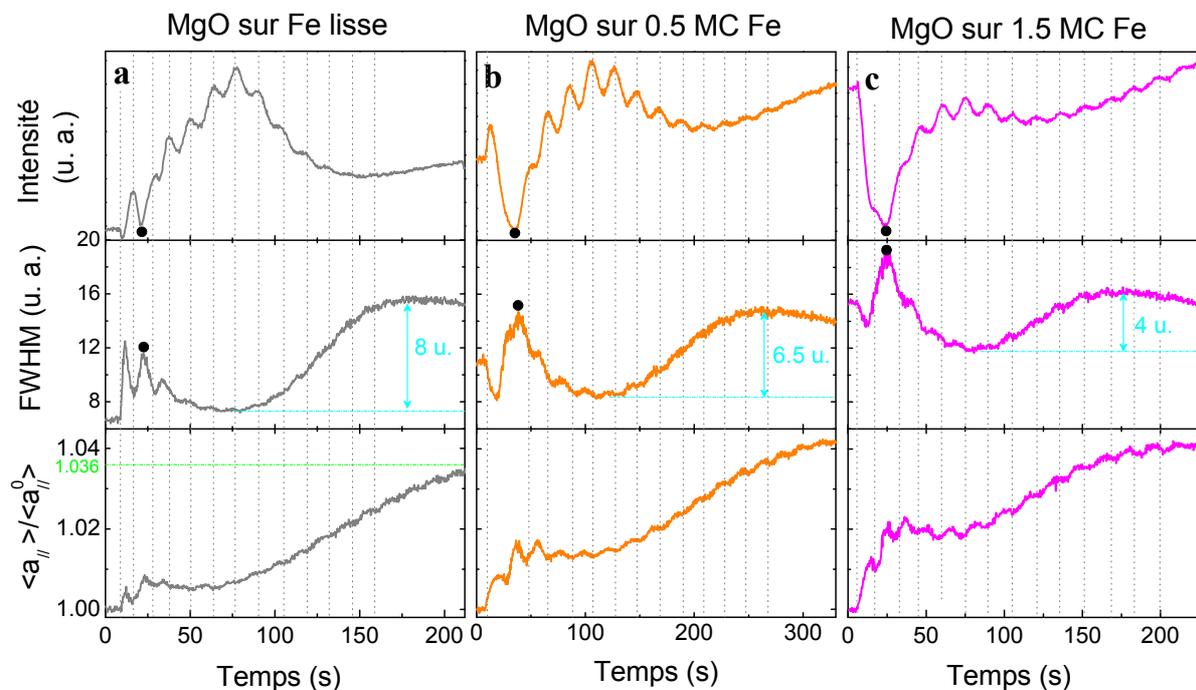


Figure II-13 – Variation de l'intensité et de la largeur à mi-hauteur de la raie (1,0), et du paramètre moyen de surface au cours de l'hétéroépitaxie de MgO/Fe(001), dans le cas d'une surface de Fe : (a) lisse, (b) couverte de 0.5 MC de Fe, (c) couverte de 1.5 MC de Fe. Les lignes pointillées sont un guide pour l'œil, indiquant les maxima d'intensité.

A première vue, l'intensité, la largeur et la position des raies de diffraction n'évoluent pas de la même manière lors de la croissance de MgO sur les trois morphologies de la surface de Fe. Ainsi, et ce n'est pas si surprenant, la morphologie de la surface semble avoir une influence sur la croissance du MgO. A présent, toute la question est de définir à quel point cette croissance est différente dans les trois systèmes. Partant d'une approche globale de l'allure des différentes courbes, nous analyserons ensuite dans les trois cas les relations de phase entre les trois paramètres étudiés, et enfin nous nous focaliserons sur l'influence des îlots sur les oscillations de paramètre, afin d'apporter des arguments pour répondre à cette problématique.

II - 1.4.2 Approche comparative globale

Concernant le dépôt de MgO sur la surface lisse de fer (Figure II-13 (a)), les évolutions respectives de l'intensité, de la largeur et du paramètre moyen de surface en fonction du taux de recouvrement permettent de distinguer clairement les deux régimes de croissance. En effet, jusqu'à environ cinq oscillations, le paramètre reste constant en moyenne, ce qui est caractéristique du régime pseudomorphe. Au-delà de cinq oscillations, on observe une augmentation quasi-linéaire du paramètre, qui correspond au début de la phase de relaxation plastique ; cette augmentation est concomitante de variations également quasi-linéaires de la largeur (augmentation) et de l'intensité (diminution). De plus, compte tenu de la rotation de 45° entre les mailles *fcc* du MgO et *bcc* du Fe, on attend après relaxation un rapport $\langle a_{||} \rangle / \langle a_{||}^0 \rangle$ proche de :

$$a_{MgO} / (\sqrt{2} \cdot a_{Fe}) = 1.036,$$

ce qui est effectivement le cas sur la Figure II-13 (a).

En ce qui concerne les dépôts de MgO sur 0.5 et 1.5 MC de Fe, ces deux régimes peuvent toujours être nettement identifiés, bien que les comportements de la largeur à mi-hauteur et de l'intensité soient fortement perturbés lors de la croissance des deux premières couches de MgO. En effet, alors que l'intensité et la largeur sont minimales au début de la croissance sur une surface lisse, il en est tout autrement pour les surfaces déjà partiellement recouvertes de fer. Cependant, après un dépôt d'environ 1.5 à 2 couches de MgO, la largeur atteint un maximum et l'intensité un minimum (matérialisés par les disques noirs sur les courbes). Les évolutions ultérieures de la largeur et de l'intensité pour la croissance sur 0.5 MC de fer (Figure II-13 (b)) sont alors très proches de ce qui est observé sur une surface lisse, à savoir une décroissance de la largeur et une augmentation de l'intensité, modulées par des oscillations jusqu'à l'amorçage de la relaxation plastique. De plus, pour ce dépôt sur 0.5 MC de Fe, on observe lors de la relaxation plastique une augmentation de *FWHM* d'amplitude comparable à celle constatée pour la surface lisse. La différence entre les évolutions de la largeur et de l'intensité sur les surfaces lisse et recouverte de 1.5 MC de Fe (Figure II-13 (c)) est plus nette, d'autant plus que la variation de *FWHM* lors de la relaxation plastique présente une amplitude réduite de moitié par rapport à un dépôt sur une surface lisse.

Ainsi, dans le cas d'une croissance de MgO sur une surface recouverte d'une demi-monocouche de fer, on retrouve très rapidement –après au maximum un dépôt de deux couches de MgO– les caractéristiques observées dans le cas d'une croissance sur une surface lisse. Le désordre initial de la surface paraît alors comblé après le dépôt de 1.5 ou 2 monocouches de MgO.

II - 1.4.3 Relations de phase

Revenons au cas de la croissance du MgO sur une surface lisse de Fe (Figure II-13 (a)) ; nous observons comme attendu des oscillations de *FWHM* en antiphase avec les oscillations d'intensité RHEED. Par ailleurs, les oscillations de paramètre sont également en antiphase avec les oscillations d'intensité ; ce déphasage est caractéristique de l'hétéroépitaxie d'un système à désaccord paramétrique f positif ($f = +3.9\%$ dans le cas de la croissance de MgO/Fe(001)) comme cela a été mentionné au paragraphe II - 1.2.3. En effet, lorsque la couverture est demi-entière, la relaxation élastique en lisière d'îlots est maximale ; on observe donc un maximum du paramètre moyen en surface puisque le paramètre du film de MgO est plus grand que celui que le substrat de Fe tend à lui imposer (Figure II-14, gauche). Lorsque la couche de MgO est complète, elle est contrainte par le substrat : aucune relaxation n'est théoriquement possible, et le paramètre moyen en surface atteint un minimum, qui correspond au paramètre du Fe (Figure II-14, droite).

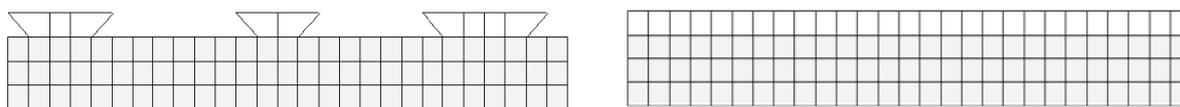


Figure II-14 – Illustrations schématiques du phénomène de relaxation élastique, dans le cas d'un désaccord paramétrique $f > 0$ entre le substrat et le dépôt. A gauche, en présence d'îlots, le paramètre moyen de surface est supérieur à celui du substrat, alors qu'à droite, pour un recouvrement entier, le paramètre de surface est égal à celui du substrat : il n'y a pas de relaxation élastique.

Si l'on compare maintenant ces deux observations à ce que l'on relève lorsque le MgO croît sur les surfaces avec 0.5 ou 1.5 MC de Fe, on s'aperçoit que l'on retrouve les mêmes caractéristiques : les oscillations d'intensité sont en antiphase avec les oscillations de largeur à mi-hauteur et de paramètre moyen quelle que soit la surface sur laquelle le MgO est déposé. Ainsi, les relations de phase entre les différentes grandeurs sont conservées pour la croissance du MgO sur les différentes surfaces de Fe. Ce résultat témoigne d'une croissance couche par couche à l'échelle de cohérence du faisceau RHEED, quelle que soit la surface de départ.

II - 1.4.4 Evolution des oscillations de paramètre avec la morphologie

Dans la suite, nous allons nous intéresser plus particulièrement aux oscillations du paramètre moyen. Afin de comparer plus aisément les oscillations apparaissant dans les trois cas, nous allons les représenter en fonction de l'épaisseur de MgO déposée exprimée en couches atomiques (MC). De plus, il a été mentionné au cours d'un paragraphe précédent (section II - 1.3.3) que le paramètre de surface moyen d'une couche de Fe avec 0.5 ou 1.5 MC de Fe était inférieur à celui d'une couche de Fe lisse, respectivement de 0.5% et 1.3%. Ainsi, pour comparer les oscillations de paramètre lors de la croissance du MgO sur les trois

surfaces, il faut normaliser le paramètre $\langle a_{//} \rangle$ par rapport à $\langle a_{//}^{Fe\ lisse} \rangle$, et non par rapport au paramètre moyen de la couche initiale, qui varie suivant le type de surface considérée.

Ainsi, dans le cas d'une surface présentant 0.5 MC de Fe, on a :

$$\langle a_{//}^{0.5\ Fe} \rangle = 0.995 \cdot \langle a_{//}^{Fe\ lisse} \rangle \quad (\text{II-4})$$

Lors de la croissance de MgO sur cette surface, pour normaliser la variation du paramètre moyen en cours de croissance du MgO par rapport au paramètre de la couche de Fe lisse, on utilisera la relation de normalisation suivante :

$$\frac{\langle a_{//}^{MgO} \rangle}{\langle a_{//}^{Fe\ lisse} \rangle} = \frac{\langle a_{//}^{MgO} \rangle}{\langle a_{//}^{0.5\ Fe} \rangle} \cdot 0.995 \quad (\text{II-5})$$

Pour la croissance du MgO sur 1.5 MC de Fe, on peut établir la seconde relation de normalisation de la même manière, et on obtient :

$$\frac{\langle a_{//}^{MgO} \rangle}{\langle a_{//}^{Fe\ lisse} \rangle} = \frac{\langle a_{//}^{MgO} \rangle}{\langle a_{//}^{1.5\ Fe} \rangle} \cdot 0.987 \quad (\text{II-6})$$

Nous avons donc superposé avec les oscillations de paramètre moyen observées dans le cas de l'échantillon de référence, les oscillations constatées lors de la croissance du MgO sur 0.5 MC et 1.5 MC de Fe, et normalisées grâce aux relations (II-5) et (II-6) (Figure II-15).

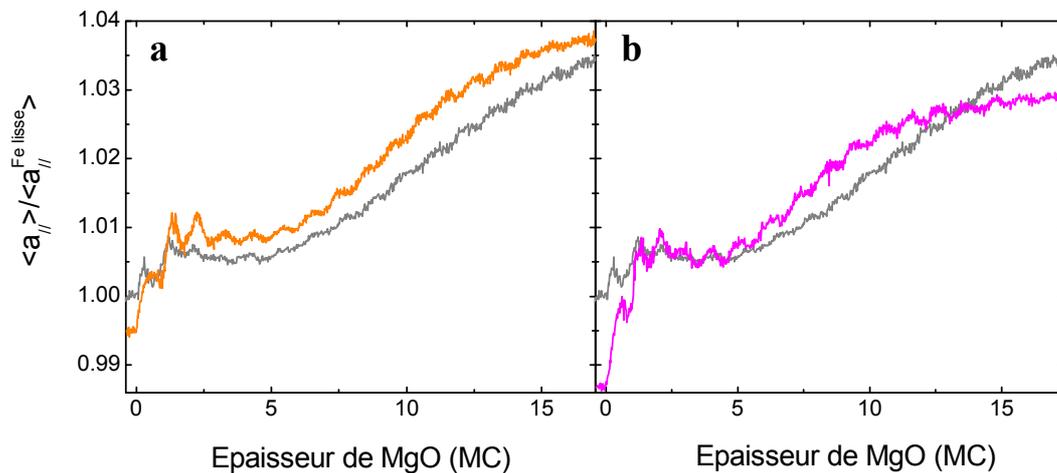


Figure II-15 – Comparaison des oscillations de paramètre de surface moyen obtenues lors de la croissance de MgO sur une surface lisse de Fe (courbe grise) avec celle obtenue pour la croissance sur une surface couverte de : (a) 0.5 MC Fe (en orange) et (b) 1.5 MC Fe (en magenta).

On constate que dans ces conditions, dans le régime pseudomorphe, la valeur autour de laquelle oscille le paramètre est très similaire pour les différentes surfaces de Fe, les

différences observées étant en tout cas inférieures à la précision que nous pouvons revendiquer pour ces mesures. Ainsi, la plus grande valeur moyenne observée pour la croissance de MgO sur 0.5 MC et 1.5 MC de Fe avant la relaxation plastique semble s'expliquer par un simple effet de compensation d'un paramètre initial différent de celui de la surface lisse.

La représentation des oscillations de paramètre de la Figure II-15 met également en évidence des amplitudes d'oscillation plus importantes pour les surfaces avec îlots que pour la surface lisse. D'après Müller *et al.* [129], une amplitude de relaxation plus importante peut s'expliquer par deux phénomènes : une augmentation de la densité de nucléation, qui conduit à une augmentation de la densité de bords de marches et favorise la relaxation, ou bien une augmentation du désaccord paramétrique. Dans notre cas, la contribution de ces deux mécanismes paraît difficilement discernable. En effet, nous avons montré qu'en présence d'îlots, le désaccord paramétrique entre le MgO et le substrat augmentait ; cependant, on ne peut pas écarter la possibilité que la présence de marches dans le cas des surfaces de Fe avec îlots entraîne une augmentation de la densité de nucléation du MgO, favorisant la présence de nombreux petits îlots au détriment des plus gros.

Par ailleurs, la transition entre le régime pseudomorphe et celui de la relaxation plastique se produit autour de 5.5 plans atomiques dans le cas des surfaces lisse et couverte de 0.5 MC de Fe, alors que l'épaisseur critique semble être un peu inférieure (autour de 5 plans) dans le cas du dépôt de MgO sur 1.5 MC de Fe, ce qui reste néanmoins proche de la marge d'erreur que nous avons ici. Enfin, on peut remarquer que la pente de la courbe après la relaxation plastique est similaire pour les surfaces lisse et avec 0.5 MC de Fe, mais diffère à nouveau dans le cas de la surface la plus désordonnée, avec 1.5 MC de Fe. On peut supposer ici que dans ce dernier cas les dislocations se forment en nombre plus important dès le début de la phase de relaxation plastique, entraînant une relaxation plus rapide. Cette hypothèse est d'ailleurs cohérente avec la survenue plus rapide du blocage de Freund lors de la croissance sur 1.5 MC de fer, le ralentissement de la relaxation étant observé dès le dépôt de 10 MC, alors que ce phénomène se produit pour des épaisseurs supérieures à 16 plans atomiques lorsque le MgO est déposé sur une surface lisse de Fe.

En conclusion, si la présence d'une demi-monocouche de Fe à l'interface semble peu affecter la croissance du MgO, la présence de 1.5 MC de Fe paraît en revanche avoir une influence plus notable. Ainsi, il paraît alors raisonnable de considérer par la suite que pour des recouvrements de la surface de Fe inférieurs ou égaux à une couche atomique, la morphologie d'une barrière d'une dizaine de plans atomiques reste tout à fait comparable à celle d'une barrière déposée sur une surface lisse de Fe. Le cas des barrières plus fines, non relaxées (donc d'épaisseur inférieure à cinq plans atomiques), fait l'objet du paragraphe suivant.

II - 1.4.5 Cas particulier des barrières fines

Des clichés de microscopie électronique en transmission (TEM¹⁰) ont été réalisés par Etienne Snoeck, du CEMES à Toulouse sur des échantillons Fe/MgO/Fe(001) présentant une barrière très fine, d'épaisseur de l'ordre de trois plans atomiques (Figure II-16). Le cliché (a), à faible grandissement, montre que malgré son extrême finesse, la couche de MgO est continue sur la distance étudiée. Les clichés haute résolution (HRTEM¹⁰) (b) à (e) nous permettent d'étudier l'effet de la présence d'îlots sur la morphologie d'une barrière aussi fine. Ces clichés correspondent en effet à différentes zones d'un même échantillon, donc avec une épaisseur de barrière strictement identique, comportant une interface inférieure soit lisse (clichés (d) et (e)) soit recouverte de 0.5 MC de fer (clichés (b) et (c)), grâce à l'utilisation d'un cache *in situ*. On observe sur ces clichés que dans les deux cas, la barrière présente en certains endroits des défauts (clichés (c) et (e)), qui ne sont pas des discontinuités de l'isolant (*pinholes*) mais plutôt des rugosités d'interface importantes. Des clichés présentant une barrière bien régulière sont également observés avec et sans îlots à l'interface inférieure. Ainsi, il n'existe pas de différences notables entre les barrières de trois plans atomiques déposées sur une interface lisse ou avec îlots : la présence d'îlots à l'interface n'induit donc pas de défauts supplémentaires dans une barrière fine.

Il faut ici noter que l'élaboration d'échantillons Fe/MgO/Fe avec une telle barrière nécessite de prendre un certain nombre de précautions, afin d'assurer la reproductibilité des expériences et le contrôle précis des épaisseurs de MgO déposées. Ainsi, la barrière est déposée à une vitesse très lente (inférieure à $0.1 \text{ \AA} \cdot \text{s}^{-1}$), sous le contrôle d'une microbalance à quartz, préalablement calibrée au moyen d'oscillations d'intensité RHEED en géométrie spéculaire. De plus, la charge de MgO utilisée pour le dépôt des barrières a été réservée à cet effet (une autre charge est utilisée pour le dépôt des couches tampon de piégeage du C), et la position du faisceau d'électrons sur la charge de MgO choisie pour la calibration de la microbalance à quartz est conservée pour le dépôt des barrières. Enfin, les clichés de microscopie électronique en transmission en haute résolution (clichés (b) à (e) de la Figure II-16), où l'on peut dénombrer les couches déposées, permettent de vérifier et corriger la calibration en épaisseur.

¹⁰ TEM : *Transmission Electron Microscopy* ; HRTEM : *High Resolution Transmission Electron Microscopy*.

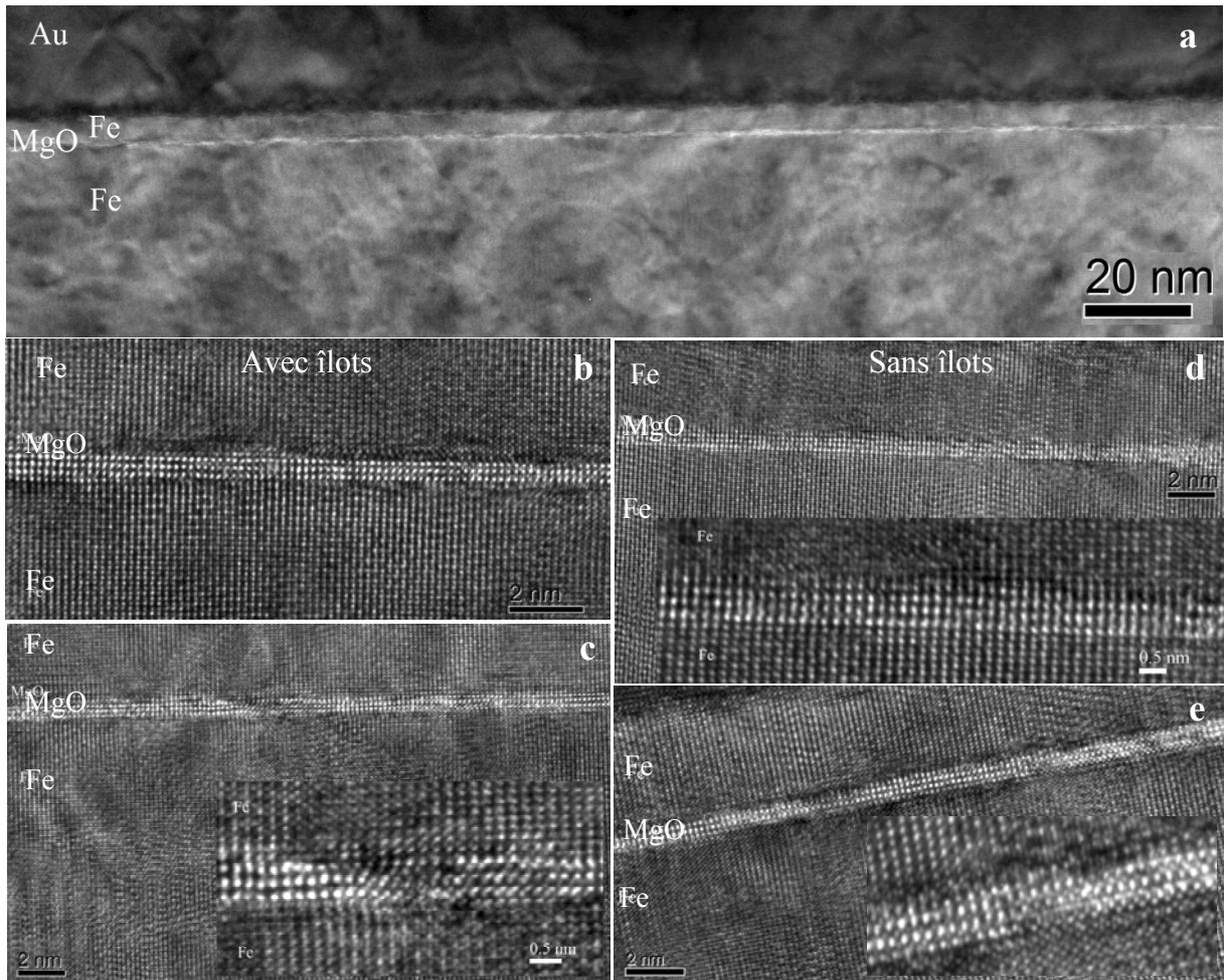


Figure II-16 – Clichés TEM (a) et HRTEM ((b) à (e)) d'échantillons $Fe(50\text{ nm})/Fe(x)/MgO(3.06\text{ MC})/Fe(5\text{ nm})$, où $x = 0$ ou 0.5 MC de fer. Les clichés (b) et (c) correspondent à des échantillons présentant une interface inférieure avec îlots ($x = 0.5\text{ MC}$), et les clichés (d) et (e) à des échantillons à interface lisse ($x = 0\text{ MC}$).

En conclusion, la présence d'îlots de fer de hauteur monoatomique à l'interface Fe/MgO inférieure ne semble pas avoir d'impact majeur sur la croissance d'une barrière de MgO, et ce dans les deux régimes d'épaisseurs qui nous intéressent (épaisseur de trois ou quatre plans atomiques, ou bien supérieure à dix monocouches). En effet, les caractérisations *in situ* par RHEED et *ex situ* par microscopie électronique en transmission n'ont pas révélé d'indices permettant de discerner les barrières déposées sur deux morphologies de surfaces différentes, lisse ou avec une demi-monocouche d'îlots.

II - 2 Jonctions Fe/MgO/CoFeB à structure cristalline mixte

Nous présentons dans cette section des échantillons à architecture dite hybride, dont l'élaboration fait intervenir deux techniques différentes de dépôt des matériaux, l'épitaxie par jets moléculaires et la pulvérisation cathodique. Ces échantillons sont constitués d'une électrode inférieure et d'une barrière épitaxiées et d'une électrode supérieure de CoFeB déposée par pulvérisation.

Dans une première partie, la procédure d'élaboration de ces empilements Fe/MgO/CoFeB sera donc décrite ; en particulier, nous nous intéresserons au suivi de la cristallisation *in situ* du CoFeB par diffraction RHEED, la croissance de ce matériau sur une barrière de MgO monocristalline n'ayant pas encore à notre connaissance été étudiée. Des images de microscopie électronique en transmission nous permettront dans un deuxième temps de vérifier les propriétés structurales de l'empilement ainsi élaboré, ainsi que sa cristallinité.

II - 2.1 Croissance et cristallisation d'une couche de CoFeB sur une barrière de MgO monocristalline

Les échantillons ont été élaborés dans une chambre d'épitaxie par jets moléculaires, couplée à un bâti de pulvérisation cathodique. Après avoir préparé un substrat de MgO comme nous l'avons décrit au paragraphe II - 1.1.1, nous avons déposé et recuit à 550°C une première électrode de Fe de 45 nm d'épaisseur. Une barrière de MgO de (11.5 ± 0.5) plans atomiques d'épaisseur a ensuite été épitaxiée à 110°C par bombardement électronique d'une cible de MgO monocristallin. L'échantillon a ensuite été transféré sous vide dans le bâti de pulvérisation, où une couche de CoFeB de 5 nm d'épaisseur est déposée à partir d'une cible de $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$.

L'échantillon est alors ramené, toujours sous vide, dans l'enceinte de la MBE, afin d'y subir un recuit, que nous avons suivi par diffraction RHEED (Figure II-17 (a) à (d)). On peut constater sur cette figure que la couche de CoFeB est amorphe après dépôt (cliché (a)), et jusqu'à 300°C (b), puisqu'on ne voit sur les clichés RHEED qu'une tache circulaire sur un fond très diffus. La cristallisation semble démarrer à partir de 450°C (Figure II-17 (c)) : la tache centrale sur le cliché RHEED s'étire progressivement. Cette raie centrale s'affine lorsqu'on augmente encore la température, et à 550°C des raies de diffraction caractéristiques d'une structure monocristalline deviennent visibles, alors que le fond diffus s'atténue clairement (Figure II-17 (d)). La température est alors maintenue pendant 30 min, pour assurer une thermalisation sur toute la surface de l'échantillon.

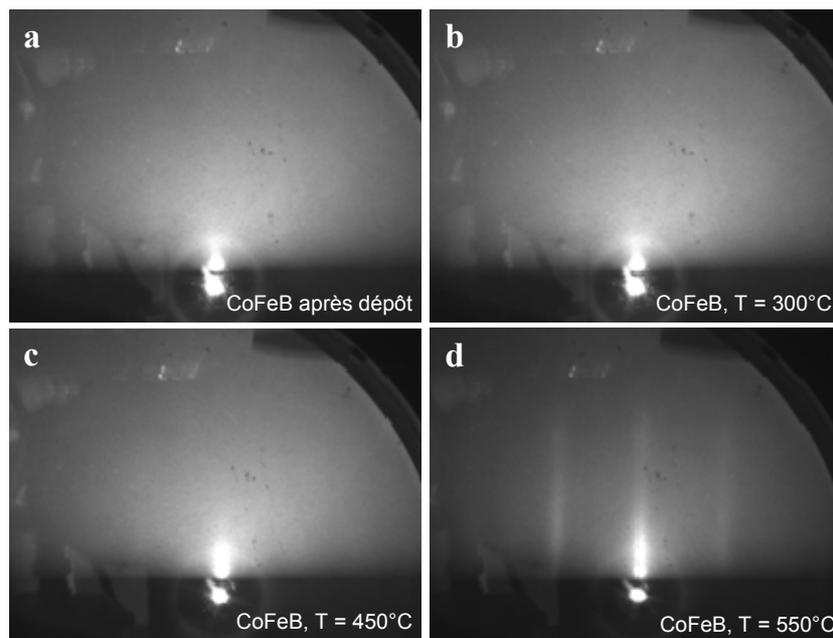


Figure II-17 – Suivi de l'évolution du cliché de diffraction RHEED lors de la cristallisation par un recuit du CoFeB déposé sur un empilement Fe/MgO monocristallin, (a) à 20°C, (b) à 350°C, (c) à 450°C et (d) à 550°C.

A l'issue de ces 30 minutes de recuit à 550°C, comme on peut le constater sur la Figure II-18, la couche de CoFe est cristallisée dans la structure *bcc* avec une orientation (001), les azimuts [10] et [11] du réseau de surface du CoFe (clichés (a) et (b)) étant alignés respectivement avec les azimuts [11] et [10] du réseau de surface du MgO sous-jacent (clichés (c) et (d)), et [10] et [11] du Fe (clichés (e) et (f)). La structure cristalline est donc conservée et cohérente à travers tout l'empilement. Toutefois, un fond diffus plus important sur les clichés (a) et (b) de la couche de CoFe(B) indique une qualité cristalline moins bonne pour cette couche que pour celles de Fe et de MgO.

On peut également remarquer la présence de raies additionnelles de faible intensité sur le cliché (b) de la Figure II-18 ; ces raies témoignent de la présence d'une reconstruction de la surface de la couche de CoFe(B). Cette reconstruction de surface est peut-être liée à la ségrégation du B en surface lors de la cristallisation du CoFe, le bore étant très peu soluble dans la phase cristallisée ; par ailleurs, ce type de ségrégation du B en surface du CoFe a déjà été observé par Kurt *et al.* lors d'une étude de la diffusion du B dans des jonctions tunnel magnétiques CoFeB/MgO/CoFeB [136].

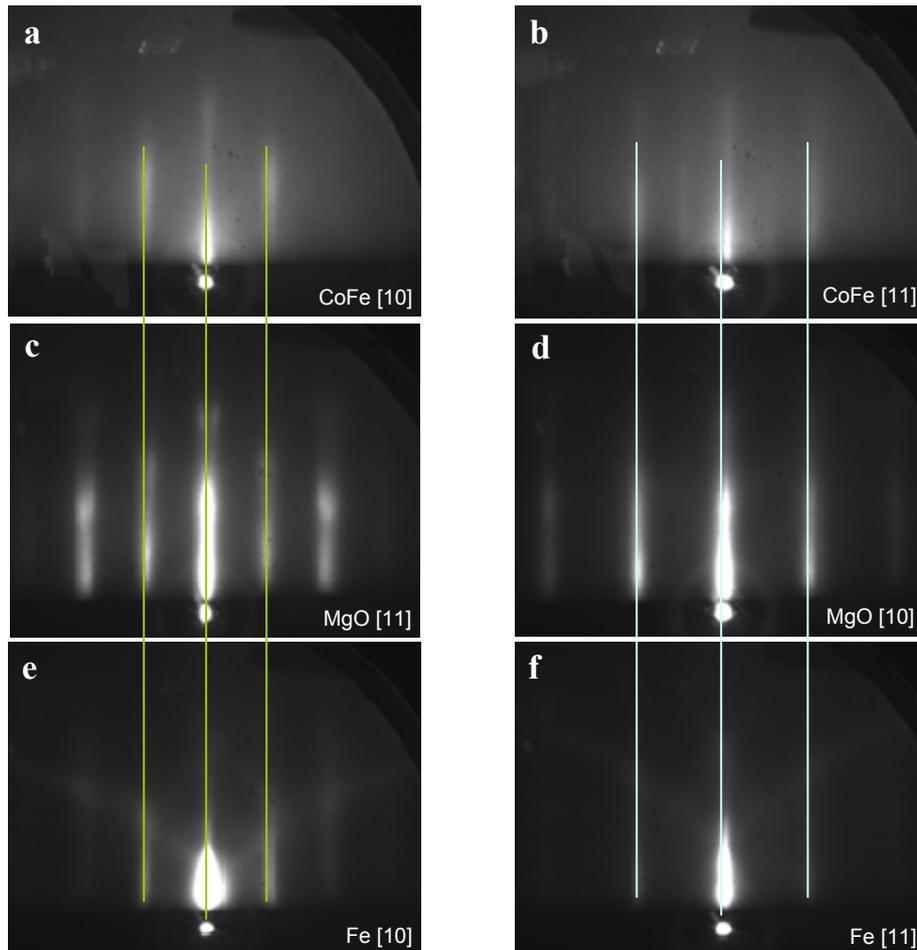


Figure II-18 – Corrélation des directions cristallographiques observées par diffraction RHEED pour la couche de CoFe cristallisé ((a), (b)) avec celles des couches sous-jacentes de MgO ((c), (d)) et de Fe ((e), (f)).

Enfin, la couche de CoFe(B) est magnétiquement durcie avec une bicouche Fe/Co : une première couche de Fe de 15 nm est tout d'abord déposée puis recuite à 500°C pendant 15 min, puis une couche de Co de 40 nm d'épaisseur est ajoutée à 100°C. Notons que les épaisseurs choisies pour cette bicouche ont été optimisées afin d'obtenir des champs de retournement bien distincts pour les deux électrodes, comme nous le verrons plus loin, dans le Chapitre III. La caractérisation structurale par microscopie électronique en transmission des échantillons ainsi élaborés fait l'objet de la section suivante.

II - 2.2 Caractérisation *ex situ* des échantillons Fe/MgO/CoFe(B)

Nous nous intéressons ici plus particulièrement à la cristallinité de la couche de CoFe(B), puisque le reste de la structure a d'ores et déjà été amplement étudié [1, 2]. Des images de la structure complète de l'échantillon obtenues par microscopie électronique en transmission (TEM), et à haute résolution (HRTEM) figurent respectivement sur la Figure II-19 et la Figure II-20. Ces images ont été réalisées au laboratoire CEMES à Toulouse.

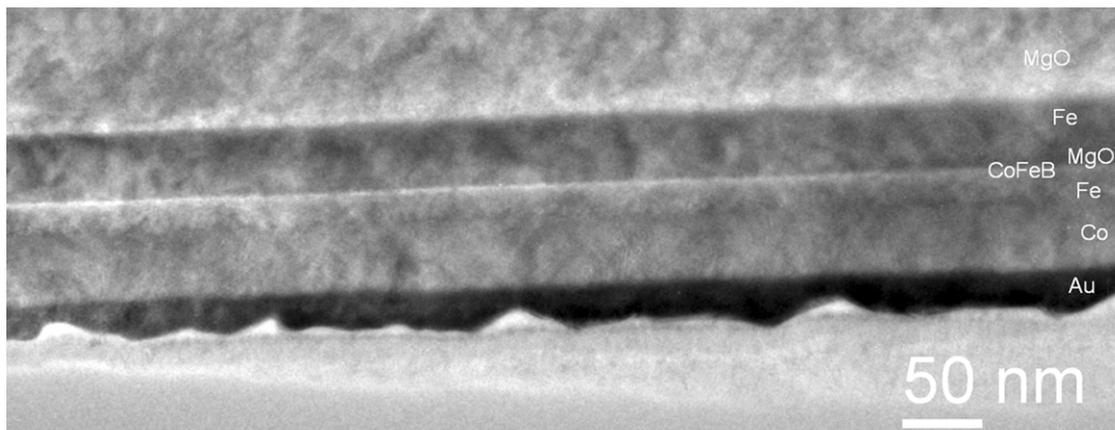


Figure II-19 – Image obtenue par TEM en champ clair de l'empilement MgO//MgO/Fe/MgO/CoFe(B)/Fe/Co/Au.

On observe sur la Figure II-19 des interfaces abruptes et une barrière de MgO continue, sur toute la longueur d'échantillon étudiée. L'image en haute résolution de la Figure II-20 permet de cibler notre analyse sur l'électrode de CoFe(B), la barrière de MgO, et l'interface entre ces deux matériaux. Cette image montre une électrode de Fe inférieure (en haut de l'image) et une barrière de MgO présentant une bonne cristallinité. La situation est toutefois différente pour l'électrode de CoFeB déposée sur la barrière de MgO. En effet, cette électrode présente des zones cristallisées, où l'on observe la continuité des rangées atomiques du MgO et du CoFe (par exemple tout à gauche de la Figure II-20), mais également de larges régions où le matériau semble demeurer amorphe (milieu de l'image) ; cette observation va donc dans le même sens que la présence du fond diffus observé précédemment sur les clichés RHEED après le recuit de la couche (Figure II-17 (a) et (b)).

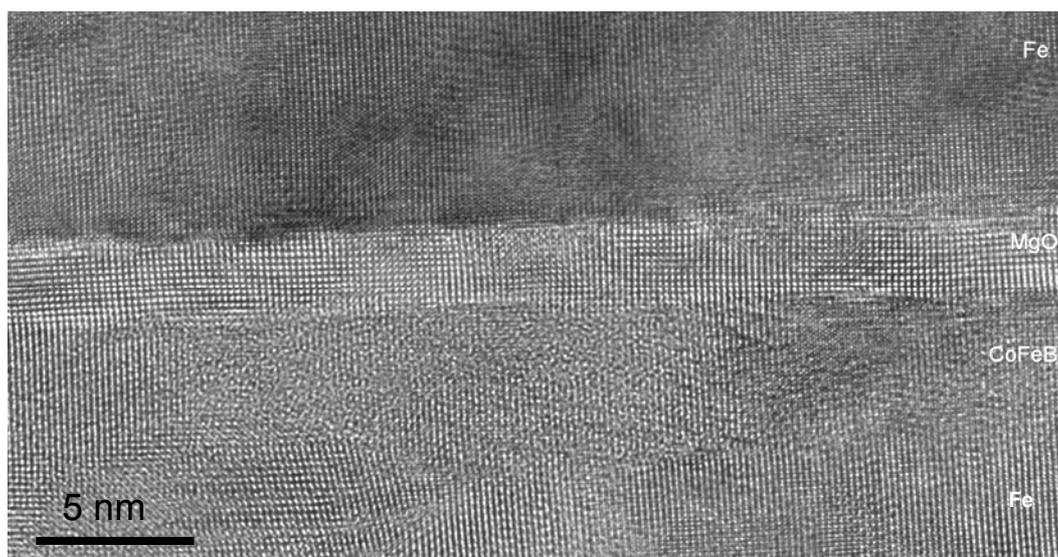


Figure II-20 – Image TEM haute résolution d'une zone de l'échantillon précédent.

Enfin, dans la littérature, plusieurs articles mentionnent la ségrégation du bore à l'interface entre l'électrode supérieure de CoFeB et la barrière de MgO, sans toutefois préciser clairement la forme –oxydée ou métallique– sous laquelle s'y trouve le bore [137–140]. Sur le cliché en haute résolution de la Figure II-20, le bore sous sa forme métallique n'est pas discernable, et on ne distingue par ailleurs pas d'indices de la présence d'une couche d'un oxyde de B (couche claire à l'interface MgO/CoFeB).

Nous avons donc élaboré et caractérisé d'un point de vue structural des échantillons comportant une barrière et une électrode épitaxiées, et une seconde électrode de CoFeB déposée par pulvérisation cathodique. Nous avons montré que dans ces conditions, l'électrode de CoFeB initialement amorphe cristallise dans la structure *bcc* en conservant les directions cristallographiques des couches sous jacentes. Toutefois, une analyse de microscopie électronique en transmission à haute résolution a montré que la cristallisation du CoFe demeurait incomplète, malgré une température et un temps de recuit conséquents.

II - 3 Jonctions Fe/MgO/Fe à structure cristalline texturée (001)

Des échantillons Fe/MgO/Fe à texture (001) ont été élaborés dans le bâti d'épitaxie par jets moléculaires, en suivant une procédure de dépôt similaire à celle employée pour la croissance d'échantillons monocristallins. Cette section comporte deux parties ; la première concerne l'élaboration des échantillons texturés, et la seconde décrit les diverses caractérisations structurales menées sur un échantillon présentant la même texture (001), mais dont l'empilement a été simplifié.

II - 3.1 Croissance des échantillons et caractérisation *in situ*

II - 3.1.1 Préparation du substrat de Si(001)

Malgré un désaccord paramétrique très élevé (-22.6%), plusieurs méthodes ont été reportées dans la littérature pour faire croître sur un substrat de Si(001) du MgO avec une orientation (001), ce MgO servant de base à la réalisation d'empilements Fe/MgO/Fe cristallisés.

Ainsi, quelques groupes sont parvenus à élaborer des couches de MgO épitaxiées sur Si(001) selon la relation d'épitaxie $\text{Si}(001)[100] \parallel \text{MgO}(001)[100]$, en dépôt d'une couche amorphe de 1 à 2 nm d'épaisseur se formant à l'interface entre la couche de MgO et le substrat de Si [141–143]. D'autres, et ce sont précisément ces résultats qui nous intéressent, ont pu obtenir des couches de MgO à forte texture (001) sur ces mêmes substrats. Ainsi, Kohn *et al.* [144] ont montré que dans le cas d'un dépôt sur Si/SiO₂ amorphe, le SiO₂ étant obtenu

par un traitement thermique sous atmosphère d'oxygène du substrat, la couche de MgO était cristallisée sur toute son épaisseur avec une texture (001) préférentielle. Enfin, une méthode de préparation du substrat très simple, employée par J. Bernos au cours de ses travaux de thèse [145], permet d'obtenir des couches de MgO continues, planes et très bien texturées avec une orientation (001) (Figure II-21). Cette méthode consiste à déposer le MgO sur du silicium amorphisé par décapage de la couche d'oxyde SiO_2 natif présent en surface des substrats de Si(001).

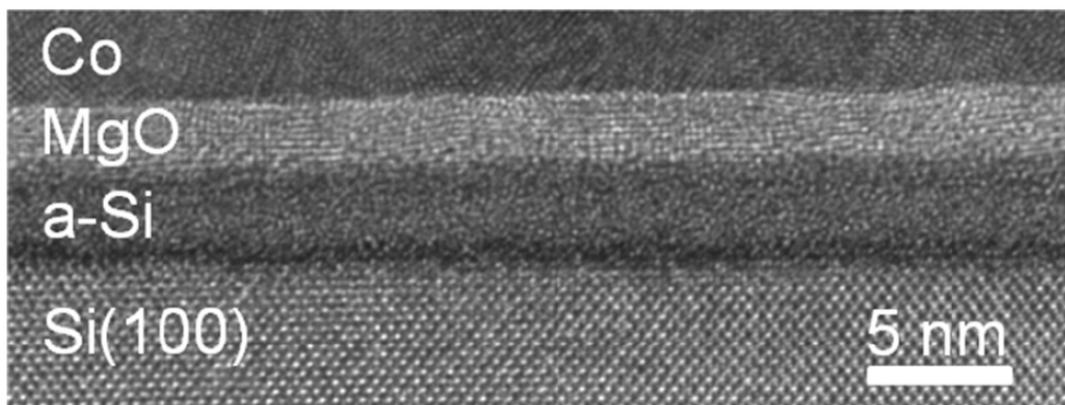


Figure II-21 – Agrandissement d'un cliché de microscopie électronique en transmission d'une coupe d'un échantillon de structure Si/Si-a/MgO/Co/Cu/Co après recuit à 300°C. D'après [145].

Ainsi, dans les deux cas présentés où le MgO présente la texture (001) recherchée, il a été déposé sur des couches amorphes, de Si ou SiO_2 . Le parallèle avec les barrières de MgO à texture (001) dans les JTM CoFeB/MgO/CoFeB, où les couches de CoFeB sont amorphes après dépôt, est immédiat. Il apparaît donc que la croissance de quelques nanomètres de MgO sur une couche amorphe favorise la cristallisation de cet isolant avec une texture fortement orientée suivant la direction (001). On peut donc supposer que, comme dans le cas des JTM polycristallines à base de MgO et de CoFeB, la couche de MgO à texture (001) déposée comme couche tampon sur les substrats de Si(001) agira comme une matrice de nucléation et imposera sa texture (001) aux couches déposées ultérieurement.

Afin de tenter l'élaboration de JTM Fe/MgO/Fe texturées, nous préparerons donc les substrats de Si(001) comme dans les travaux de J. Bernos ; cette technique est en effet bien maîtrisée au laboratoire, et permet l'obtention de couches de MgO texturées de bonne qualité cristallographique. La section suivante décrit les conditions expérimentales adoptées pour cette élaboration.

II - 3.1.2 Croissance et caractérisation *in situ* d'empilements Fe/MgO/Fe à texture (001)

Les substrats sont initialement préparés dans un bâti de pulvérisation cathodique, où la couche d'oxyde de Si présente en surface est décapée à l'aide d'un plasma Argon radiofréquence d'une puissance de 100W, sous une pression de 8.10^{-3} Torr ; une couche de MgO de 5 nm d'épaisseur est ensuite déposée par pulvérisation cathodique. Les substrats sont alors transférés dans le bâti d'épitaxie par jets moléculaires, où l'on peut caractériser les couches et l'effet des recuits par diffraction RHEED. Le cliché RHEED de la couche de MgO déposée par pulvérisation cathodique présenté sur la Figure II-22 (a) présente des taches de diffraction sur un fond très diffus, témoignant de la présence de grains cristallisés avec une orientation préférentielle. Après un recuit à 300°C pendant 15 min, on observe une tache centrale plus intense, signe d'une amélioration de la qualité cristalline de la couche de MgO (Figure II-22 (b)). Par ailleurs, la figure de diffraction ne change pas si l'on tourne l'échantillon sur lui-même à angle d'incidence constant : la structure planaire de l'échantillon est donc isotrope.

Après refroidissement complet de l'échantillon, une première électrode de Fe de 30 nm d'épaisseur est déposée (Figure II-22 (c)) : cette couche est polycristalline, avec des traces de la texture (001). Un recuit de 25 min à 500°C permet de cristalliser cette couche avec la texture (001) recherchée (Figure II-22 (d)) : en effet, sur le cliché (d), les anneaux ont disparu, et pour toutes les orientations de l'échantillon, on n'observe que les raies caractéristiques des directions cristallographiques [10] et [11] du réseau de surface du Fe(001) monocristallin, comme on peut le constater sur la Figure II-22 (g). En comparant sur cette figure les clichés des deux types d'échantillons, texturé et monocristallin, on peut également remarquer un fond diffus plus important et un moins bon contraste dans le cas de l'échantillon texturé (en haut). Ces deux aspects révèlent une rugosité de surface plus importante dans le cas de l'échantillon déposé sur Si.

La surface de l'échantillon reste néanmoins suffisamment lisse à l'échelle de cohérence du faisceau RHEED pour observer des oscillations d'intensité durant la croissance des premières couches de MgO sur la couche de Fe texturée (Figure II-22 (h)). Ainsi, même si l'on ne peut pas distinguer les oscillations durant toute la croissance comme dans le cas du MgO sur Fe monocristallin (Figure II-22 (h), courbe inférieure), il est possible d'estimer l'épaisseur de la barrière à (11.5 ± 0.5) plans atomiques. Par ailleurs, l'épitaxie de la barrière de MgO sur la couche de Fe texturée est confirmée par la parfaite similitude entre la texture observée sur le cliché de la couche de MgO (Figure II-22 (e)) et celle de la première électrode de Fe (Figure II-22 (d)).

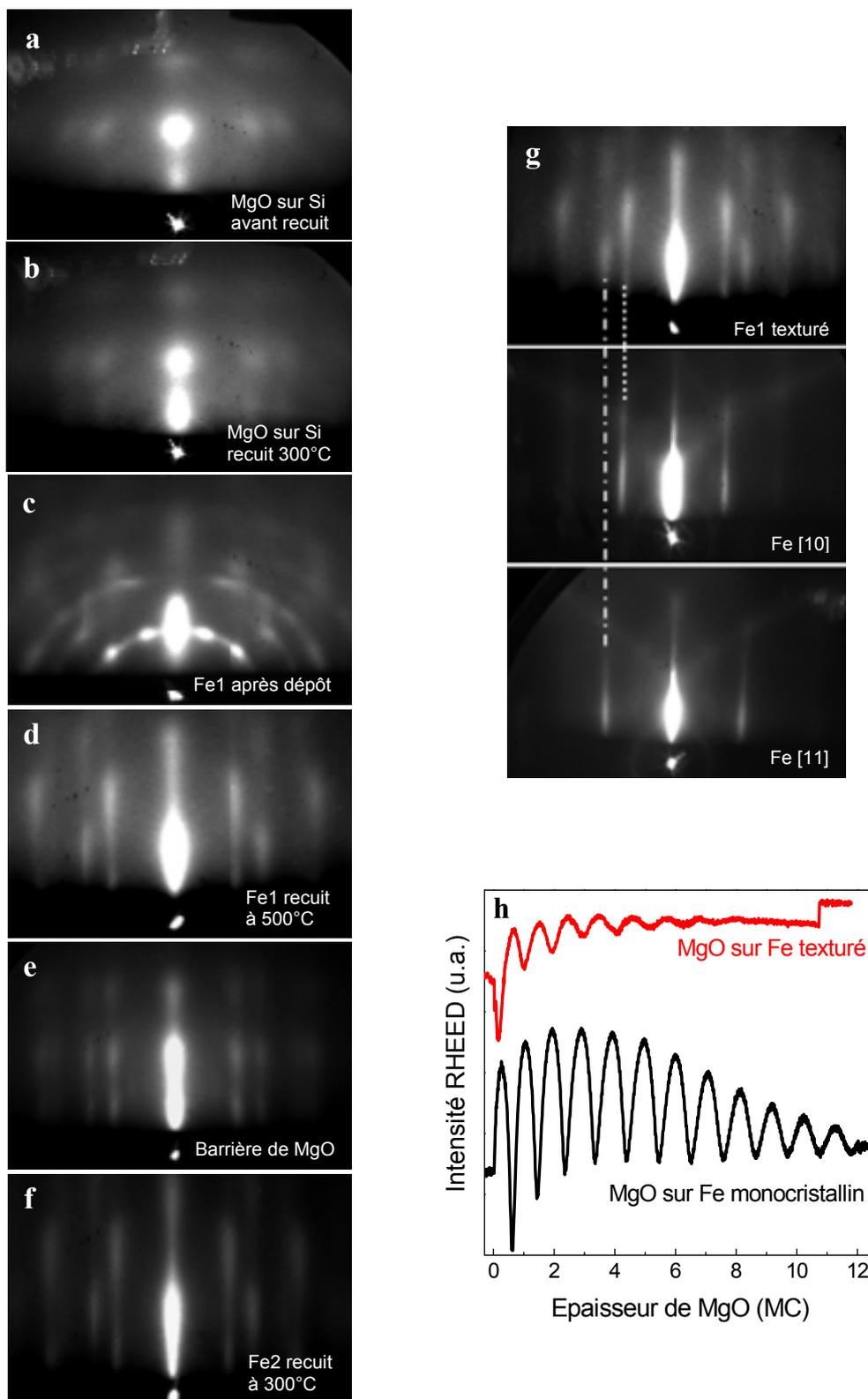


Figure II-22 – (a) à (f) : Suivi par diffraction RHEED de la croissance d'une JTM Fe/MgO/Fe à texture (001).
 (g) : Identification des raies de diffraction RHEED sur le cliché de la première électrode de Fe texturée (haut)
 grâce aux clichés de Fe monocristallin pris suivant deux orientations cristallographiques différentes (milieu et
 bas).
 (h) : Comparaison d'oscillations d'intensité RHEED lors de la croissance du MgO sur une électrode de Fe
 texturée (courbe rouge) ou monocristalline (en noir)

Une seconde électrode de Fe est enfin déposée sur la barrière de MgO ; cette couche reproduit, après recuit à 300°C durant 20 min, la texture (001) des couches sous-jacentes, comme en témoigne la Figure II-22 (f). Enfin, une couche de Co de 30 nm d'épaisseur est déposée pour durcir magnétiquement l'électrode supérieure. L'empilement est alors achevé avec le dépôt d'une couche de protection d'Au.

Ces observations conduisent à considérer que dans ces échantillons, la structure granulaire de chaque couche reproduit celle de la couche sous-jacente grâce à une épitaxie pour chaque grain des couches de Fe et de MgO, suivant la relation $\text{Fe}(001)[100] \parallel \text{MgO}(001)[110]$. Cela résulte en une structure colonnaire cohérente –du point de vue de la structure cristalline– à travers l'empilement, les grains étant orientés aléatoirement les uns par rapport aux autres. Ce type de structure en colonnes a été précédemment observé par Choi *et al.* [146], qui y font référence comme une « *grain-to-grain epitaxy* ». Les auteurs de cet article avaient alors observé que lors du recuit *ex situ* de jonctions tunnel magnétiques CoFeB/MgO/CoFeB, la cristallisation des électrodes amorphes de CoFeB suivait exactement la texture imposée par la barrière de MgO.

II - 3.2 Caractérisation *ex situ* d'échantillons texturés

Des mesures de diffraction des rayons X, ainsi qu'une étude de microscopie électronique en transmission ont été effectuées sur un échantillon élaboré exactement dans les conditions décrites précédemment, ne comportant que la première électrode de Fe de 30 nm d'épaisseur, et recouvert d'une couche de protection de MgO, afin de simplifier l'analyse des résultats. Les deux techniques utilisées sont complémentaires, l'une donnant des informations moyennées sur tout l'échantillon (diffraction des R. X), l'autre étant une sonde plus locale (TEM) ; par ailleurs, le recoupement des informations obtenues par ces deux méthodes apporte un certain crédit aux résultats. Ces deux techniques étant extrêmement répandues, nous nous contenterons de présenter les résultats des mesures et leur interprétation ; pour de plus amples informations concernant l'instrumentation ou la physique des phénomènes, le lecteur pourra par exemple consulter les chapitres dédiés à ces méthodes dans les ouvrages [147, 148].

II - 3.2.1 Etude par diffraction des rayons X

Différents types de mesures ont été effectués par diffraction des rayons X, afin de confirmer la texture (001) de l'échantillon, de révéler une éventuelle orientation privilégiée des grains dans le plan de croissance, et finalement de déterminer la taille de ces grains.

Dans un premier temps, des mesures en configuration dite $\theta - 2\theta$ avec un vecteur de diffusion perpendiculaire au plan de l'échantillon nous ont permis de vérifier que la direction de croissance était bien la direction [001] : en effet, comme on peut le constater sur le spectre

de la Figure II-23, un seul pic apparaît pour le Fe, correspondant à la diffraction des rayons X sur les familles de plans (002) du Fe cubique centré, les pics correspondants aux plans (110), (211) et (220) étant absents. Une petite bosse est toutefois présente, à un angle de 47-48° ; son origine n'a pas pu être clairement identifiée, mais elle pourrait correspondre au signal du Si amorphe, sur lequel le MgO est déposé.

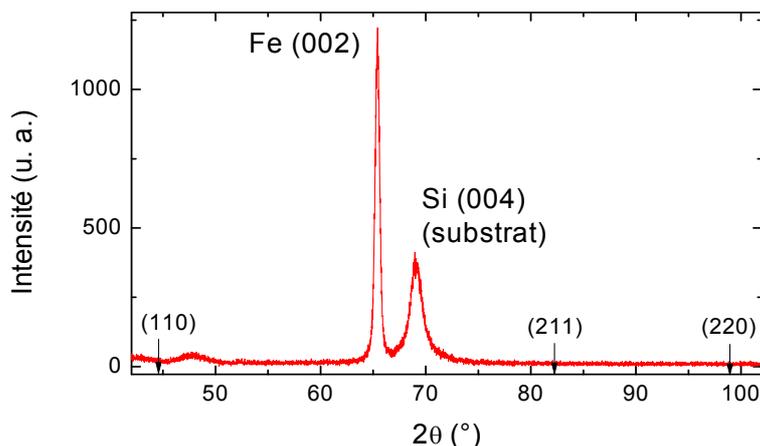


Figure II-23 – Spectre XRD sur un échantillon de structure Si/a-Si/MgO/Fe/MgO, en configuration hors plan.

Par ailleurs, pour un vecteur de diffusion dans le plan de l'échantillon, aucun pic n'a pu être mis en évidence lors d'un scan en ϕ ¹¹ sur les réflexions correspondant à la famille de plans (110) du Fe. Ainsi, la répartition des directions cristallographiques des grains dans le plan de l'échantillon est bien équiprobable : cela confirme ainsi l'isotropie dans le plan de l'échantillon déjà révélée par l'isotropie des clichés RHEED.

Enfin, à partir de la largeur à mi-hauteur H du pic correspondant à la diffraction des plans (110) ayant une composante normale à la surface de l'échantillon, nous avons pu évaluer la taille des cristallites de Fe dans le plan en appliquant la formule de Scherrer¹² :

$$D = \frac{k \lambda}{\sqrt{H^2 - s^2} \cdot \cos \theta} \quad (\text{II-7})$$

¹¹ Lors de ce type de mesure, à angles d'incidence et de sortie fixes, l'échantillon tourne sur lui-même autour de l'axe perpendiculaire à sa surface ; ainsi, pour un monocristal à maille cubique, en réglant les angles d'incidence et de sortie de manière à observer les réflexions sur les plans (110), quatre pics sont attendus lors d'un scan en ϕ , à 90° d'intervalle.

¹² Cette formule permet, lorsque les cristallites ont une taille suffisamment petite, typiquement inférieure à 100 nm, de déterminer une taille moyenne de cristallites suivant la direction normale aux plans diffractant, à partir de la largeur à mi-hauteur des pics de diffraction. De plus amples détails concernant l'utilisation de la relation de Scherrer peuvent être trouvés dans la référence [147].

Avec un facteur géométrique $k = 0.89$, la longueur d'onde $\lambda = 1.5405 \text{ \AA}$, $H = 0.54^\circ$, un angle de diffusion $\theta = 22.3^\circ$, et la largeur instrumentale s déterminée à partir du pic (220) d'un substrat de silicium et égale à 0.42° , on estime la taille latérale des grains de Fe à environ 25 nm.

Le cliché TEM de la Figure II-21 suggère que la taille des grains de MgO déposés directement sur la couche de Si amorphe est plutôt de l'ordre de 5 nm, donc bien inférieure à cette taille de 25 nm, que nous obtenons à l'aide de la relation de Scherrer. Ces deux observations ne sont pourtant pas incompatibles. En effet, le cliché RHEED (c) de la Figure II-22 témoigne d'une couche de Fe polycristalline, avec néanmoins une orientation de grains qui se dessine suivant la direction (001). On peut alors concevoir que les grains de MgO servent de points de nucléation à des grains de Fe désorientés, dont la taille est de l'ordre de celle des grains de MgO, et que le recuit à 500°C favorise la croissance des grains dont l'orientation est (001) au détriment des autres orientations, comme le montre le cliché RHEED de la couche de Fe recuite (Figure II-22 (d)).

La formule de Scherrer permet d'estimer une taille moyenne de grains ; l'étude TEM présentée au paragraphe suivant va permettre d'évaluer la distribution en taille des cristallites de Fe.

II - 3.2.2 Etude par microscopie électronique en transmission

Ces mesures ont été effectuées sur un échantillon préparé par microclivage : une fine bande de la couche de Fe a été prélevée avec une pointe diamant, puis déposée sur une grille de microscopie électronique. L'échantillon ainsi obtenu est replié sur lui même, du fait du relâchement des contraintes imposées par le substrat, comme on peut le voir sur la micrographie de la Figure II-25 (a).

Le cliché de diffraction obtenu sur cette bande d'échantillon (Figure II-24) présente des anneaux concentriques, caractéristiques de la présence de cristallites désorientées du Fe *bcc*. L'aspect pointé de ces anneaux reflète le caractère local de la mesure : sur l'extension de la zone sondée, toutes les orientations possibles des cristallites ne sont pas représentées. Aucune orientation préférentielle n'apparaît néanmoins, puisque les taches de diffraction sont réparties à peu près uniformément le long des anneaux.

Nous avons également réalisé sur ce même échantillon des micrographies en fond noir (Figure II-25 (a) et (b)), correspondant aux taches de diffraction entourées sur la Figure II-24. On peut y observer des cristallites réparties aléatoirement dans l'échantillon, et dont la taille présente une dispersion assez importante. La taille moyenne estimée de ces cristallites se situe autour de 10 à 20 nm.

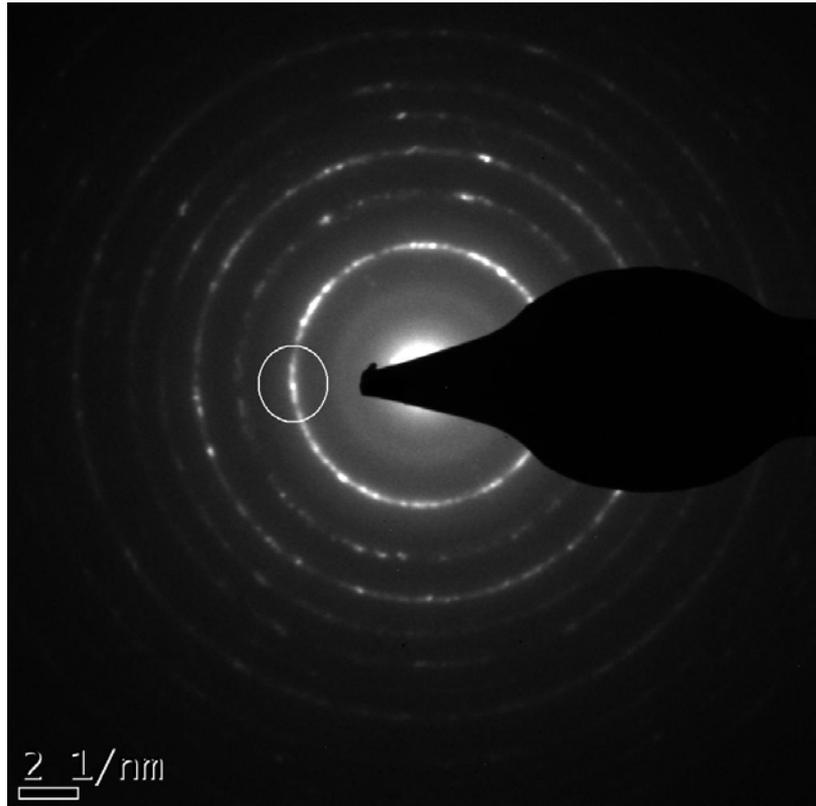


Figure II-24 – Cliché de diffraction TEM obtenu sur une couche de Fe à texture (001).

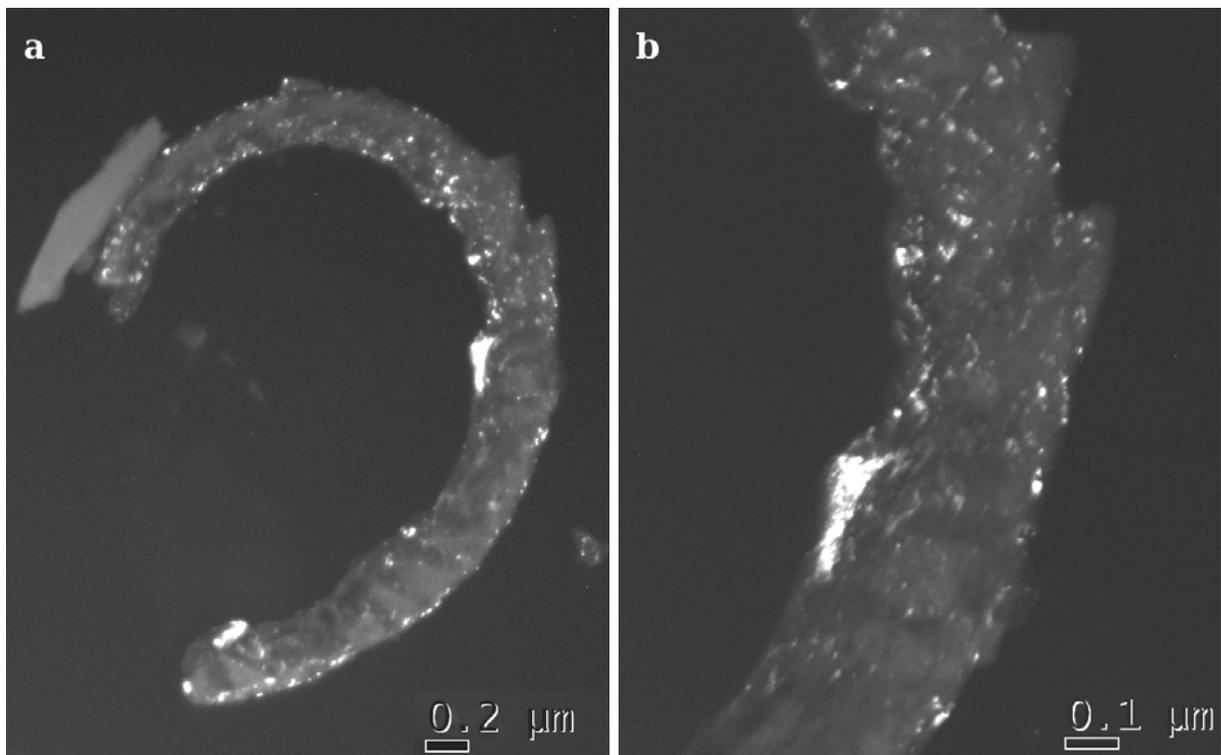


Figure II-25 – Clichés TEM de l'échantillon en champ noir, à deux grossissements différents.

Enfin, des clichés en fond clair ont également été réalisés ; sur celui présenté sur la Figure II-26, on peut distinguer deux zones présentant des franges de moiré (zones entourées). L'extension spatiale de ces figures, qui est de l'ordre de la taille des grains, est de 15 à 25 nm.

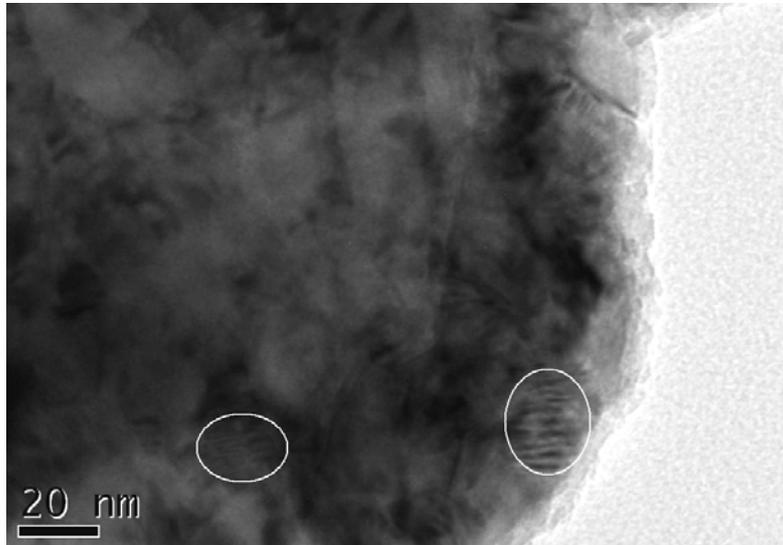


Figure II-26 – Cliché TEM en fond clair. Les structures entourées sont des franges de moiré, issues d'interférences entre deux cristallites voisines dont les orientations cristallographiques sont proches.

En conclusion, les deux techniques d'analyse *ex situ* ont confirmé la texture (001) des échantillons déposés sur Si ; aucune orientation préférentielle des cristallites dans le plan n'a par ailleurs été détectée. L'analyse des clichés TEM a également montré une dispersion en taille des cristallites relativement importante ; il est cependant possible d'isoler des grains confirmant la taille de 25 nm déterminée par diffraction des rayons X à l'aide de la formule de Scherrer.

II - 4 Conclusion

Nous avons donc dans ce chapitre présenté les différents systèmes que nous étudierons dans la suite de ce manuscrit. Grâce à diverses techniques, aussi bien *in situ* (diffraction RHEED) qu'*ex situ* (microscopie électronique en transmission ou TEM, diffraction des rayons X), nous avons pu caractériser ces échantillons d'un point de vue cristallographique et structural.

Ainsi, dans le cas d'empilements monocristallins, nous avons élaboré des échantillons où l'interface inférieure pouvait être modulée, par la présence de carbone ou l'insertion d'îlots de fer de hauteur monoatomique. Dans le premier cas, le carbone présent en surface est issu du

substrat de MgO et ségrège à travers l'électrode de fer inférieure lors de son recuit ; sa présence permet de modifier la structure électronique de l'interface de manière très localisée.

Dans le second cas, les îlots sont obtenus en déposant une fraction de monocouche de fer à la surface ; la taille des îlots en surface est ajustable simplement, en faisant varier le taux de recouvrement de la surface, de 0 à 1 monocouche. Des effets de confinement latéral dans les îlots, ou d'hybridation en bord de marches, susceptibles de se produire peuvent donc être modulés en fonction de la topographie de la surface. Nous avons également montré que des recouvrements de Fe inférieurs à une monocouche n'engendrent pas de défauts supplémentaires dans une barrière de MgO, que son épaisseur soit faible (trois ou quatre plans atomiques) ou plus importante (dix à douze plans atomiques). Les éventuelles différences observées entre des échantillons Fe/MgO/Fe à interfaces différentes ne pourront donc pas être imputées à un simple effet structural, mais seront plutôt relatives à des effets de structure électronique.

Nous avons également élaboré des échantillons à architecture hybride, où une électrode de CoFeB est déposée par pulvérisation cathodique sur un empilement {électrode / barrière} épitaxié. La caractérisation de cet échantillon a montré qu'un recuit *in situ* permet la cristallisation de la couche de CoFeB dans une phase *bcc*, suivant les relations d'épitaxie Fe(001)[100] || MgO(001)[110] || CoFe(001)[100]. Cette cristallisation n'est cependant que partielle, des zones non cristallisées ayant été révélées par des clichés TEM à haute résolution.

Enfin, des jonctions tunnel magnétiques Fe/MgO/Fe à texture (001) ont été élaborées par épitaxie par jets moléculaires grâce à l'emploi de substrats de Si(001) spécifiquement préparés. Les analyses *in situ* et *ex situ* ont montré une grande isotropie dans le plan des propriétés structurales des échantillons. Elles révèlent de plus une structure de type colonnaire, où la cohérence cristalline est respectée à travers l'empilement à l'échelle latérale de la taille d'un grain, estimée à 25 nm en moyenne.

Chapitre III – Transport polarisé en spin dans des JTMs à barrière épaisse de MgO

Les jonctions tunnel magnétiques (JTMs) épitaxiées Fe/MgO/Fe(001) sont des systèmes amplement reconnus comme modèles pour l'étude du transport tunnel polarisé en spin et en symétrie. Leurs performances expérimentales en termes de magnétorésistance tunnel (TMR) demeurent néanmoins très inférieures non seulement à celles prédites par les travaux théoriques, mais aussi à celles atteintes dans les systèmes CoFeB/MgO/CoFeB texturés, dont la qualité de la structure cristalline est pourtant bien inférieure à celle des JTMs Fe/MgO/Fe.

Nous nous proposons donc au cours de ce chapitre d'étudier l'influence de l'ordre cristallin sur les performances des JTMs, en considérant des systèmes présentant des qualités structurales intermédiaires entre celle –« faible »– des jonctions polycristallines et celle –« très élevée »– des JTMs monocristallines. L'élaboration des différents échantillons, ainsi que leurs propriétés structurales ont été décrites dans le Chapitre II ; dans le présent chapitre, nous présenterons et analyserons leurs propriétés magnétiques et de transport, en nous appuyant sur l'étude des dépendances en tension et en température.

En premier lieu, nous nous intéresserons donc à des jonctions à architecture monocristalline Fe/MgO/CoFeB, dans lesquelles la cristallisation de la couche de CoFeB n'est pas complète. Nous étudierons dans un deuxième temps les propriétés d'échantillons Fe/MgO/Fe à texture (001). Nous considérerons ensuite des JTMs monocristallines présentant un désordre interfacial contrôlé, qui est introduit à l'interface Fe/MgO inférieure par le biais d'îlots de fer de hauteur monoatomique. Enfin, la confrontation des différents résultats établis au long du chapitre permettra d'extraire les caractéristiques communes à ces différents systèmes.

III - 1 Détails expérimentaux

III - 1.1 Structuration des échantillons

La structuration des JTMs a eu lieu au laboratoire, à partir d'échantillons de quelques centimètres carrés de surface –typiquement de 2cm*2cm pour les échantillons élaborés sur substrats de MgO(001)–, suivant un processus impliquant plusieurs étapes de photolithographie et de gravure ionique, et dont une description détaillée figure dans la thèse de J. Faure-Vincent [1]. A l'issue des étapes de microfabrication, les échantillons comportent des jonctions carrées de tailles latérales variant de 10 à 80 μm ; le nombre et la répartition de ces jonctions dépendent du jeu de masques de lithographie optique choisi. La Figure III-1 présente la disposition obtenue avec le jeu de masques le plus couramment utilisé au cours de cette thèse. Le long d'une ligne (suivant x) les jonctions sont de même taille latérale, et cette taille augmente lorsqu'on descend dans une colonne (suivant y). Cette disposition des jonctions est en particulier très utile pour mesurer l'évolution des caractéristiques de transport lorsqu'un paramètre (l'épaisseur d'une couche par exemple) varie le long de la direction x .

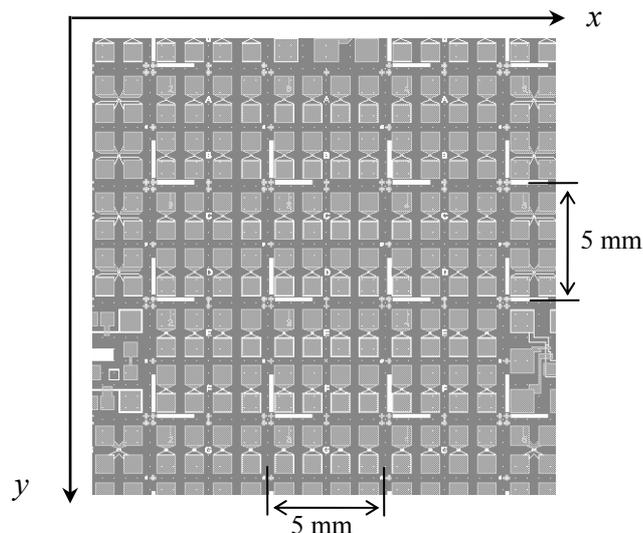


Figure III-1 – Représentation schématique de la disposition des jonctions dans les échantillons structurés.

III - 1.2 Mesures de magnéto-transport

Ces mesures sont notre principal outil d'étude des jonctions tunnel magnétiques, puisqu'elles permettent de déterminer les caractéristiques électriques en fonction de l'état magnétique du dispositif.

Les mesures électriques ont été réalisées en configuration deux pointes, à l'aide de sources de tension Keithley 2400 ou 2600, interfacées sous LabVIEW. Dans tout ce chapitre, la

convention de polarisation de la tension utilisée pour la présentation des résultats est telle que la borne + de la source de tension est reliée à l'électrode supérieure de la jonction ; cela signifie qu'en tension positive, les électrons sont injectés depuis l'électrode inférieure vers l'électrode supérieure (Figure III-2). De plus, afin de caractériser la réponse en tension des échantillons en fonction de leur configuration magnétique, ceux-ci sont placés dans un champ magnétique, appliqué dans le plan de l'échantillon et, sauf mention contraire, suivant sa direction de facile aimantation.

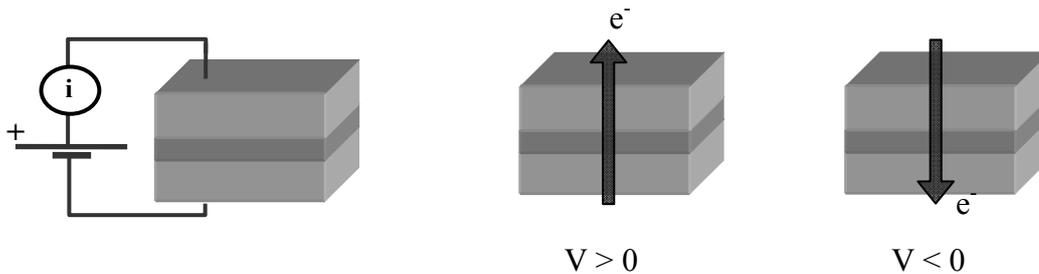


Figure III-2 – Représentation schématique de la convention de signe choisie.

Les mesures à basse température présentées dans ce chapitre ont été pour la plupart réalisées sur un cryostat à He gazeux fonctionnant en boucle fermée. Ce type de cryostat à hélium gazeux est avantageux par rapport aux cryostats à hélium liquide dans la mesure où il permet de s'affranchir des transferts d'hélium durant les mesures ; il présente toutefois une contrepartie importante, concernant la température minimale atteinte. Ainsi, dans ce dispositif, les mesures ont été réalisées jusqu'à une température minimale de 11 K. Les mesures effectuées à plus basse température (jusqu'à 5 K) présentées dans la dernière section du chapitre ont été réalisées dans un cryostat à hélium liquide (PPMS¹, de chez Quantum Design), au moyen d'une canne de mesure de résistance et de caractéristique courant-tension conçue par S. Suire.

III - 2 Jonctions tunnel à architecture hybride Fe/MgO/CoFeB

Nous nous intéressons dans cette partie à l'étude des propriétés magnétiques et de transport d'échantillons à architecture dite hybride (Figure III-3), la partie inférieure de cet échantillon étant monocristalline, et l'électrode supérieure une électrode de CoFeB déposée par pulvérisation cathodique. Cette couche de CoFeB, amorphe après dépôt, est partiellement cristallisée par un recuit *in situ* (voir Chapitre II, § II - 2).

¹ PPMS : *Physical Property Measurement System*

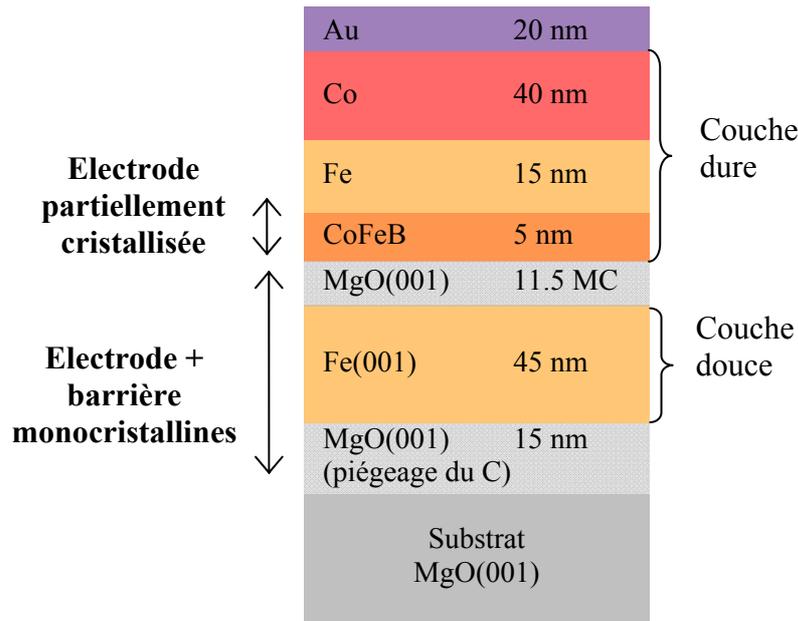


Figure III-3 – Rappel de la structure des échantillons à architecture hybride étudiés.

III - 2.1 Réponse magnétique

Les propriétés magnétiques de l'échantillon ont été mesurées à température ambiante par magnétométrie vectorielle à échantillon vibrant (ou VSM²), permettant la mesure simultanée des composantes longitudinale et transverse de l'aimantation, relativement à la direction d'application du champ magnétique.

Des mesures de ces deux composantes à rémanence, en fonction de la direction du champ planaire appliqué pour saturer l'aimantation de l'échantillon, ont été réalisées au préalable, d'une part sur un échantillon comportant la couche dure CoFeB/Fe/Co seule, et d'autre part sur l'échantillon complet, afin de caractériser les anisotropies magnétocristallines de ces deux systèmes. Les Figure III-4 (a) et (b) représentent les distributions angulaires des composantes longitudinale et transverse de l'aimantation rémanente, obtenues sur les deux échantillons. Ces mesures montrent que l'anisotropie magnétocristalline d'ordre 4, ainsi que l'orientation des axes d'anisotropie caractéristiques du Fe(001) monocristallin sont conservées à la fois pour la couche dure CoFeB/Fe/Co et pour l'empilement complet Fe/MgO/CoFeB/Fe/Co. On peut également remarquer pour les deux distributions une très haute symétrie, indiquant une équivalence stricte des deux axes de facile aimantation $[100]_{\text{Fe}}$ et $[010]_{\text{Fe}}$, et des deux axes de difficile aimantation $[110]_{\text{Fe}}$ et $[1-10]_{\text{Fe}}$.

² VSM : *Vibrating Sample Magnetometer*

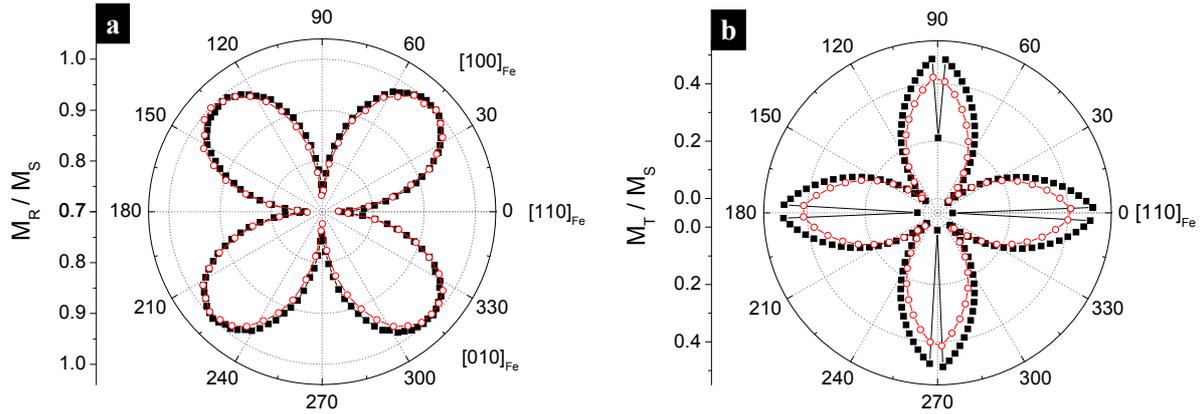


Figure III-4 – Dépendances angulaires des composantes longitudinale M_R (a) et transverse M_T (b) de l'aimantation à rémanence pour l'empilement Fe/MgO/CoFeB/Fe/Co complet (-■-) et la couche dure seule (-○-).

Suite à cette détermination des directions d'anisotropie magnétocristalline, les cycles d'hystérésis de l'échantillon complet ont pu être mesurés précisément suivant les axes de facile aimantation $[100]$ et $[010]$ (Figure III-5 (a)), et de difficile aimantation $[110]$ (Figure III-5 (b)). La Figure III-5 (a) confirme bien l'équivalence des deux axes de facile aimantation $[100]_{Fe}$ et $[010]_{Fe}$. Elle montre par ailleurs que les retournements des deux électrodes sont découplés et abrupts, et se produisent vers 10 Oe pour la couche douce et 120 Oe pour la couche dure ; la présence d'un plateau où l'aimantation est constante ($M/M_S = 0.1$) sur une large gamme de champs indique qu'une configuration antiparallèle des aimantations des deux couches peut être nettement stabilisée suivant un axe facile. A l'inverse, suivant la direction $[110]_{Fe}$ (Figure III-5 (b)), les retournements des deux couches sont plus progressifs, et on ne stabilise par ailleurs pas d'état antiparallèle.

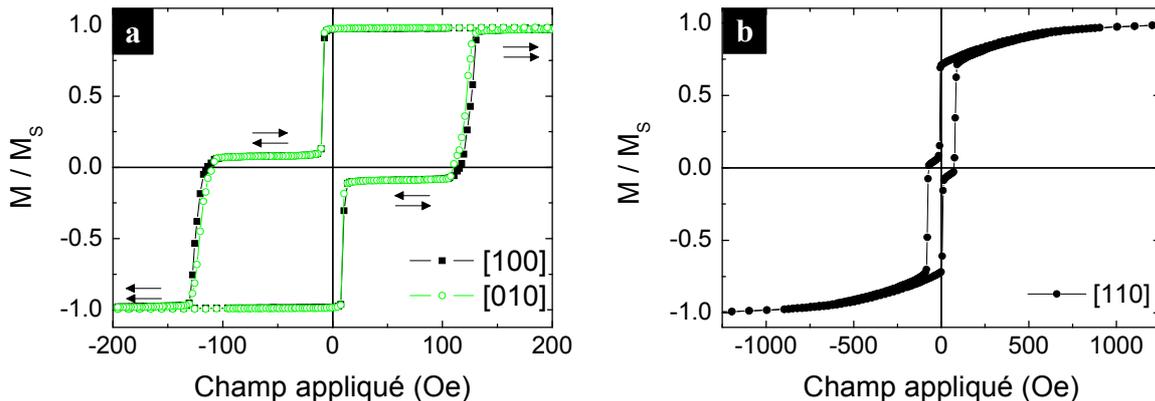


Figure III-5 – Cycles d'aimantation pour un échantillon de structure Fe/MgO/CoFeB/Fe/Co/Au, (a) suivant les axes $[100]_{Fe}$ et $[010]_{Fe}$ de facile aimantation, et (b) suivant l'axe $[110]_{Fe}$ de difficile aimantation.

On peut cependant observer sur la Figure III-5 (a), que le retournement de la couche dure n'est pas tout à fait abrupt ; cela pourrait provenir de l'épaisseur un peu élevée de la bicouche CoFeB/Fe douce, que l'on durcit par échange interfacial grâce à la couche de Co. En effet,

afin de redresser l'axe de facile aimantation de la couche de CoFeB, qui est suivant l'axe $[110]_{\text{Fe}}$, il a été nécessaire d'élaborer une bicouche CoFeB/Fe d'une épaisseur totale de 20 nm. Or, pour que la tricouche CoFeB/Fe/Co se comporte comme un monobloc rigide, il faut que la partie douce soit inférieure à une certaine épaisseur critique [149], estimée à 10 nm dans le cas d'une bicouche Fe/Co [1].

Après structuration des échantillons, des mesures de magnétorésistance ont été effectuées à basse température (16 K) ; la Figure III-6 présente la variation de la résistance d'une jonction, mesurée au voisinage de l'équilibre ($V = 10$ mV), lorsque l'amplitude du champ magnétique planaire appliqué suivant un axe de facile aimantation varie. Deux états de résistance apparaissent nettement sur cette figure : un état de forte résistance, observé à champ modéré et correspondant à la configuration antiparallèle (AP) des aimantations des deux électrodes, et un état de faible résistance, observé pour des forts champs appliqués et correspondant à la configuration parallèle (P) des aimantations.

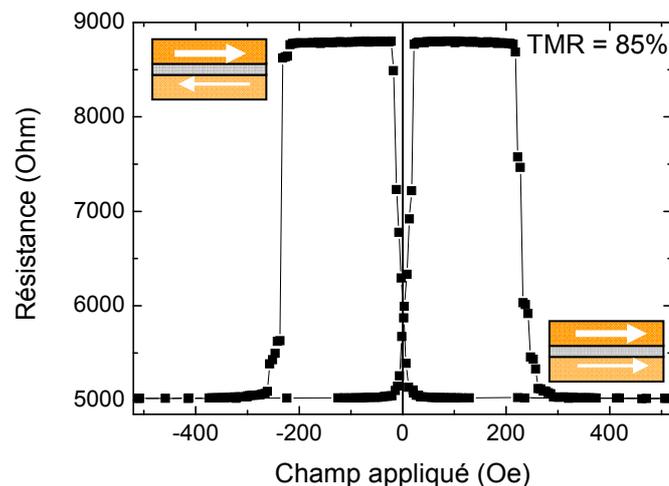


Figure III-6 – Evolution en fonction du champ magnétique de la résistance d'une jonction de $30 \times 30 \mu\text{m}^2$, de structure Fe/MgO/CoFeB/Fe/Co/Au, mesurée à 10 mV et à 16 K, le champ étant appliqué suivant un axe facile.

Dans la suite de cette section, on ne parlera plus que de configurations parallèle (P) et antiparallèle (AP) des aimantations, en gardant à l'esprit que celles-ci sont obtenues grâce à l'application sur le système de deux champs magnétiques d'intensités différentes.

III - 2.2 Effet de la tension appliquée

Des mesures de magnéto-transport ont été effectuées entre 16 et 300 K ; en l'absence de précision, celles-ci sont présentées à basse température, où les mesures reflètent de manière plus intrinsèque les propriétés des systèmes étudiés. Par ailleurs, dans toute la suite, afin d'alléger l'écriture, la structure complète de l'échantillon n'est plus mentionnée : la bicouche

de Fe/Co employée pour durcir l'électrode supérieure ainsi que la couche d'Au de protection sont omises, et on ne parlera plus que d'échantillons de type Fe/MgO/CoFeB ou « à architecture hybride ». Il en est de même pour les autres types de jonctions mentionnés ; ainsi par « Fe/MgO/Fe », nous sous-entendons que nous considérons un échantillon de structure complète Fe/MgO/Fe/Co/Au.

III - 2.2.1 Etude comparative avec des systèmes modèles

Après avoir caractérisé la réponse magnétique du dispositif, et en particulier vérifié qu'il présente deux états magnétiques P et AP bien définis, l'étape suivante de l'étude consiste à comparer sa réponse à faible tension avec celle d'un système Fe/MgO/Fe monocristallin présentant une épaisseur de barrière similaire. Nous avons donc représenté sur la Figure III-7 (a) les produits résistance \times aire de jonction, et sur la Figure III-7 (b) les valeurs de magnétorésistance, obtenus lors de la mesure de jonctions Fe/MgO/Fe présentant différentes épaisseurs de barrière (symboles ouverts), et des jonctions Fe/MgO/CoFeB (symboles pleins). On peut ainsi constater qu'à l'incertitude sur les épaisseurs de barrière près, les produits R.A obtenus dans les deux configurations d'aimantation pour les jonctions à architecture hybride sont du même ordre de grandeur que ceux obtenus pour des jonctions Fe/MgO/Fe. En revanche, alors que la TMR obtenue à température ambiante dans les systèmes Fe/MgO/Fe varie entre 110 % et 160%, celle relevée pour les jonctions Fe/MgO/CoFeB n'est que de 45%, donc trois fois plus faible.

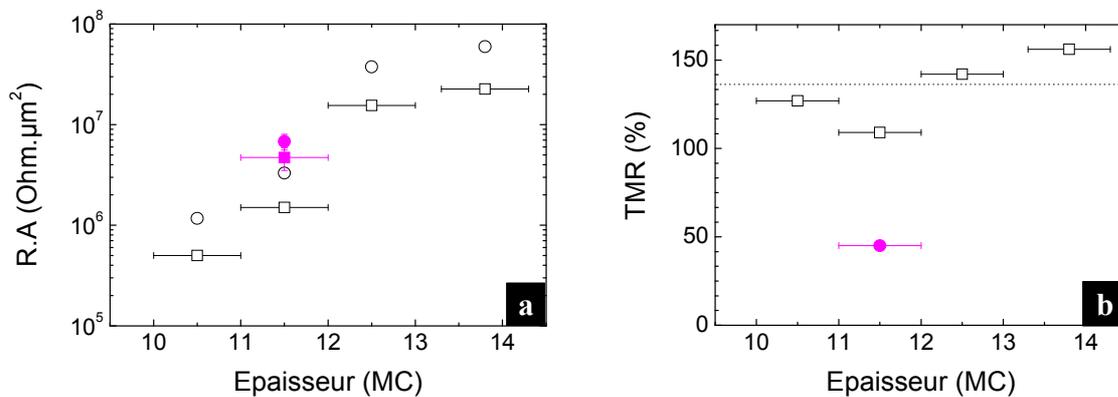


Figure III-7 – Evolution (a) du produit $R \times A$ dans l'état parallèle (□, ■) et antiparallèle (○, ●), et (b) de la TMR, dans le cas de jonctions Fe/MgO/Fe, dont l'épaisseur de la barrière varie entre 10 et 14 MC (entre 2.1 et 2.9 nm) (en symboles creux,) et Fe/MgO/CoFeB (en symboles pleins). Les mesures sont effectuées à 300 K et sous une tension de polarisation de 10 mV.

Cette différence de TMR entre les deux systèmes est confirmée par les mesures à basse température de la dépendance en tension de la TMR, présentées sur les Figure III-8 (a) et (b). Le maximum de TMR est en effet observé dans les deux types de jonctions dans le régime tunnel d'équilibre au voisinage de $V = 0$ V, et atteint près de 300% dans le cas de jonctions

Fe/MgO/Fe (Figure III-8 (b)), et seulement 85% dans les jonctions Fe/MgO/CoFe(B) (Figure III-8 (a)). Ainsi, la TMR obtenue dans les jonctions à architecture hybride est très inférieure aux valeurs mesurées sur les échantillons Fe/MgO/Fe monocristallins, ou publiées sur les échantillons texturés de type CoFeB/MgO/CoFeB (jusqu'à plus de 1100% [31]). Cette valeur de 85% reste néanmoins supérieure à la valeur de 58% calculée grâce à la formule de Jullière [6], avec les polarisations du Fe et du CoFe respectivement de $P_{\text{Fe}} = 44\%$ et $P_{\text{CoFe}} = 51\%$ [4]. Cela laisse supposer une réduction importante de l'efficacité du transport tunnel résolu en symétrie, sa contribution n'étant toutefois pas totalement détruite.

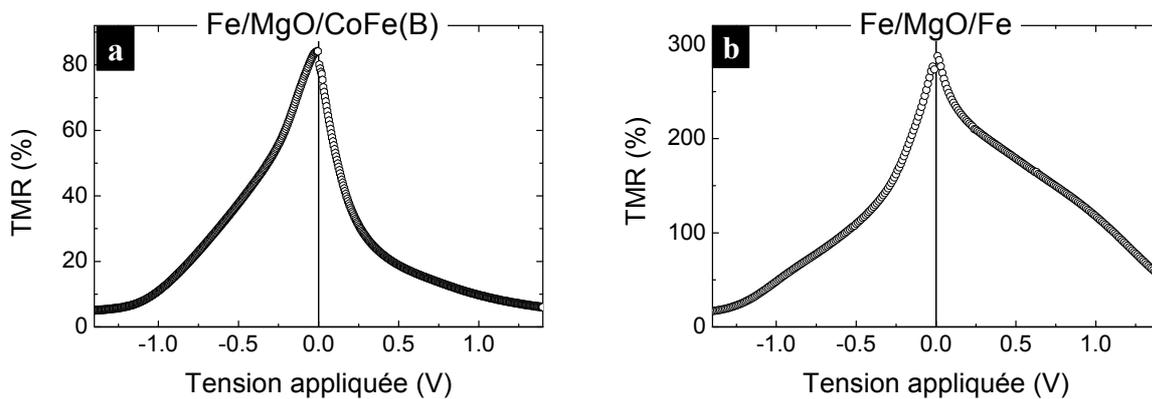


Figure III-8 – Dépendance de la TMR avec la tension dans des jonctions : (a) Fe/MgO(11.5 MC)/CoFeB et (b) Fe/MgO(13.5 MC)/Fe, mesurées respectivement à 16 K et 11 K.

Convention de signe : en tension positive, les électrons sont émis par l'électrode inférieure vers la supérieure.

Concernant la dépendance en tension de la TMR, on observe sur les Figure III-8 (a) et (b) que dans les deux systèmes, la TMR chute rapidement lorsque la tension appliquée augmente, et ce, de manière asymétrique puisque la diminution n'est pas identique pour les valeurs positives et négatives de la tension. Qualitativement (les échelles sont différentes sur les deux graphes), cette décroissance est similaire en tension négative dans les deux types de jonctions. En revanche, en tension positive, lorsque les électrons sont injectés vers l'électrode de CoFeB, les deux systèmes présentent une variation différente, la chute de TMR étant beaucoup plus rapide dans le cas de la jonction hybride.

L'examen des conductances dynamiques $G_{P(AP)} = dI_{P(AP)}/dV$ présentées sur les Figure III-9 (a) et (b) permet d'expliquer qualitativement l'allure des courbes TMR(V) (diminution avec la tension, dissymétrie) observées dans les jonctions Fe/MgO/CoFeB et Fe/MgO/Fe.

Ainsi, dans les jonctions Fe/MgO/Fe (Figure III-9 (b)), la conductance dans l'état parallèle varie très peu jusqu'à 0.6 V (cette variation est de l'ordre de 5%), et l'effet de la tension est quasiment identique pour les valeurs positives et négatives. En configuration AP, la conductance présente une amplitude de variation qui est non seulement bien plus marquée, mais également asymétrique en fonction du signe de la tension. On peut donc en conclure que

la dépendance en tension de la TMR observée sur la Figure III-8 (b) résulte principalement de l'augmentation avec la tension de la conductance AP et de son asymétrie.

Les conductances mesurées dans les jonctions Fe/MgO/CoFeB (Figure III-9 (a)) présentent plusieurs différences notables avec celles décrites ci-dessus. En premier lieu, on peut remarquer que l'augmentation des conductances avec la tension adopte une allure beaucoup plus parabolique, et ce, dans les deux configurations des aimantations. De plus, la conductance parallèle est fortement dissymétrique, une importante diminution étant observée en tension positive sur l'encart de la Figure III-9 (a) ; la conductance antiparallèle paraît relativement symétrique, notamment en dessous de 0.4 V. Ainsi, dans le cas des jonctions Fe/MgO/CoFeB, la diminution de la TMR avec la tension (Figure III-8 (a)) est, comme dans les jonctions Fe/MgO/Fe, liée à une augmentation de la conductance plus rapide en configuration AP que dans l'état P ; en revanche, l'asymétrie de la courbe TMR(V) n'est plus induite par une seule asymétrie de la conductance AP, mais également par celle de la conductance P.

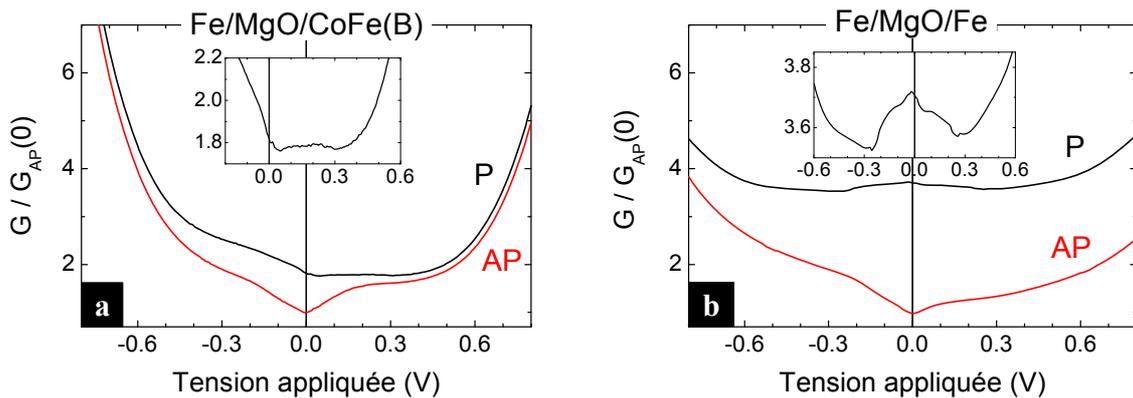


Figure III-9 – Conductances dynamiques normalisées dans les configurations P (en noir) et AP (en rouge) mesurées sur des jonctions : (a) Fe/MgO(11.5 MC)/CoFeB et (b) Fe/MgO(13.5 MC)/Fe. Merci à Y. Lu pour les mesures sur Fe/MgO/Fe.

Les caractéristiques présentées par la conductance parallèle dans les jonctions à architecture hybride ne correspondent donc pas à celles de la jonction Fe/MgO/Fe, et ce dans les deux sens de propagation des électrons. Afin de cerner l'origine de ces différences, il peut être nécessaire de prendre en compte la structure réelle de l'empilement. Ainsi, nous avons tout d'abord considéré l'influence de la structure électronique de l'électrode de CoFe(B). En effet, l'absence des états électroniques de symétrie Δ_5 au niveau de Fermi dans le $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ pourrait expliquer l'allure plus parabolique des courbes de conductance ainsi que la disparition des minima à ± 0.25 V, puisque seuls les états Δ_1 , dont la dispersion est parabolique, contribuent alors au transport. Nous nous sommes alors basés sur des travaux précédents, réalisés au laboratoire lors de la thèse de F. Bonell [2]. La Figure III-10 présente les dépendances en tension mesurées à 300 K dans des JTMS comportant une ou deux

électrodes constituées d'un alliage $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$. Dans le cas des jonctions $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}/\text{MgO}/\text{Fe}$ (Figure III-10, gauche), la conductance AP n'est pas très différente de celle d'une jonction $\text{Fe}/\text{MgO}/\text{Fe}$, mais un minimum plus prononcé de la conductance P apparaît en tension positive vers 0.4 V. Dans le cas d'une jonction symétrique avec deux électrodes de $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ (Figure III-10, droite), cette diminution prononcée de G_P est symétrique et deux minima sont présents à ± 0.4 V. En extrapolant ces résultats, on peut légitimement supposer qu'avec une électrode inférieure de Fe et l'électrode supérieure en $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$, le minimum de G_P serait observé en tension négative, ce qui n'est pas le cas dans nos mesures. De plus, ces deux jonctions à base de $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ ne présentent pas l'augmentation parabolique des conductances P et AP au-delà de 0.5 V que nous avons remarquée sur les conductances des jonctions $\text{Fe}/\text{MgO}/\text{CoFeB}$.

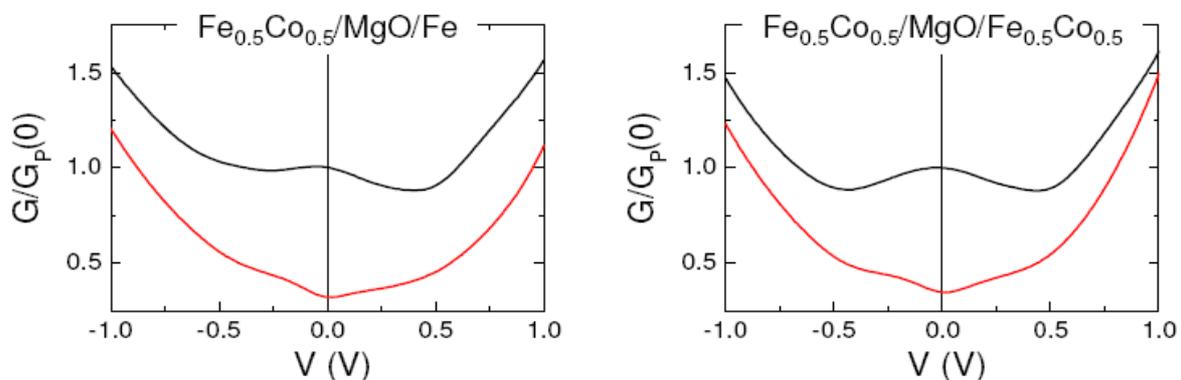


Figure III-10 – Conductances dynamiques normalisées mesurées à température ambiante dans des systèmes $\text{CoFe}/\text{MgO}/\text{Fe}$ et $\text{CoFe}/\text{MgO}/\text{CoFe}$, dans les configurations d'aimantation P (noir) et AP (rouge). D'après [2].

Ainsi, l'allure de la conductance P présentée par les JTMs $\text{Fe}/\text{MgO}/\text{CoFeB}$ ne s'explique pas en prenant en compte la structure électronique du FeCo . Une autre hypothèse que nous pouvons avancer est celle d'une oxydation de l'électrode inférieure, à l'interface avec la barrière de MgO . Il est en effet possible que la haute température de recuit de l'électrode de CoFeB (pour mémoire 550°C , comme pour l'électrode inférieure) ait engendré une modification chimique et/ou structurale de l'interface Fe/MgO .

III - 2.2.2 Oxydation de l'électrode inférieure

Pour tester cette hypothèse, nous nous sommes de nouveau appuyés sur des travaux réalisés durant la thèse de F. Bonell [2, 51, 150]. Ceux-ci concernent des jonctions tunnel magnétiques de structure $\text{Fe}/\text{p}(1\times 1)\text{-O}/\text{MgO}(12 \text{ MC})/\text{Fe}$, c'est-à-dire présentant une monocouche ordonnée d'oxygène à la surface de l'électrode de Fe inférieure.

Les conductances normalisées observées à température ambiante dans ce type de JTMs sont présentées sur la Figure III-11 (b). Afin de faciliter la comparaison avec les jonctions $\text{Fe}/\text{MgO}/\text{CoFe(B)}$, nous avons également reporté les conductances mesurées à 300 K sur ces

dernières jonctions sur la Figure III-11 (a). En dépit d'une augmentation de conductance plus rapide avec la tension au-delà de 0.5 V dans le cas des systèmes hybrides, on observe que les conductances se comportent avec la tension de manière très similaire dans les deux types d'échantillons, à la fois en configuration parallèle et antiparallèle. En effet, la diminution de G_P constatée en tension positive sur la jonction Fe/MgO/CoFeB, lorsque les électrons sont injectés depuis l'électrode inférieure, correspond exactement à l'effet de l'oxygène à l'interface inférieure observé sur la Figure III-11 (b).

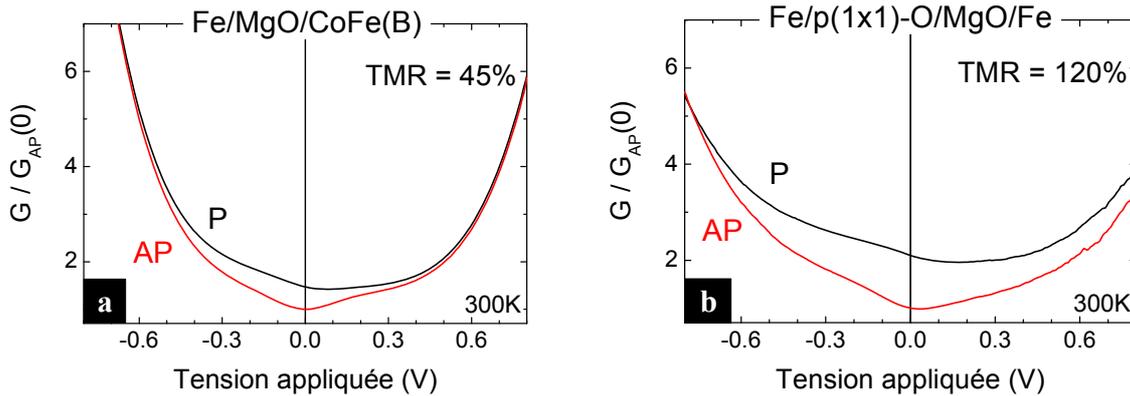


Figure III-11 – Conductances normalisées mesurées à température ambiante sur des jonctions de structure : (a) Fe/MgO(11.5 MC)/CoFe(B) et (b) Fe/p(1×1)-O/MgO(12 MC)/Fe, dans les configurations d'aimantation P (noir) et AP (rouge). Merci à F. Bonell pour les mesures sur les JTMS avec de l'oxygène interfacial.

Rappelons que dans l'échantillon présenté sur la Figure III-11 (b), la couche d'oxygène présente un ordre similaire à celui de la couche de Fe sous-jacente ; l'effet observé sur la conductance P est donc majoritairement relatif aux liaisons Fe-O et au transfert de charge entre le fer et l'oxygène qui en résulte. En ce qui concerne le mécanisme responsable de la diminution de G_P , les travaux théoriques de Zhang *et al.* [46] prévoient une localisation des états de symétrie Δ_1 dans le plan contenant le FeO, ce qui réduirait l'efficacité d'injection de ces états dans la barrière et par conséquent de la conductance parallèle dont le canal de conduction dominant est le canal $\Delta_1^\uparrow \rightarrow \Delta_1^\uparrow$. Des réserves doivent cependant être émises concernant ce mécanisme, étant donné le désaccord majeur entre la chute importante de TMR attendue théoriquement pour une couverture de 1 MC d'oxygène (un ordre de grandeur) et la diminution de TMR effectivement observée par Bonell *et al.* [51]. En effet, avec une valeur de TMR de 135% pour l'échantillon de référence sans oxygène interfacial, la réduction engendrée par la présence d'une couche atomique ordonnée d'oxygène (Figure III-11 (b)) n'est donc que de l'ordre de 10%. Enfin, Bonell *et al.* ont montré qu'une couverture de 2 MC, engendrant par ailleurs la perte de toute signature de la structure électronique sur les conductances, ne faisait pas chuter la TMR d'un facteur deux³. En conséquence, dans le cas

³ Ces différentes études sont présentées plus en détails au Chapitre I, § I - 1.3.3.

de l'échantillon à architecture hybride, l'oxydation de l'interface inférieure n'est sans doute pas la seule responsable de la faible TMR observée, ni de l'aspect parabolique des conductances. Nous reviendrons ultérieurement sur ce point, lors de l'étude de la réponse en température des JTMs, au paragraphe III - 2.3.

L'allure des conductances en configuration parallèle observées dans les jonctions Fe/MgO/CoFeB constitue donc une première indication de la formation d'une couche de Fe oxydée à l'interface inférieure. D'autres indices de cette oxydation doivent pouvoir être obtenus à partir de la configuration AP. Toutefois, l'analyse des conductances dans cette configuration ne permet pas d'établir de différences nettes entre les jonctions Fe/MgO/Fe, avec oxygène interfacial, et à architecture hybride ; nous nous sommes alors intéressés à la dérivée de la caractéristique courant-tension à l'ordre supérieur. Nous avons donc effectué une analyse de type IETS⁴ en étudiant les tracés des dérivées secondes d^2I_{AP}/dV^2 (ou dG_{AP}/dV) en fonction de la tension appliquée, observés à basse température pour des jonctions Fe/MgO/CoFeB et Fe/MgO/Fe (Figure III-12 (a) et (b)).

Concernant les comportements à basse tension ($< |0.4 \text{ V}|$), on distingue sur l'insert de la Figure III-12 (a) dans le cas des jonctions hybrides, des pics en nombre et position en tension identiques à ceux observés sur la Figure III-12 (b) pour des JTMs Fe/MgO/Fe. En particulier, le pic à -0.15 V (encart de la Figure III-12 (b)), attribué à l'activation à l'interface inférieure d'un état résonant d'interface vacant [22, 151] situé dans la bande minoritaire du Fe (IRS1), est préservé dans la jonction Fe/MgO/CoFeB.

Au-dessus de $|0.4 \text{ V}|$, la dépendance en tension pour des valeurs positives est similaire dans les deux systèmes ; à l'inverse, en tension négative, des différences apparaissent nettement. En effet, le pic très prononcé situé à une tension de -1 V sur la Figure III-12 (b), attribué dans les jonctions Fe/MgO/Fe à la contribution d'un second IRS (IRS2) de la bande minoritaire du Fe [151], est inexistant sur la Figure III-12 (a).

⁴ IETS : *Inelastic Electron Tunneling Spectra*. Ces tracés sont le plus souvent utilisés, comme leur nom l'indique, pour la détection d'excitations inélastiques ; toutefois, et c'est cela qui nous intéresse particulièrement, ils permettent également d'obtenir des informations concernant les densités d'états des deux électrodes avec une sensibilité accrue par rapport aux conductances dynamiques.

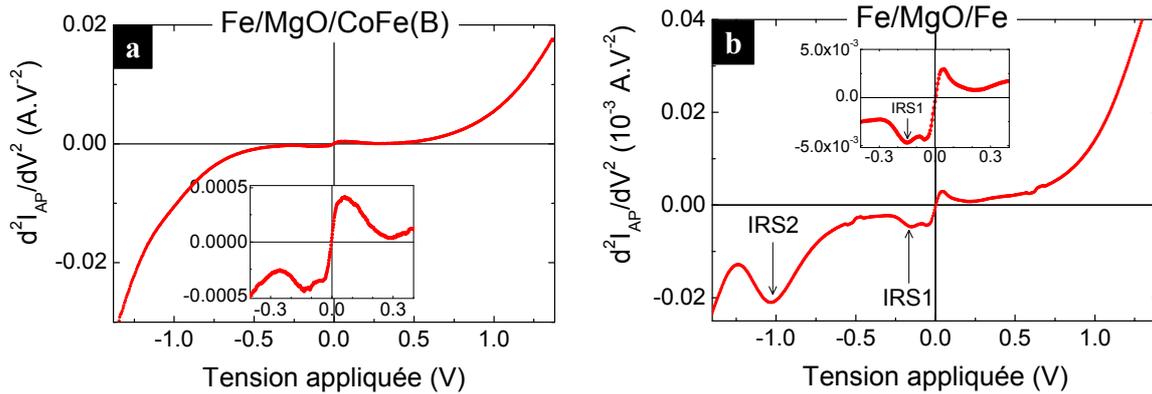


Figure III-12 – Spectres de conductance tunnel inélastique en configuration AP pour des JTMs : (a) Fe/MgO(11.5 MC)/CoFeB et (b) Fe/MgO(13.5 MC)/Fe.

Toutefois, afin de conclure sur les observations à forte tension, il faut pouvoir s'affranchir de l'importante variation en tension observée pour la jonction Fe/MgO/CoFeB : il existe en effet trois ordres de grandeur de différence entre les échelles des ordonnées utilisées sur les Figure III-12 (a) et (b). Une manière de procéder est d'effectuer des tracés dits d'intensité tunnel normalisée [152] ou NTI⁵, qui consistent à normaliser la courbe $d^2I_{P(AP)}/dV^2$ par la conductance dynamique dans le même état magnétique. Ainsi, comme on peut le constater sur la Figure III-13, les pics à forte tension apparaissent nettement ; par ailleurs, l'intensité obtenue grâce à cette normalisation est indépendante de la résistance de la jonction, ce qui permet la comparaison directe de données provenant de différents échantillons [153]. Nous avons donc représenté sur la Figure III-13 les variations de cette intensité tunnel normalisée pour les JTMs Fe/MgO/CoFeB, Fe/MgO/Fe, et avec une monocouche d'oxygène à l'interface inférieure⁶.

⁵ NTI : *Normalized Tunneling Intensity*.

⁶ Notons que, sur ce dernier échantillon, nous ne disposons que des mesures réalisées à température ambiante ; dans ce cas, la structure fine à basse tension disparaît, et on ne discerne plus qu'un seul maximum au lieu de deux sur les deux autres échantillons mesurés à basse température. L'illustration de cet effet de la température sur les courbes de dérivées secondes est donné plus loin à la Figure III-37.

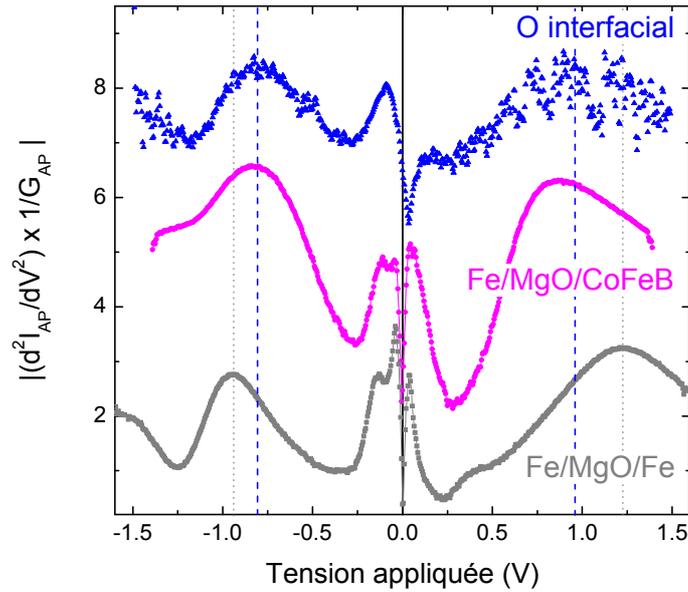


Figure III-13 – Spectres d'intensité tunnel normalisée (NTI) en configuration antiparallèle, pour des JTMs Fe/MgO/Fe (en gris), Fe/MgO/CoFeB (en magenta) et Fe/p(1×1)-O/MgO/Fe (en bleu) obtenus d'après des mesures respectivement à 10, 16, et 300K. Les lignes en pointillés courts (respectivement longs) indiquent les positions des maxima pour la jonction Fe/MgO/Fe (respectivement avec oxygène à l'interface).

On observe pour les trois échantillons la présence à forte tension de deux maxima : le premier, attendu, se situe en tension négative, et le second en tension positive. Commençons par l'analyse des maxima observés en tension négative. On retrouve pour l'échantillon Fe/MgO/Fe un maximum à -0.9 V, correspondant à la contribution de l'IRS2 observée sur la Figure III-12 (b) à une tension de -1 V ; ceci indique que la normalisation de la Figure III-13 induit un déplacement des pics, et par conséquent, seule une analyse qualitative de la position des maxima est possible à partir de ce type de tracé. Dans le cas de l'échantillon avec CoFeB, le maximum est situé vers -0.8 V ; cette position correspond à celle du maximum observé dans la jonction avec O, ce qui est un argument supplémentaire en faveur d'une oxydation de l'interface inférieure. Concernant l'origine de ce pic, l'étude de Heiliger *et al.* [154] prédit pour une jonction Fe/MgO(12 MC)/Fe avec une interface oxydée, l'activation d'un IRS autour d'une tension de -0.6 à -0.7 V dans notre convention de signe, ce qui serait qualitativement en accord avec nos observations.

En tension positive, les maxima sont situés respectivement à +1.25 V et +0.85 V pour la jonction Fe/MgO/Fe et celle avec l'électrode de CoFeB. Une origine possible de ces maxima est l'ouverture à cette tension d'un canal $\Delta_1^\uparrow \rightarrow \Delta_1^\downarrow$, le bord de la bande Δ_1^\downarrow au point Γ se situant à 1.8 eV au-dessus du niveau de Fermi dans le cas du Fe et 1.2 eV dans le cas du Fe₅₀Co₅₀, lorsqu'on suppose un alliage ordonné ; ces bords de bande sont indiqués par une flèche, respectivement sur les Figure III-14 (a) et (b). La jonction avec une couche d'oxygène à l'interface présente quant à elle un maximum aux alentours de +1 V ; la signature de ce

maximum n'apparaît pas comme un nouveau pic dans la jonction Fe/MgO/CoFeB, mais pourrait se manifester en un élargissement du pic situé à +0.85 V.

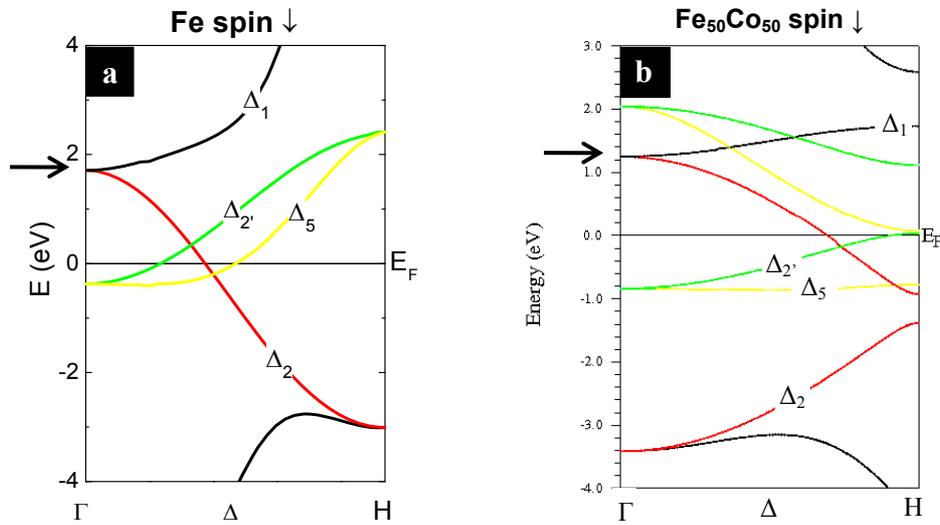


Figure III-14 – Diagrammes de bandes dans la direction Δ calculés pour le spin minoritaire dans le cas du Fe massif (a) et de l'alliage ordonné $Fe_{50}Co_{50}$ massif (b) (calculs de C. Tiusan, communication privée).

III - 2.3 Effet de la température

Pour étudier les variations en température des différents paramètres mesurés sur la jonction Fe/MgO/CoFeB, nous procédons par comparaison avec les résultats obtenus sur une jonction Fe/MgO/Fe ; comme nous l'avons vu plus haut, ces deux échantillons présentent des différences notables, avec entre autres, un facteur trois sur les TMR. Cependant, nous ne disposons pas d'analyse en température sur des jonctions Fe/p(1×1)-O/MgO/Fe. De plus, comme le montre la Figure III-15 où l'on présente les variations relatives de la TMR avec la température, cette comparaison peut se justifier, puisqu'on constate que la variation est identique pour les jonctions Fe/MgO/Fe et Fe/MgO/CoFe(B). Ainsi, dans les deux cas, la TMR décroît de manière quasiment linéaire entre 10 K et 300 K, de telle sorte qu'à 300 K, elle est approximativement réduite de moitié par rapport à sa valeur à basse température.

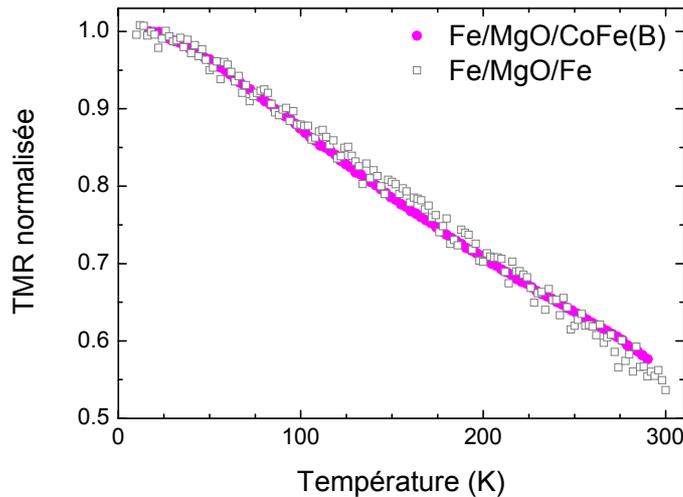


Figure III-15 – Evolution avec la température de la TMR normalisée par rapport à sa valeur à basse température pour des jonctions Fe/MgO/CoFeB et Fe/MgO/Fe. La tension de polarisation appliquée pour ces mesures est de 10 mV.

Toutefois, ces variations similaires de la TMR normalisée ne résultent pas de dépendances en température des résistances P et AP identiques dans les deux types de jonctions, comme on peut le constater sur les Figure III-16 (a) et (b).

Dans le cas du système Fe/MgO/Fe (Figure III-16 (b)), la résistance AP décroît avec l'augmentation de la température assez fortement et de manière monotone. En configuration P en revanche, la variation globale entre 10 et 300 K est très faible (de l'ordre de -1%), et la résistance passe par un maximum, à une température d'environ 160 K. Dans ce système, la décroissance de la TMR avec la température est donc uniquement liée à la variation de résistance dans l'état antiparallèle. Précisons que ce type de comportement, avec une R_P très peu dépendante de la température et une forte diminution de R_{AP} , est généralement un gage de performance des systèmes étudiés, et une caractéristique des JTMs à barrière de MgO, puisqu'elle est observée autant dans des jonctions monocristallines Fe/MgO/Fe(001) [56] ou Co/MgO/Co(001) [155], que texturées (001) de structure CoFeB/MgO/CoFeB [55, 156].

Dans le cas des jonctions à architecture hybride (Figure III-16 (a)), à la fois R_P et R_{AP} diminuent de manière significative avec l'augmentation de la température. La comparaison avec les dépendances en température observées dans la jonction Fe/MgO/Fe, met en évidence dans la jonction Fe/MgO/CoFe(B) le rapprochement des variations en température des résistances P et AP l'une par rapport à l'autre. C'est donc par un effet de compensation de $R_{AP}(T)$ avec $R_P(T)$, que la variation en température de la TMR se retrouve identique à celle observée dans la jonction Fe/MgO/Fe. Enfin, en configuration parallèle, la résistance présente comme sur la Figure III-16 (b) une variation non monotone, le maximum de R_P se situant aux environs de 70 K. L'augmentation initiale de résistance est plus faible dans la jonction

Fe/MgO/CoFeB que dans la jonction Fe/MgO/Fe ; il semblerait alors qu'elle soit masquée par la plus forte diminution totale de résistance entre 10 et 300 K, de plus de 10% alors qu'elle était inférieure au pourcent dans le cas précédent.

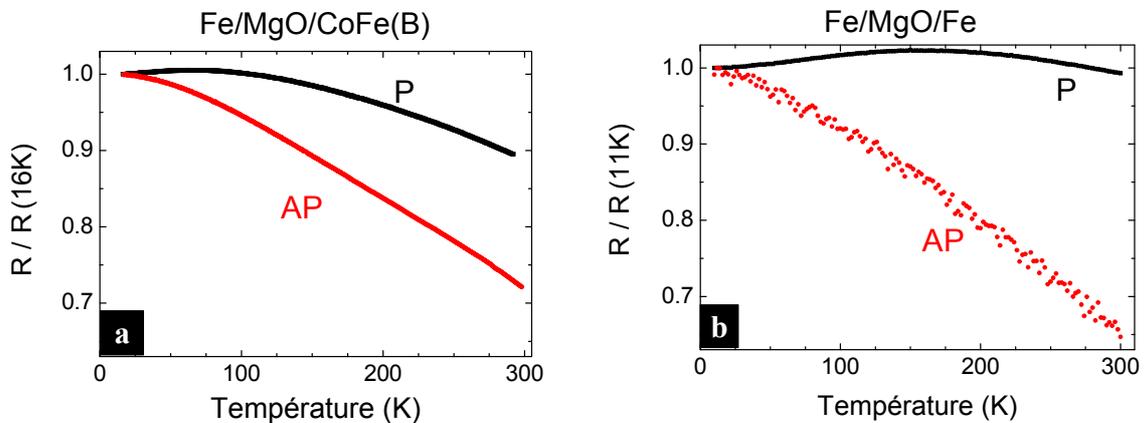


Figure III-16 – Dépendance en température des résistances P (en noir) et AP (en rouge) normalisées par rapport à leur valeur à basse température. Les résistances sont mesurées sous une tension de 10 mV.

Ces différences de comportement entre les deux systèmes, à la fois en P et en AP, sont symptomatiques d'une perte de filtrage en symétrie dans l'échantillon à architecture hybride, ce que corroborent par ailleurs la faible TMR et l'allure parabolique des conductances observées dans ce système. En effet, lorsque le filtrage en symétrie est considéré comme efficace, comme dans la jonction Fe/MgO/Fe (Figure III-16 (b)), la résistance AP doit être très grande à basse température (infinie dans le cas d'un filtrage parfait) ; ainsi, tous les mécanismes activés thermiquement permettant une augmentation de conductance ont un impact majeur sur la conductance AP, et donc la résistance AP diminue fortement lorsque la température augmente. Rappelons au passage que ces mécanismes, décrits au Chapitre I, § I - 1.4, peuvent résulter de l'élargissement en énergie autour du niveau de Fermi [58, 59], de la variation thermique de la polarisation [28, 60], ou de l'ouverture de nouveaux canaux de conduction (transport assisté par des magnons [66, 68] ou des phonons, par sauts [62], diffusions non spéculaires [71]...). En configuration parallèle, la conductance à basse température est au contraire si importante que l'ajout de canaux de conduction par une augmentation de la température passe inaperçu : la variation avec la température de R_P est donc beaucoup plus limitée que celle de R_{AP} .

Dans le cas de l'échantillon à architecture hybride (Figure III-16 (a)), on peut suivre le même raisonnement s'appuyant sur l'effet relatif des mécanismes d'augmentation des conductances par activation thermique, ou mécanismes « thermiquement assistés », le principe étant que plus la conductance à basse température est grande, plus la variation en température est faible. On aboutit alors au fait que dans cet échantillon, à basse température, la conductance AP est doit être augmentée et la conductance P doit être diminuée par rapport

à celles attendues dans un système Fe/MgO/Fe fictif présentant la même barrière. Cette observation va, comme nous l'avons annoncé plus haut, dans le sens d'une plus faible contribution du transport résolu en symétrie dans le système Fe/MgO/CoFeB⁷. Diverses hypothèses peuvent être émises quant à l'origine de cette réduction du filtrage. On peut ainsi évoquer la présence des zones amorphes de CoFeB (mises en évidence au Chapitre II, § II - 2), dans lesquelles aucune sélection en symétrie n'a lieu, tous les états électroniques étant permis indépendamment de leur vecteur d'onde et de leur symétrie. En configuration P, l'effet de l'oxydation sur la structure électronique peut également contribuer à la diminution de cette conductance. Nous n'écartons pas non plus la possibilité de diffusions non spéculaires (non conservatives en $k_{||}$ et en symétrie) aux interfaces, par exemple sur des atomes de bore piégés à l'interface supérieure, ou dans la barrière sur des lacunes d'oxygène, celles-ci étant potentiellement plus nombreuses dans l'échantillon hybride du fait de l'oxydation de la couche de Fe interfaciale. Par ces diffusions non spéculaires, on peut en effet expliquer la réduction de G_P (via la diminution dans l'électrode émettrice des densités d'états correspondant aux symétries Δ_1 et Δ_5 les moins atténuées dans la barrière), et l'augmentation de G_{AP} (via un couplage des états Δ_1 peu atténués dans le MgO mais évanescents dans l'électrode réceptrice à des états propagatifs d'autres symétries [71]).

Nous nous intéressons à présent plus particulièrement au comportement observé en configuration parallèle, ainsi qu'à l'effet de la tension sur la dépendance en température de la résistance différentielle $G_P^{-1} = dV/dI_P$ (Figure III-17 (a) et (b)). Le comportement non monotone de la résistance P observé pour l'échantillon Fe/MgO/Fe (Figure III-17 (b)), suggère que la contribution des mécanismes thermiquement assistés faisant décroître la résistance avec la température, est en compétition avec une autre contribution, qui tend au contraire dans le sens d'une augmentation de R_P avec la température. La résistance parallèle présente également un comportement non monotone en température pour l'échantillon Fe/MgO/CoFeB (Figure III-17 (a)) ; cependant, dans ce cas, les deux contributions semblent avoir un poids relatif différent de celui observé pour la JTM Fe/MgO/Fe, avec un renforcement de la contribution des mécanismes thermiquement assistés. Cela sera analysé de manière quantitative ultérieurement, au paragraphe III - 5.1.2.

Une analyse qualitative des mécanismes pouvant être à l'origine de la seconde contribution à la variation thermique de R_P , qui augmente en température croissante, est néanmoins utile à ce stade. On peut tout d'abord citer la présence de ponts métalliques dans la barrière, ou *pinholes*, qui peut engendrer ce type de comportement [157] ; dans notre cas, cette hypothèse peut raisonnablement être écartée, du fait d'une part de l'épaisseur de la

⁷ Ainsi, dans la limite d'un système à TMR nulle, où les effets de filtrage en symétrie sont absents, les variations en température et les valeurs de résistance en configuration P et AP seraient superposées.

barrière (>10 plans atomiques), et d'autre part de la qualité structurale atteinte dans les échantillons Fe/MgO/Fe. La variation en température de la polarisation des électrodes conduit également en configuration parallèle à une augmentation de la résistance en température croissante (cf. Chapitre I, § I - 1.4.2). Enfin, une perte de conductance des états de symétrie Δ_1 , due à l'augmentation avec la température des diffusions vers des états d'autres symétries et/ou de $k_{||} \neq 0$ dont la transmission à travers la barrière est plus faible, permettrait également d'engendrer une réduction de la conductance, et donc une augmentation de la résistance P lorsque la température augmente.

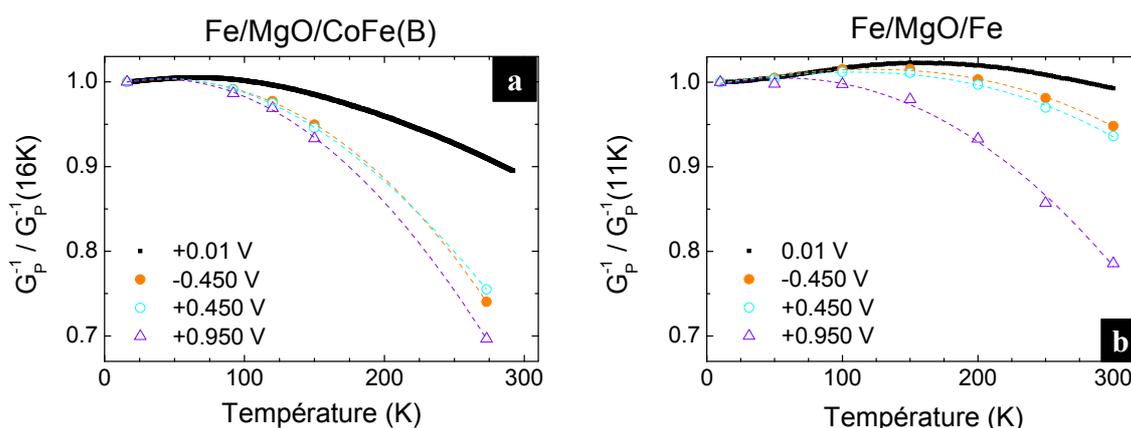


Figure III-17 – Dépendance en température de la résistance différentielle normalisée en configuration parallèle, pour différentes tensions de mesure, pour des jonctions : (a) Fe/MgO/CoFeB et (b) Fe/MgO/Fe. Pour la mesure à 10 mV, on a $dV/dI = V/I = R$. Les lignes pointillées sont des guides pour l'œil.

Concernant l'effet de la tension appliquée sur la dépendance en température de la résistance différentielle de la JTM Fe/MgO/Fe (Figure III-17 (b)), on observe d'une part une augmentation de la variation totale de résistance entre 15 K et 300 K, et d'autre part un déplacement du maximum de R_p vers des températures plus faibles. Ces variations et déplacements sont d'autant plus importants que la tension augmente (en valeur absolue). Ceci provient d'une perte, sous l'effet de la tension, des capacités de filtrage en symétrie de la barrière. En effet, la chute de potentiel a lieu principalement dans la barrière, ce qui la déforme, et détériore le filtrage ; on peut s'en persuader en considérant la réduction de TMR observée avec la tension appliquée (Figure III-8). Cette diminution du filtrage en symétrie sous l'effet de la tension se traduit par une contribution plus importante des mécanismes thermiquement assistés, qui font décroître G_p^{-1} plus fortement avec la température et déplacent le maximum de G_p^{-1} vers des températures plus basses.

Enfin, l'effet de la tension dans la JTM Fe/MgO/CoFeB est similaire à celui que nous venons de décrire pour la JTM Fe/MgO/Fe : ceci conforte donc l'hypothèse précédente, stipulant que les mécanismes antagonistes régissant la variation non monotone en température de R_p ont la même origine dans les deux systèmes.

III - 2.4 Synthèse

Nous avons donc montré que les JTMs Fe/MgO/CoFeB présentent des propriétés magnétiques similaires à celles des jonctions monocristallines de structure Fe/MgO/Fe. Malgré cela, ces JTMs Fe/MgO/CoFeB présentent une TMR faible, réduite d'un facteur trois par rapport à une jonction Fe/MgO/Fe monocristalline. Nous avons également observé de fortes différences dans les comportements en tension de ces deux types d'échantillons, notamment une diminution plus rapide de la TMR en tension positive dans l'échantillon à architecture hybride, liée à une réduction marquée de la conductance parallèle pour $V > 0$, lorsque les électrons sont injectés depuis l'électrode de Fe. Enfin, nous avons observé des variations de TMR en température identiques dans les deux systèmes, les comportements des résistances dans les configurations P et AP des aimantations étant plus proches l'une de l'autre dans le cas de la jonction Fe/MgO/CoFeB que dans le cas de la jonction Fe/MgO/Fe.

Nous attribuons la forte réduction de la TMR dans les JTMs Fe/MgO/CoFe(B) à l'effet conjoint d'une oxydation de l'interface inférieure, engendrée par le recuit de l'électrode supérieure, et d'une réduction des effets de filtrage en symétrie dans ce système, dont les origines possibles sont multiples (zones amorphes de CoFeB, diffusions par des lacunes d'oxygène ou des atomes de B, désordre aux interfaces lié à l'effet du recuit...). Des signatures de l'oxydation ont en effet été observées à la fois sur les conductances P et sur les spectres d'intensité tunnel normalisée en configuration AP ; les dépendances en température atypiques ainsi que l'amplitude de la réduction de la TMR nous ont ensuite conduit à soupçonner une contribution non négligeable du transport non résolu en symétrie dans ces JTMs Fe/MgO/CoFeB.

Nous avons effectué, à notre connaissance, la première étude de cristallisation du CoFeB amorphe sur une structure monocristalline. Elle n'a pas apporté les résultats escomptés en termes de performance des propriétés de transport. Ainsi, la capacité de diffusion du B est-elle peut-être insuffisante pour permettre la présence d'un ordre cristallin à grande distance ; autrement dit, même en recuisant à plus haute température ($> 550^\circ\text{C}$) et plus longtemps la couche de CoFeB, nous n'aurions peut-être pas obtenu une couche entièrement monocristalline. Une solution envisageable pour vérifier cela serait de faire croître le CoFeB en électrode inférieure, et de déposer la barrière et une seconde électrode de Fe après le recuit du CoFeB ; celui-ci ne risquerait ainsi plus de détériorer le reste de l'échantillon. Dans cette hypothèse, le caractère texturé des JTMs CoFeB/MgO/CoFeB présentant des valeurs record de TMR jouerait un rôle essentiel pour l'obtention d'une structure cristallisée de qualité avec un recuit à température plus basse (450 à 500°C suivant les études [31, 156, 158]), les joints de grains permettant alors la diffusion ou le stockage du bore hors des grains cristallisés. La question de l'effet de la microstructure sur les mécanismes de transport se pose alors ; nous nous focalisons sur cet aspect dans la suite de l'étude.

III - 3 Jonctions tunnel Fe/MgO/Fe à texture (001)

Afin de mieux comprendre la relation entre la structure cristalline et les mécanismes de transport, nous étudions les propriétés magnétiques et de transport des jonctions tunnel magnétiques Fe/MgO/Fe/Co/Au texturées déposées sur un substrat de Si(001) (Chapitre II, § II - 3), de manière comparative avec des JTMs de référence Fe/MgO/Fe/Co/Au monocristallines déposées sur substrat de MgO(001) (Figure III-18), ces deux types de JTM ayant été élaborées, en ce qui concerne les électrodes et la barrière, dans le même bâti d'épithaxie par jets moléculaires.

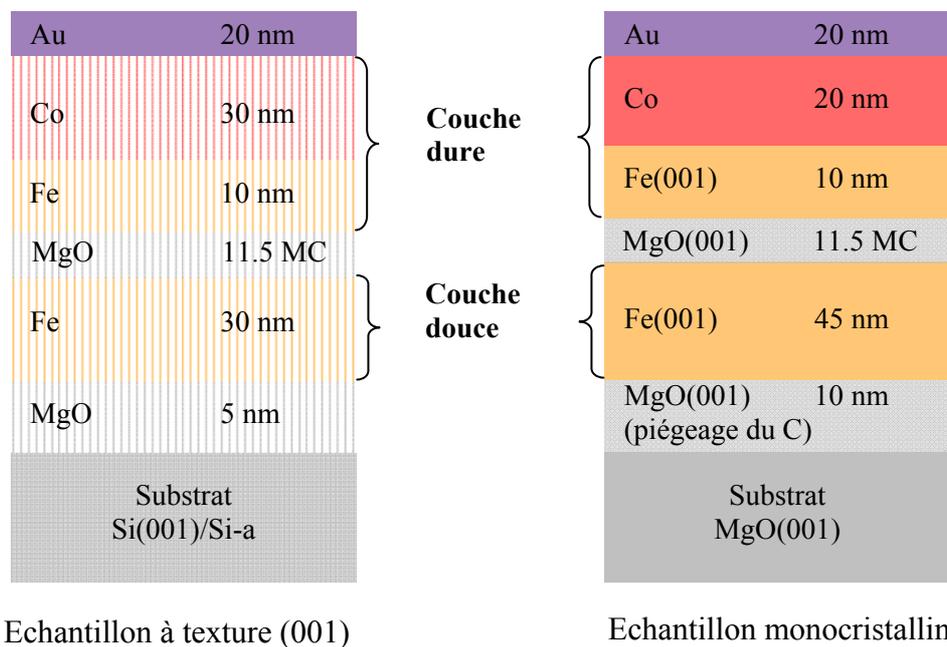


Figure III-18 – Structure des échantillons texturé (gauche) et monocristallin (droite) étudiés.

Dans toute la suite, par souci de simplifier l'écriture, nous omettons systématiquement la mention des couches de Co et d'Au, celles-ci ne contribuant pas aux processus de transport à proprement parler ; il n'est ainsi plus fait référence qu'à des JTMs Fe/MgO/Fe monocristallines ou texturées.

III - 3.1 Réponse magnétique

Les propriétés magnétiques des échantillons ont été mesurées à température ambiante, avant et après structuration des jonctions, respectivement par VSM (Figure III-19 (a) et (b)) et par des mesures de magnétorésistance. Ces dernières mesures sont présentées sous la forme de $TMR(H) = R(H)/R_p - 1$ sur les Figure III-19 (c) et (d).

Dans le cas de l'échantillon monocristallin, les Figure III-19 (b) et (d) montrent qu'une anisotropie magnétocristalline d'ordre 4 très marquée apparaît, deux comportements bien distincts étant observés lorsque les mesures sont effectuées en appliquant le champ magnétique planaire suivant un axe de facile ou de difficile aimantation. De plus, les retournements sont abrupts, et un état AP est stabilisé pour une large gamme de champs suivant l'axe facile. Enfin, la TMR atteint dans ce système des valeurs maximales de 150% suivant l'axe facile et 135% suivant l'axe difficile (Figure III-19 (d)).

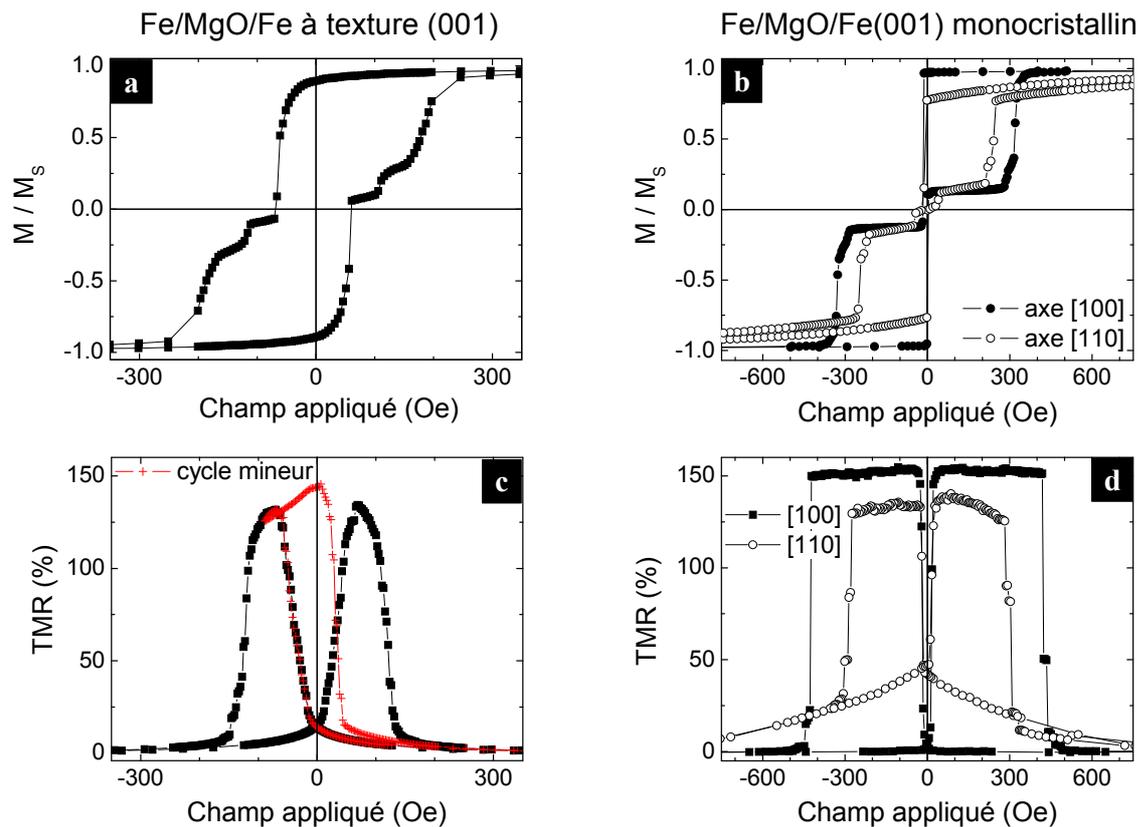


Figure III-19 – 1^{ère} colonne : Cycles d'aimantation (a) et de magnétorésistance à 10 mV (c) mesurés sur l'échantillon à texture (001) suivant une direction quelconque du plan de l'échantillon ; 2^{ème} colonne : Cycles d'aimantation (b) et de magnétorésistance à 10 mV (d) mesurés sur l'échantillon monocristallin suivant les axes de facile ([100]) et de difficile aimantation ([110]).

A l'inverse, dans le cas de l'échantillon à texture (001), les Figure III-19 (a) et (c) témoignent d'une isotropie dans le plan des propriétés magnétiques, les cycles de magnétométrie (a) et de magnétorésistance (c) étant identiques pour toutes les directions d'application du champ magnétique planaire. Par ailleurs, on remarque que les retournements des deux couches ne sont plus abrupts, mais se font de manière progressive, et on n'observe pas de plateau clairement défini pour l'état antiparallèle des aimantations. En dépit de ces caractéristiques magnétiques non optimales, la TMR atteint 130% dans cette jonction, et ce, quelle que soit la direction d'application du champ dans le plan. De plus, une valeur maximale

de 145% est atteinte en champ nul, lors du cycle mineur (Figure III-19 (c), en rouge). Ainsi, en champ nul, lorsque les aimantations des deux électrodes sont libres de relaxer suivant l'axe d'anisotropie local, une « vraie » configuration AP est obtenue localement, c'est-à-dire au sein de chaque grain. Ce résultat confirme l'existence d'une cohérence structurale et magnétique à travers l'empilement et à l'échelle latérale de la taille d'un grain. Nous avons mentionné au chapitre précédent que cet échantillon présentait une structure en grains colonnaires, à l'intérieur desquels les relations d'épitaxie $\text{Fe}(001)[100] \parallel \text{MgO}(001)[110] \parallel \text{Fe}(001)[100]$ sont respectées. Nous pouvons aller à présent plus loin dans l'interprétation, et considérer que chaque « colonne » se comporte comme une nano-jonction monocristalline, dans laquelle les configurations magnétiques P et AP sont parfaitement définies ; de plus, d'un grain à l'autre, les directions des axes d'anisotropie magnétocristalline sont distribuées aléatoirement.

Si cet échantillon texturé se comporte du point de vue de ses propriétés magnétiques et structurales comme une assemblée de nano-jonctions monocristallines disposées en parallèle, qu'en est-il de sa réponse en tension ? Comment les propriétés de transport d'une JTM monocristalline sont-elles affectées par la limitation de la taille latérale des grains ? Une signature des joints de grains est-elle visible dans la réponse en tension des échantillons texturés ?

Dans la suite, afin de répondre à ces questions, nous comparons la réponse en tension de ces deux types d'échantillons, pour les configurations parallèle (P) ou antiparallèle (AP) des aimantations, obtenues par l'application de champs magnétiques d'intensités adaptées. Notons toutefois que dans le cas des JTMs à texture (001), l'état AP considéré n'est pas le « vrai » état AP obtenu à champ nul dans un cycle mineur (Figure III-19 (c)), mais l'état magnétique correspondant au maximum de résistance dans un cycle TMR(H) complet, obtenu en appliquant environ -100 Oe après une saturation en champ positif.

III - 3.2 Effet de la tension appliquée

Les Figure III-20 (a) et (b) présentent respectivement les produits résistance à 10 mV par aire de jonction (produits R.A) calculés dans les deux configurations des aimantations, et la TMR obtenue, pour des jonctions monocristallines de différentes épaisseurs de barrière (en symboles ouverts) et pour les JTMs à texture (001) (en symboles pleins). On constate que ces jonctions texturées présentent des caractéristiques R.A comparables à celles des jonctions monocristallines (Figure III-20 (a)). De plus, malgré la dispersion de la TMR obtenue autour de la valeur moyenne de 120% sur l'échantillon texturé (de l'ordre de 20%), cet échantillon se place tout à fait dans la gamme des valeurs de TMR généralement observées sur les échantillons monocristallins (Figure III-20 (b)).

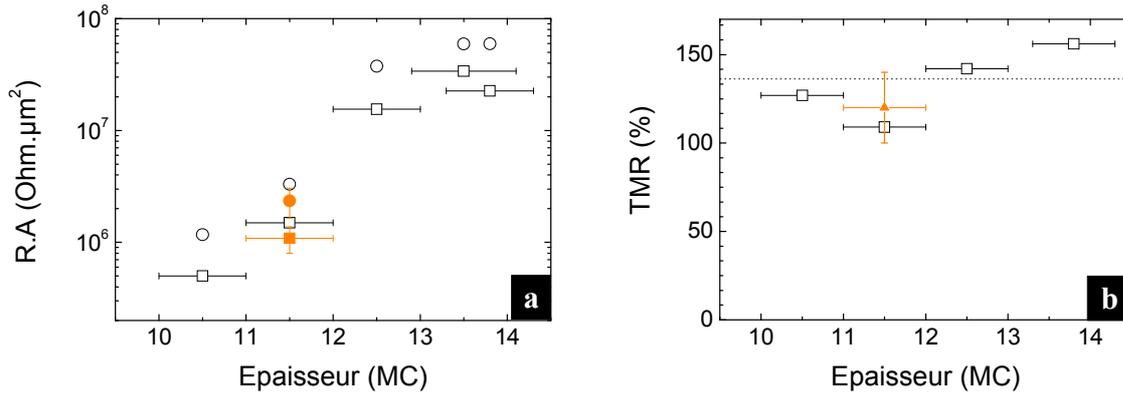


Figure III-20 –(a) Produits $R.A$ dans les états parallèle (\square , \blacksquare) et antiparallèle (\circ , \bullet), et (b) TMR, obtenus dans le cas de jonctions $Fe/MgO/Fe$ monocristallines, dont l'épaisseur de la barrière varie entre 10 et 14 MC (entre 2.1 et 2.9 nm) (en symboles évidés) et à texture (001) (en symboles pleins). Les mesures sont effectuées à 300 K et sous une tension de polarisation de 10 mV.

Des mesures en tension ont ensuite été effectuées à basse température (14 K) sur les deux types d'échantillons. L'évolution de la TMR avec la tension dans des jonctions $Fe/MgO/Fe$ texturée et monocristalline est représentée sur la Figure III-21. On constate que la TMR décroît plus rapidement en tension positive dans l'échantillon texturé que dans le monocristallin, alors qu'en tension négative, la décroissance de la TMR suit un même rythme dans les deux échantillons. Notons que cette décroissance plus rapide en tension positive pour la jonction texturée conduit à une TMR quasiment symétrique par rapport au signe de la tension, comme cela a été observé dans les jonctions texturées $CoFeB/MgO/CoFeB$ élaborées par pulvérisation cathodique, par exemple dans les références [159, 160].

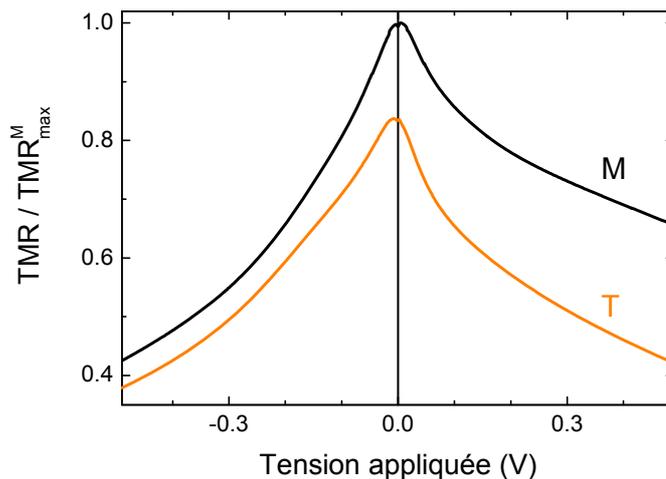


Figure III-21 – Dépendance avec la tension de la TMR dans des JTMs $Fe/MgO(11.5 MC)/Fe$ monocristalline (M, noir) et texturée (T, orange), mesurée à 14 K et normalisée par rapport à la valeur maximale de TMR obtenue pour l'échantillon monocristallin. $TMR^M(10 K)=204\%$; $TMR^T(14 K)=170\%$. Convention de signe : en tension positive, les électrons sont émis par l'électrode inférieure vers la supérieure.

Les conductances dynamiques obtenues pour les deux échantillons sont présentées sur la Figure III-22 (a) pour la configuration P et sur la Figure III-22 (b) pour la configuration AP. Le cas de l'échantillon monocristallin a été déjà discuté au paragraphe précédent ; nous retrouvons ici une conductance P faiblement dépendante de la tension et symétrique par rapport à son signe, et une conductance AP variant fortement et de manière asymétrique avec la tension. La variation et l'asymétrie en tension de la TMR résultent donc uniquement des caractéristiques de $G_{AP}(V)$.

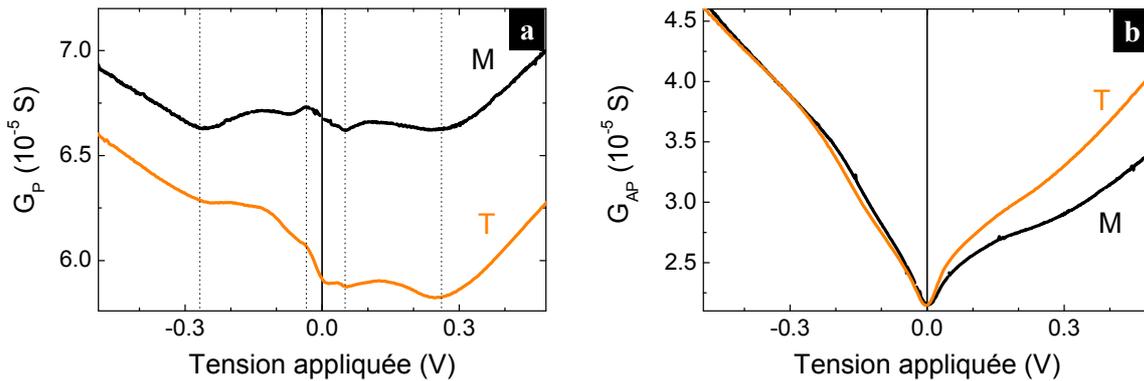


Figure III-22 – Conductances mesurées à 14 K pour les JTMS Fe/MgO(11.5 MC)/Fe monocristalline (M) et texturée (T) dans les configurations (a) parallèle et (b) antiparallèle des aimantations. Les conductances de l'échantillon texturé sont calibrées par rapport à celles de l'échantillon monocristallin à partir de $G_{AP}(0 V)$ (voir texte).

Concernant l'échantillon texturé, les conductances P et AP présentées sur les Figure III-22 (a) et (b) ont été normalisées par une même constante, afin de permettre la comparaison entre les deux types de JTMs. Cette constante a été simplement déterminée en superposant les valeurs des conductances AP des deux échantillons à tension nulle (Figure III-22 (b)). Avec cette représentation, on observe qu'en tension négative, lorsque les électrons sont injectés depuis l'électrode supérieure vers l'électrode inférieure, les conductances AP des deux échantillons sont exactement superposées. En tension positive en revanche, la conductance augmente plus rapidement avec la tension que dans le cas de l'échantillon monocristallin. Dans l'état parallèle (Figure III-22 (a)), les comportements des conductances des deux échantillons sont également plus similaires en tension négative ; en partant des valeurs négatives et en se rapprochant de la tension nulle, on observe une diminution franche de la conductance de l'échantillon texturé, augmentant ainsi l'écart entre les conductances des deux échantillons, cet écart persistant en augmentant la tension en valeurs positives. Signalons au passage que cette réduction de G_P pour des faibles tensions positives a déjà été observée dans le cas d'une légère oxydation de l'interface inférieure, et que cela n'a pas d'effet notable sur la valeur de la TMR obtenue [51] ; nous reviendrons sur cette diminution de G_P à la lumière de résultats ultérieurs, à la fin de ce chapitre (§ III - 5.1.1). Au vu du comportement en tension des conductances P et AP, on peut conclure que l'apparente symétrisation de la TMR par

rapport au signe de la tension dans l'échantillon à texture (001) résulte de l'addition de deux effets se produisant en tension positive : une conductance AP plus grande que celle observée pour l'échantillon monocristallin et une G_P plus faible.

Globalement, les caractéristiques observées sur les deux échantillons sont très semblables, comme en témoignent en particulier les structures fines observées en configuration parallèle (Figure III-22 (a), traits verticaux pointillés). On observe en effet sur cette figure une parfaite correspondance entre les positions des points d'inflexion pour les conductances P des deux échantillons. En particulier, on retrouve dans les deux cas les minima locaux à ± 0.25 V, généralement attribués à la fermeture du canal de conduction $\Delta_5^\uparrow \rightarrow \Delta_5^\uparrow$ [15], le bord de la bande de symétrie Δ_5 se trouvant pour le spin majoritaire à 0.2 eV au-dessus du niveau de Fermi.

Si la structure fine des conductances est aisément discernable en configuration parallèle, la tâche est un peu moins évidente lorsque les aimantations des deux couches sont antiparallèles, et ce, pour les deux types de jonctions. Pour faire apparaître plus nettement ces structures fines, nous avons tracé sur la Figure III-23 la dépendance en tension des dérivées secondes du courant tunnel mesuré en configuration AP. Là encore, on ne peut que constater la forte similarité entre les deux systèmes, puisque les points d'inflexion sont observés en nombre et positions en tension identiques. En particulier, le minimum correspondant à la signature d'un état de résonance interfaciale (IRS1) de la bande minoritaire du Fe [22, 151], situé pour l'échantillon monocristallin à 0.15 eV au-dessus du niveau de Fermi, apparaît également pour l'échantillon texturé, signe de la haute qualité de l'interface inférieure de cet échantillon. On peut ici noter un léger déplacement du pic observé dans ce dernier cas, son maximum se trouvant à une tension de -0.17 V, ainsi qu'une largeur en tension plus importante du pic.

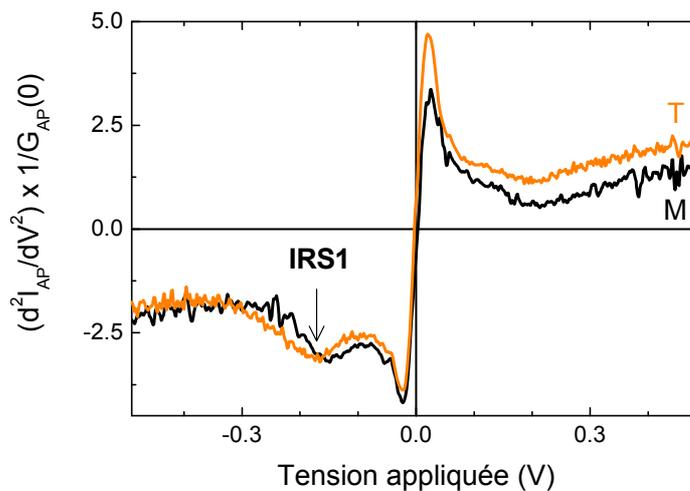


Figure III-23 – Dérivées secondes des caractéristiques courant-tension en configuration AP, obtenues numériquement à partir du courant tunnel mesuré à 14 K, et normalisées par rapport à la conductance AP à tension nulle, dans les JTMs monocristalline (M) et texturée (T).

III - 3.3 Effet de la température

Nous nous sommes ensuite intéressés à la dépendance en température de la TMR dans les deux échantillons (Figure III-24). Dans les deux cas, on observe une décroissance quasiment linéaire de la TMR avec l'augmentation de la température, la TMR étant approximativement diminuée de 50% entre 14 K et la température ambiante. Plus précisément, la variation est identique dans les JTMs Fe/MgO/Fe texturée et monocristalline jusqu'à 150 K, puis une légère divergence semble s'amorcer au-delà, la diminution de TMR étant plus importante dans le cas de la jonction monocristalline que pour la jonction texturée.

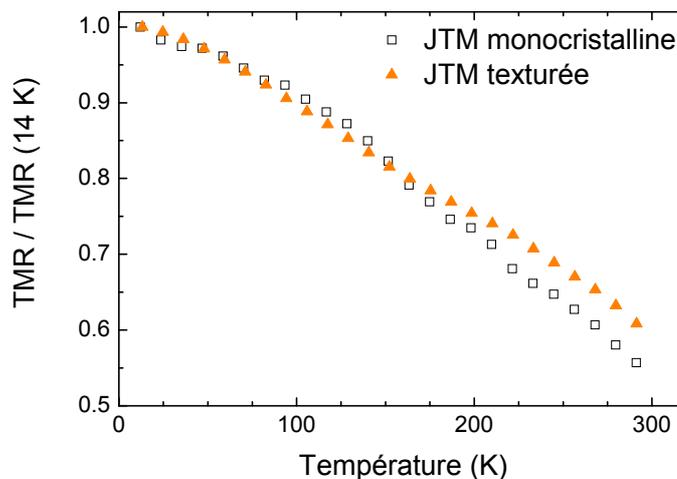


Figure III-24 – Evolution avec la température de la TMR mesurée à 10 mV dans des jonctions Fe/MgO(11.5 MC)/Fe monocristalline (carrés ouverts) et texturée (triangles pleins).

Les dépendances en température des résistances P et AP sont représentées respectivement sur les Figure III-25 (a) et (b). Un comportement similaire pour les deux échantillons est observé à la fois dans les configurations P et AP. Ainsi, une variation faible et non monotone est observée dans la configuration parallèle des aimantations, alors que la résistance antiparallèle présente une décroissance significative avec l'augmentation de la température, engendrant la diminution de TMR observée sur la Figure III-24.

Nous analysons à présent plus précisément le comportement en température des deux jonctions, en commençant par la configuration AP (Figure III-25 (b)). La décroissance de la résistance est monotone dans les deux cas, et peut être attribuée comme dans l'étude précédente (§ III - 2.3), à une contribution unique décroissante en température, à laquelle nous nous référerons comme « thermiquement assistée », c'est-à-dire correspondant à une ouverture de canaux de conduction assistée par des mécanismes thermiquement activés. La diminution avec la température de la résistance AP étant moindre dans le cas de l'échantillon

texturé, on en déduit que les mécanismes thermiquement assistés ont une influence réduite pour cet échantillon à texture (001), par rapport à l'échantillon monocristallin.

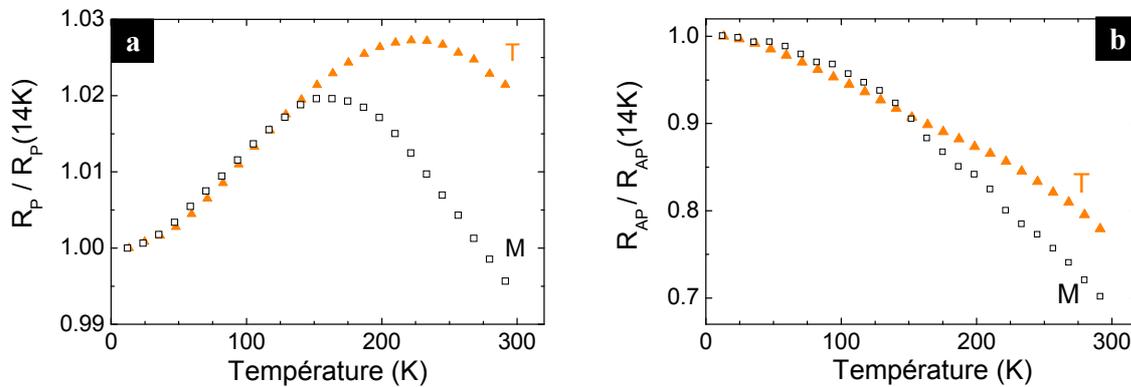


Figure III-25 – Evolution avec la température des résistances mesurées à 10 mV dans les configurations parallèle (a) et antiparallèle (b), pour des jonctions monocristalline (carrés évidés) et texturée (triangles pleins).

En configuration parallèle des aimantations (Figure III-25 (a)), l'évolution non monotone observée dans les deux cas a été précédemment reliée à la conjonction de deux contributions évoluant de manière antagoniste en température (§ III - 2.3). A basse température, où la contribution tendant à l'augmentation de R_p avec la température domine le comportement en température, les variations relatives des résistances des deux échantillons sont superposées ; ainsi, cette contribution semble être identique dans les JTMs Fe/MgO/Fe monocristalline et texturée. Nous reviendrons précisément sur ce point ultérieurement, au paragraphe III - 5.1.2. A l'inverse, à plus haute température, où la contribution des mécanismes thermiquement assistés domine, les variations relatives des R_p des deux jonctions ne se superposent plus : la décroissance avec la température est moins forte dans le cas de l'échantillon texturé, ce qui se traduit par un déplacement vers une plus haute température du maximum de résistance pour cette jonction. Ceci va dans le sens d'une moindre influence des mécanismes thermiquement assistés pour l'échantillon texturé, qui transparaît donc en configuration P comme en AP.

Afin de proposer une origine à cette réduction de l'influence des mécanismes thermiquement assistés dans la jonction à texture (001), nous nous sommes intéressés à des travaux de Ma *et al.* [56], où différents comportements en température ont été observés, et reliés à un effet d'épaisseur de barrière. Ils ont ainsi constaté que dans la gamme d'épaisseurs de MgO considérée (7 à 14 MC), une augmentation de l'épaisseur de la barrière s'accompagne d'une diminution plus importante de la résistance AP avec la température, et d'une moindre augmentation de résistance P. Ces observations sont qualitativement en accord avec notre interprétation en termes d'influence relative des mécanismes thermiquement assistés. En effet, plus une barrière est épaisse, plus la résistance de la jonction est grande, et plus sa conductance est faible ; dans ce cas, comme nous l'avons vu dans l'étude en température précédente (§ III - 2.3), les mécanismes d'augmentation de la conductance avec

la température ont un impact majeur sur la conductance, et la diminution de résistance avec la température est donc importante. Dans notre cas, l'influence réduite des mécanismes thermiquement assistés correspondrait donc à une épaisseur de barrière plus faible dans la jonction texturée, en accord avec les produits $R.A$ plus faibles dans cette jonction que dans la jonction monocristalline, dans les deux configurations des aimantations⁸.

Concernant l'effet de la tension sur la dépendance en température de la résistance différentielle $G_p^{-1} = dV/dI_p$, présentée pour les deux systèmes sur les Figure III-26 (a) et (b), on observe qu'il est similaire dans les deux cas, quel que soit le signe de la tension. On observe ainsi clairement pour les deux échantillons que la tension appliquée affecte de manière différente les deux contributions antagonistes régissant l'évolution non monotone en température de R_p . L'augmentation initiale de la résistance différentielle avec la température paraît peu dépendante de la tension appliquée, et on retrouve en-dessous de 100 K des comportements aux différentes tensions superposables pour les deux échantillons, comme nous l'avons observé pour la résistance P à 10 mV sur la Figure III-25 (a). A l'inverse, au-delà de 150 à 200 K, lorsque la résistance diminue du fait de la contribution des mécanismes thermiquement assistés, on observe un effet de la tension appliquée, comme nous l'avons déjà relevé au paragraphe III - 2.3. Ainsi, les décroissances en température sont d'autant plus marquées que la tension appliquée augmente en valeur absolue, ce qui se traduit par un déplacement du maximum de résistance vers les températures plus basses plus important à forte tension ; ce déplacement est toutefois plus nettement observé pour l'échantillon texturé, puisque sa décroissance en température est moins marquée à faible tension (10 mV).

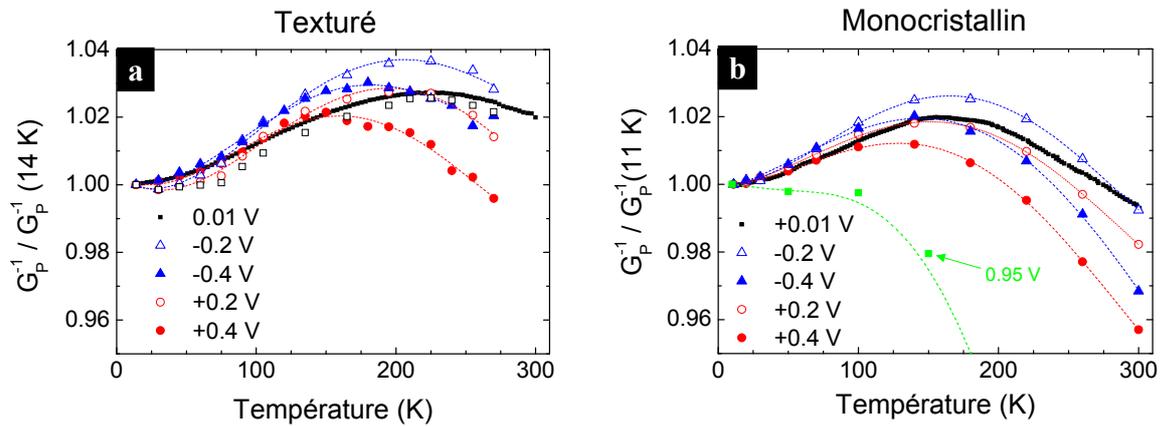


Figure III-26 – Dépendance en température de la résistance différentielle normalisée dans la configuration P , pour différentes tensions de mesure, dans les jonctions $Fe/MgO/Fe$ (a) texturée et (b) monocristalline. Les lignes pointillées sont des guides pour l'œil.

⁸ A basse température, pour la jonction texturée, $R_{p.A} = 1.1 \times 10^6 \Omega \cdot \mu\text{m}^2$ et $R_{AP.A} = 3.0 \times 10^6 \Omega \cdot \mu\text{m}^2$; pour la jonction monocristalline, $R_{p.A} = 1.6 \times 10^6 \Omega \cdot \mu\text{m}^2$ et $R_{AP.A} = 5.0 \times 10^6 \Omega \cdot \mu\text{m}^2$. Pour les valeurs à 300 K, on pourra se référer à la Figure III-20 (a).

III - 3.4 Synthèse

Nous avons donc montré que les propriétés magnétiques des jonctions Fe/MgO/Fe à texture (001) étaient totalement isotropes dans le plan. Un état antiparallèle local peut néanmoins être stabilisé dans ces jonctions, conduisant à une TMR comparable à celle obtenue sur des jonctions monocristallines. Les propriétés de transport, de même que les dépendances en température de cet échantillon texturé se sont également révélées très similaires à celles des JTMs monocristallines.

Ces JTMs à texture (001) se comportent donc en tous points comme une assemblée de nano-jonctions tunnel monocristallines, de la taille d'un grain et associées en parallèle, sans aucune contribution des joints de grains. Ce réseau de nano-jonctions est par ailleurs caractérisé par une distribution aléatoire des directions d'anisotropie magnétocristalline des grains, dont la taille moyenne est de l'ordre de 25 nm (cf. Chapitre II, § II - 3). La grande similarité des caractéristiques de transport des jonctions texturée et monocristalline suggèrent que la présence d'une cohérence cristalline sur une distance latérale de 25 nm (correspondant à la taille d'un grain) suffit à retrouver toutes les propriétés de filtrage en spin et en symétrie que l'on observe dans les échantillons entièrement monocristallins. Cela permet également de supposer que dans ces deux types d'échantillons, la longueur de cohérence latérale de la fonction d'onde des électrons qui passent par effet tunnel est réduite par la présence d'un réseau de dislocations similaire dans la barrière monocristalline et dans celle à texture (001). Le désaccord paramétrique entre le Fe et le MgO conduit en effet à une distance moyenne de 5 nm entre les dislocations dans un échantillon monocristallin [15, 37], distance qui, étant donnée la taille des grains, doit être du même ordre de grandeur dans l'échantillon texturé.

Cette étude démontre donc que, du point de vue des effets de filtrage en spin et en symétrie, les JTMs texturée et monocristalline sont équivalentes, ce qui permet de comprendre pourquoi la TMR n'est pas réduite dans les jonctions CoFeB/MgO/CoFeB élaborées par pulvérisation cathodique. Concernant la plus forte TMR effectivement observée dans ces jonctions, plusieurs hypothèses peuvent être émises. En premier lieu, comme les couches de CoFeB sont initialement amorphes, on peut supposer que le MgO croît sans contrainte, et qu'il impose son paramètre de maille lors de la cristallisation des électrodes ; il en résulterait alors un réseau de dislocations dont la période est beaucoup plus grande, et par conséquent moins nuisible aux processus de transport cohérents dans ces jonctions. Une autre piste concerne le rôle du bore, qui en diffusant dans les joints de grains pourrait aider à combler ou à réduire le désaccord paramétrique entre les électrodes de CoFe et la barrière de MgO. Enfin, n'oublions pas le plus évident, l'influence de la structure électronique du CoFe : dans une étude récente, Bonell *et al.* [30] ont effet obtenu une TMR de plus de 500% à 20 K, avec des électrodes monocristallines en Fe₇₅Co₂₅.

III - 4 Jonctions tunnel épitaxiées Fe/MgO/Fe avec et sans îlots de Fe

Les échantillons considérés dans cette section sont des jonctions tunnel magnétiques Fe/MgO/Fe(001) monocristallines, déposées sur substrat de MgO(001) ; la spécificité de ces jonctions est une interface inférieure dont la topographie est modulée via un dépôt à 100°C d'îlots de Fe de hauteur monoatomique de taille latérale variable. Cette taille latérale peut en effet être ajustée en modifiant le taux de recouvrement de l'électrode inférieure (cf. Chapitre II, § II - 1.3). Afin de ne faire varier qu'un seul paramètre à la fois –la taille des îlots–, nous avons déposé sur un même substrat, au moyen d'un cache *in situ*, une épaisseur de fer comprise entre 0 et 1.2 MC le long d'une direction, parallèle à un bord du substrat (Figure III-27 droite).

La barrière de MgO et l'électrode supérieure ont ensuite été déposées à une température d'environ 80°C. L'obtention de TMR élevées, comme dans les jonctions Fe/MgO/Fe présentées dans les deux précédentes sections, nécessite de recuire l'empilement à 400°C. Cette procédure risquerait néanmoins de modifier l'organisation de l'interface inférieure ; par conséquent, aucun recuit n'a été effectué dans ces jonctions après le dépôt des îlots de Fe. Le système de référence auquel nous comparerons les jonctions avec îlots de Fe à l'interface inférieure est alors une jonction sans îlots (c'est-à-dire présentant un recouvrement de 0 MC) de l'échantillon.

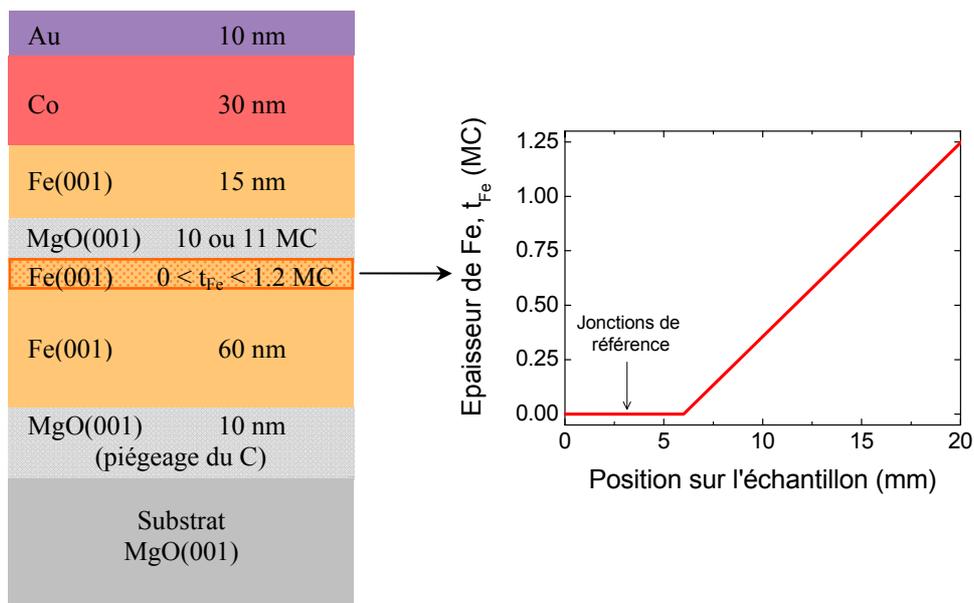


Figure III-27 – Structure des JTMS avec îlots (à gauche), et profil de la variation de l'épaisseur de Fe le long de l'échantillon (à droite).

III - 4.1 Mise en évidence d'une deuxième barrière

III - 4.1.1 Effet du recouvrement

La réponse des JTMs à l'application d'un champ magnétique a été testée via des mesures de magnétorésistance, présentées sous la forme $TMR(H) = R(H)/R_p - 1$ sur la Figure III-28 pour deux topographies de l'interface inférieure : sans îlots (0 MC) et avec approximativement une demi-monocouche de Fe (0.52 MC). Dans les deux cas, les retournements sont abrupts et se produisent pour les mêmes intensités du champ planaire appliqué, et l'état antiparallèle des aimantations des deux couches magnétiques est clairement défini. Une observation surprenante concerne la valeur de TMR atteinte dans les deux systèmes : cette valeur est en effet significativement plus importante dans la jonction où l'interface est supposée plus désordonnée (avec îlots) que dans la jonction où l'interface inférieure est lisse.

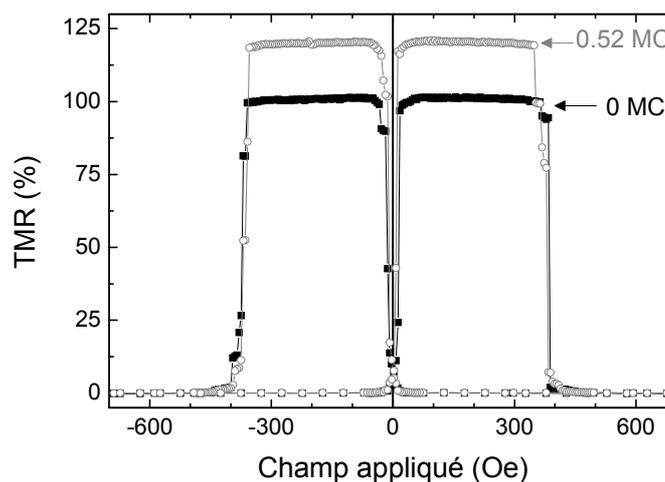


Figure III-28 – Cycles de magnétorésistance mesurés à 10 mV pour deux jonctions $Fe/Fe(t_{Fe})/MgO(10 MC)/Fe$, telles que $t_{Fe} = 0 MC$ (-■-) et $t_{Fe} = 0.52 MC$ (-○-). Le champ planaire est appliqué suivant un axe de facile aimantation du système.

Afin de vérifier cet effet, nous avons suivi les évolutions de la TMR et de la résistance dans les deux configurations des aimantations, lorsque le recouvrement de Fe à l'interface inférieure varie, et à taille latérale de jonction constante (Figure III-29 (a) et (b)). On observe effectivement sur la Figure III-29 (a) une variation de la TMR avec le taux de remplissage : partant de la surface non recouverte, la TMR augmente avec le recouvrement, atteint une valeur maximale autour de 0.4-0.5 MC de Fe, puis diminue ensuite jusqu'à retrouver son niveau initial lorsque la couche de Fe interfaciale est complète, pour un recouvrement d'1 MC. Comme le montre la Figure III-29 (b), les résistances P et AP augmentent également en présence d'îlots, puis diminuent lors de leur coalescence, au-delà de 0.4 - 0.5 MC ; de plus,

l'augmentation de la résistance AP à $t_{Fe} = 0.4$ MC est plus importante qu'en configuration parallèle, ce qui conduit à la hausse de la TMR observée. On peut aussi remarquer qu'au-delà de 0.7 MC, durant la phase de coalescence des îlots, les résistances P et AP décroissent vers une valeur proche de la valeur initiale, sans toutefois que la TMR en soit vraiment affectée, puisqu'elle demeure équivalente à sa valeur initiale.

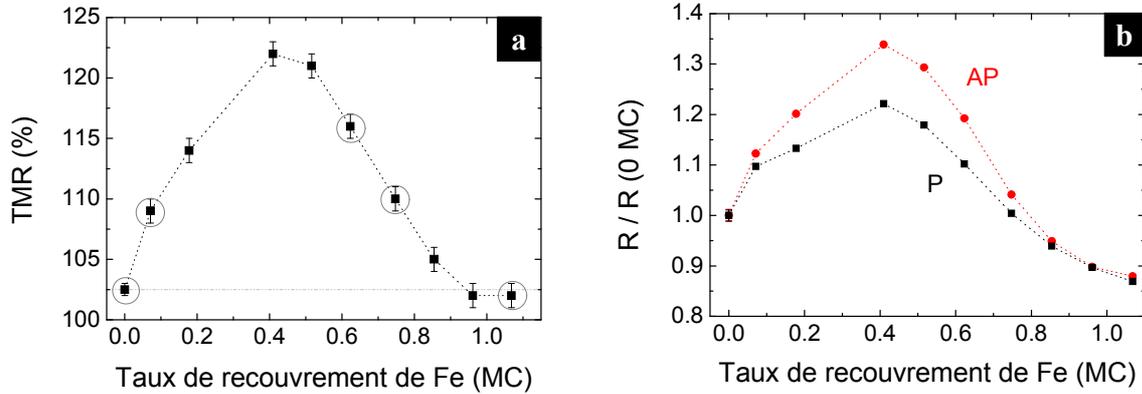


Figure III-29 – Evolution avec le recouvrement de Fe t_{Fe} (a) de la TMR, et (b) des résistances P et AP, normalisées par rapport à la résistance des jonctions sans îlots à l'interface, dans des JTMs Fe/Fe(t_{Fe})/MgO(10 MC)/Fe. Les mesures sont réalisées à 300 K sous une tension de polarisation de 10mV.

Précisons tout de même que cette augmentation des résistances et de la TMR a été observée sur un autre échantillon, où la disposition des jonctions était différente ; elle n'est donc pas relative à un effet de structuration sur la taille des jonctions mais à un phénomène bien physique. L'augmentation des deux résistances P et AP en présence d'îlots (Figure III-29 (b)) suggère la présence d'une deuxième barrière de potentiel, associée à la présence d'îlots ou de bords de marches, et dont la largeur est égale à une MC de Fe. De plus, cette barrière additionnelle a un effet plus marqué sur la résistance en configuration AP, ce qui résulte en une augmentation de TMR en présence d'îlots (Figure III-29 (a)) : elle induit donc une amélioration du filtrage en symétrie, ce qui paraît complètement contre intuitif, puisqu'avec l'augmentation de la densité de marches, on aurait pu s'attendre à une augmentation des diffusions sur les bords d'îlots et donc à une diminution du filtrage. Cela signifie que la hauteur de cette barrière dépend de la symétrie des états électroniques incidents, et on peut donc l'écrire comme $\Phi_{\text{îlots}}(\Delta_i)$. Afin de simplifier le problème, nous considérons qu'il n'existe qu'une seule hauteur de barrière $\Phi_{\text{îlots}}(\Delta_i)$, ressentie par une ou plusieurs symétries Δ_i , alors que les autres symétries Δ_j ne sont pas affectées par cette barrière additionnelle ; la Figure III-30 résume schématiquement cette situation.

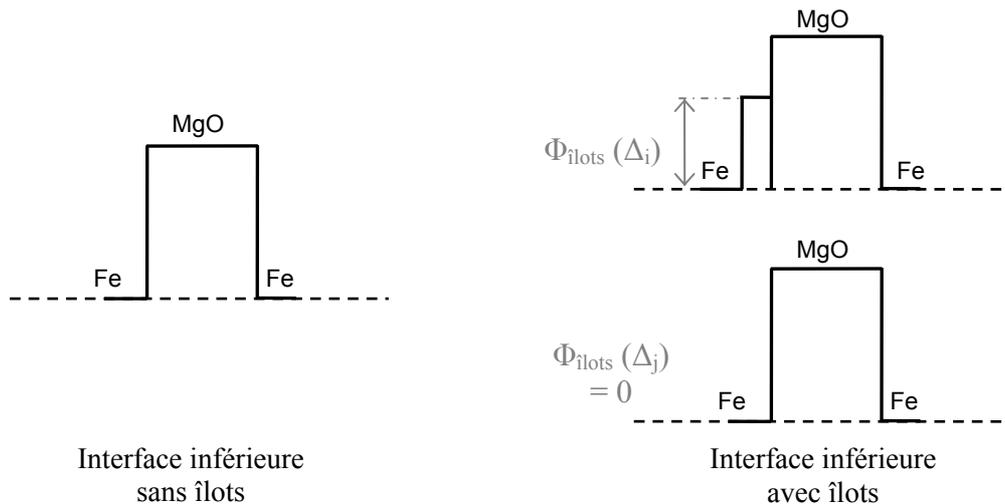


Figure III-30 – Schématisation du profil de potentiel pour une interface inférieure lisse (à gauche), ou avec îlots (à droite) pour la (les) symétrie(s) Δ_i (en haut) et les états de symétries $\Delta_j \neq \Delta_i$ (en bas).

Enfin, l'évolution des résistances avec le recouvrement, et par conséquent celle de la TMR, peuvent aisément se comprendre dans cette hypothèse d'une barrière de potentiel associée à la présence de bords de marches. En effet, suivant la densité de bords de marches, une proportion plus ou moins grande des électrons de symétrie Δ_i participant au transport ressent cette seconde barrière ; cette variation peut se modéliser comme une hauteur effective de barrière qui varie périodiquement, la hauteur maximale $\Phi_{\text{ilots}}(\Delta_i)$ étant atteinte lorsque la densité d'îlots est la plus grande.

III - 4.1.2 Effet de la tension à basse température

Nous nous intéressons par la suite au comportement en tension, mesuré à 5 K pour quelques jonctions présentant diverses épaisseurs de Fe à l'interface inférieure (encerclées sur la Figure III-29 (a)) : 0.07, 0.62, 0.75 et 1.07 MC, que nous comparons au comportement observé pour la jonction de référence (0 MC de Fe à l'interface inférieure). Parmi ces cinq jonctions, la jonction à interface inférieure recouverte de 0.62 MC est celle présentant la TMR maximale. Aucune jonction parmi celles présentant une TMR supérieure à 120% à 300 K n'a pu être mesurée à basse température, leur taux de « survie » étant malheureusement assez faible dans le cryostat utilisé (pas plus d'une jonction sur trois ou quatre).

La Figure III-31 présente la variation avec la tension de la TMR, observée dans ces jonctions à 5 K et normalisée par rapport à sa valeur maximale à 0 V. Pour la jonction de référence, la TMR atteint une valeur maximale de plus de 165 %, et présente une dépendance avec la tension fortement asymétrique, la décroissance étant plus rapide en tension négative. Le comportement des jonctions avec 0.07 et 1.07 MC est très proche de celui de la jonction

avec 0 MC, ce qui est en accord avec les observations précédentes à basse tension (Figure III-29 (a)). L'introduction d'îlots avec des recouvrements de 0.62 et 0.75 MC induit un effet assez faible sur la dépendance en tension de la TMR normalisée, se traduisant par une compensation partielle de son asymétrie en tension.

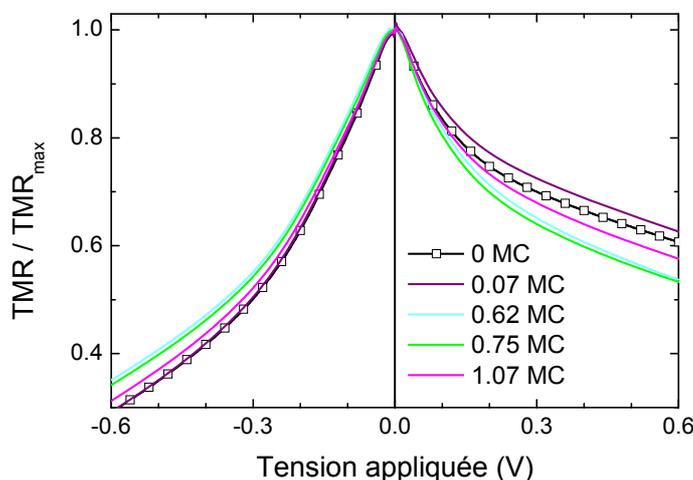


Figure III-31 – Evolution avec la tension de la TMR à 5 K, normalisée par rapport à sa valeur maximale, dans des JTMS $Fe/Fe(t_{Fe})/MgO(10\text{ MC})/Fe$ avec différents taux de recouvrement t_{Fe} à l'interface inférieure.

Convention de signe : en tension positive, les électrons sont émis à partir de l'électrode inférieure vers l'électrode supérieure.

L'effet de la tension sur les conductances P et AP dans les différentes jonctions est représenté sur la Figure III-32. Pour la jonction de référence, la conductance dans l'état parallèle présente deux minima à des tensions non symétriques par rapport à 0 V, à environ +0.10 V et -0.28 V, contrairement à ce qui est observé lorsque l'empilement est recuit après la croissance de la deuxième électrode, à savoir deux minima symétriques à ± 0.25 V (voir par exemple la courbe « M » de la Figure III-22 (a)). Notons que cette symétrisation de la conductance parallèle dans les jonctions recuites est habituellement attribuée à une amélioration de la qualité structurale de l'électrode supérieure et de la planéité de son interface avec la barrière de MgO. En configuration AP, la conductance présente une variation asymétrique avec le signe de la tension, et a une allure semblable à celle observée dans les jonctions Fe/MgO/Fe recuites.

Lorsque des îlots sont introduits à l'interface inférieure, on retrouve globalement l'effet du taux de couverture observé sur la Figure III-29 (b) pour les résistances mesurées à 10 mV. En effet, pour de faibles remplissages, la conductance diminue, à la fois en P et en AP ; les conductances atteignent un minimum autour du demi-remplissage, puis ré-augmentent lors de la coalescence des îlots ; enfin, lorsque la couche de fer interfaciale est remplie, les conductances sont finalement supérieures d'environ 15% aux conductances de la jonction de référence. Un examen plus attentif permet de constater qu'en configuration AP, l'évolution

des courbes de conductances en fonction de la tension est quasiment proportionnelle lorsque le taux de recouvrement varie. A l'inverse, l'allure de la conductance parallèle est fortement affectée par la variation du taux de recouvrement. Ainsi, pour 0.07 et 1.07 MC, la forme de la conductance P est très similaire à celle de la jonction de référence, alors que pour les fortes densités d'îlots (les recouvrements de 0.62 et 0.75 MC), on observe une diminution très marquée en tension positive, lorsque les électrons sont injectés vers l'électrode supérieure.

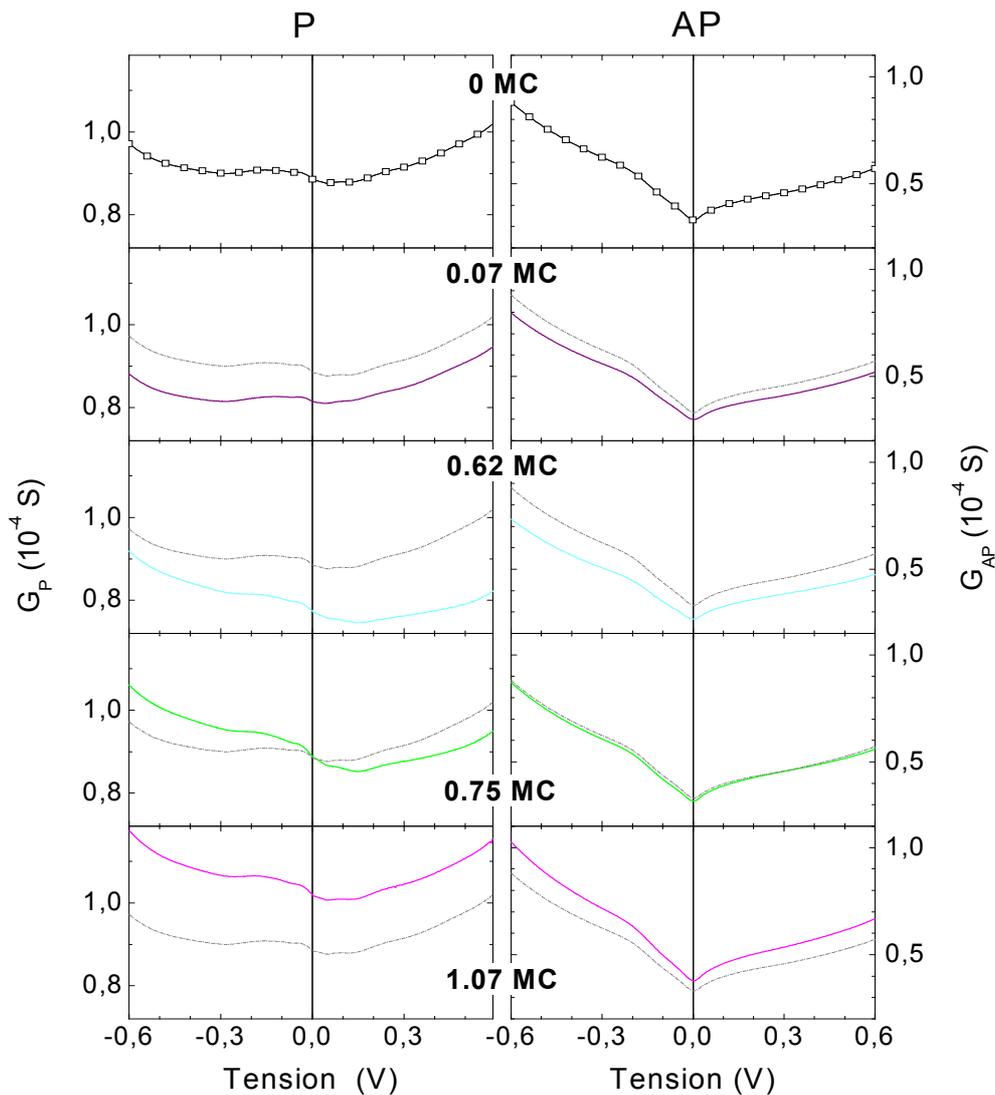


Figure III-32 – Conductances P (à gauche) et AP (à droite) mesurées à 5 K dans des jonctions Fe/Fe(t_{Fe})/MgO(10 MC)/Fe, en fonction de la tension appliquée, pour différents taux de recouvrements de Fe. La courbe en traits pointillés pour chacun des t_{Fe} correspond au rappel des conductances obtenues pour 0 MC.

Nous avons également effectué des mesures sur une gamme de tensions plus étendue, jusqu'à 1.2 V, pour la jonction de référence et la jonction avec 0.62 MC de Fe qui présente une asymétrie marquée de G_P (Figure III-33 (a) et (b)). En configuration parallèle (Figure III-33 (a)), la conductance pour 0.62 MC de fer demeure nettement inférieure à la conductance de la jonction de référence jusqu'à 1.2 V en tension positive. A l'inverse, pour

les valeurs négatives de tension, les conductances des deux échantillons se rapprochent au fur et à mesure de l'augmentation en valeur absolue de la tension, et deviennent similaires pour des tensions inférieures à -0.7 V.

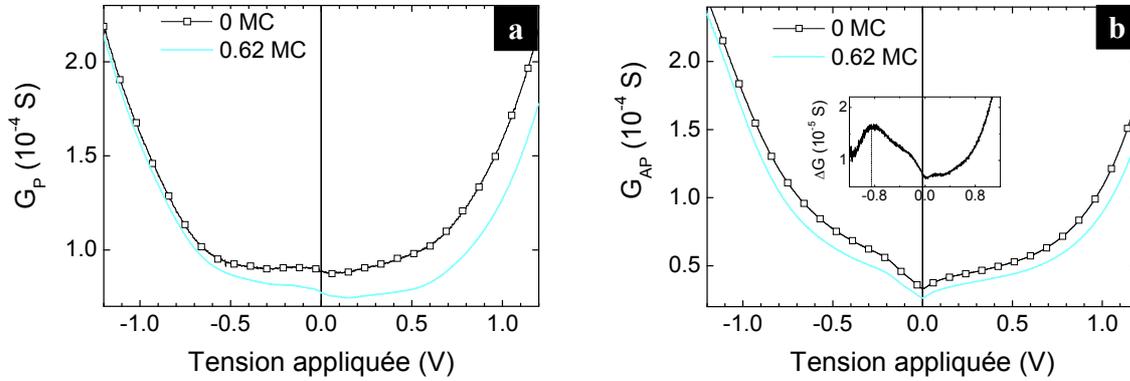


Figure III-33 – Evolution à 5 K des conductances dans les configurations (a) P et (b) AP, pour deux jonctions Fe/Fe(t_{Fe})/MgO(10 MC)/Fe, présentant des interfaces différentes, $t_{Fe} = 0$ MC ou 0.62 MC. Insert : évolution avec la tension de la différence des conductances AP : $\Delta G = G_{0MC} - G_{0.62MC}$.

En configuration AP (Figure III-33 (b)), la différence entre les conductances des deux échantillons semble demeurer identique en tension positive sur toute la gamme de tension testée. Pour les tensions négatives, on peut distinguer une augmentation plus rapide de la conductance de l'échantillon avec îlots pour des tensions de l'ordre de -1 V. Le tracé de la différence ΔG entre les conductances des deux jonctions, présenté en encart sur la Figure III-33 (b) fait nettement apparaître cette asymétrie avec le signe de la tension, et permet de situer à -0.85 V le début du rapprochement des conductances des deux échantillons.

L'hypothèse d'une deuxième barrière (Figure III-30), dont la hauteur varie avec le taux de recouvrement de l'interface inférieure, est cohérente avec la diminution prononcée en tension positive de la conductance parallèle qui se manifeste pour des recouvrements proches du demi-remplissage (Figure III-32, gauche). En effet, étant données les épaisseurs respectives des deux barrières considérées plus haut, à l'application d'une tension aux bornes de la jonction, la chute de potentiel a lieu quasiment intégralement dans le MgO ; le profil trapézoïdal représentant la barrière est donc identique quel que soit le signe de la tension (Figure III-34). En revanche, la hauteur de la deuxième barrière ressentie par les électrons de symétrie Δ_i dépend du signe de la tension. Ainsi, en tension positive, lorsque les électrons sont émis par l'électrode inférieure couverte d'îlots, des électrons Δ_i à l'énergie de Fermi dans cette électrode émettrice voient une barrière de hauteur $\Phi_{\text{îlots}}(\Delta_i)$; en tension négative, cette hauteur ressentie est de $\Phi_{\text{îlots}}(\Delta_i) - eV$. Si de plus, on considère que la hauteur de la barrière varie et est maximale aux alentours du demi-remplissage, on obtient une asymétrie de la conductance avec le signe de la tension qui dépend du taux de recouvrement, le maximum d'asymétrie étant atteint pour $t_{Fe} \approx 0.5$ MC.

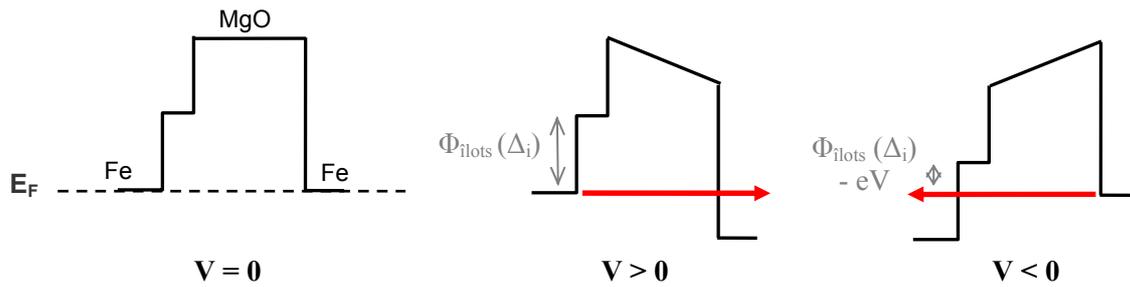


Figure III-34 – Schéma du profil de potentiel en présence d'îlots vu par un électron de symétrie Δ_i , en fonction du signe de la tension appliquée, et en configuration parallèle des aimantations.

Une estimation de la hauteur de cette barrière pour la symétrie Δ_i peut être obtenue pour un recouvrement de 0.62 MC, à partir des conductances présentées sur la Figure III-33 (a). Nous y avons en effet observé un rapprochement du comportement des jonctions avec et sans îlots pour des tensions inférieures à -0.7 V. Ceci indique que pour ces tensions $V < -0.7$ V, dans l'échantillon avec 0.62 MC, les électrons de symétrie Δ_i ne ressentent plus la présence de la deuxième barrière, ou autrement dit que la hauteur de la barrière $\Phi_{\text{îlots}}(\Delta_i)$ pour ce recouvrement est de l'ordre de 0.7 eV.

Enfin, nous avons relevé plus haut que l'asymétrie de la conductance en fonction du signe de la tension apparaît nettement en configuration parallèle, alors qu'elle est quasiment indiscernable en AP. On peut alors supposer deux raisons à ce comportement. D'une part, puisque la hauteur de la barrière additionnelle en présence d'îlots dépend de la symétrie, l'effet de cette barrière n'est pas forcément identique en P et en AP. D'autre part, cela peut refléter le fait que les processus de transport sont de nature différente dans les deux configurations des aimantations. Ainsi, en configuration antiparallèle, le transport cohérent doit représenter une part moins importante des processus de transport qu'en configuration P, au profit de mécanismes diffusifs potentiellement moins sensibles à la hauteur de la barrière que le transport balistique.

Nous nous sommes ensuite intéressés à la dérivée à l'ordre deux de la caractéristique courant-tension, en configuration AP (Figure III-35). On observe ainsi que toutes les jonctions présentent un comportement identique en tension ; en particulier, l'état résonant d'interface, correspondant au pic apparaissant à -0.16 V (IRS1), est préservé quel que soit le recouvrement considéré, et par conséquent pour toutes les tailles d'îlots concernées. Ainsi, nous n'observons pas dans nos JTMs avec îlots de Fe à l'interface Fe/MgO l'effet de déplacement en énergie ou d'annihilation de l'IRS par confinement latéral dans les îlots de Fe, observé par spectroscopie à effet tunnel (STS⁹) par Bischoff *et al.* [125] dans le cas d'une

⁹ STS : *Scanning Tunneling Spectroscopy*

interface Fe/vide. En revanche, l'intensité du pic correspondant à l'IRS1 semble affectée par la présence d'îlots : ce pic paraît en effet plus prononcé pour les jonctions avec une forte densité d'îlots, 0.62 et 0.75 MC de Fe, que pour les autres jonctions.

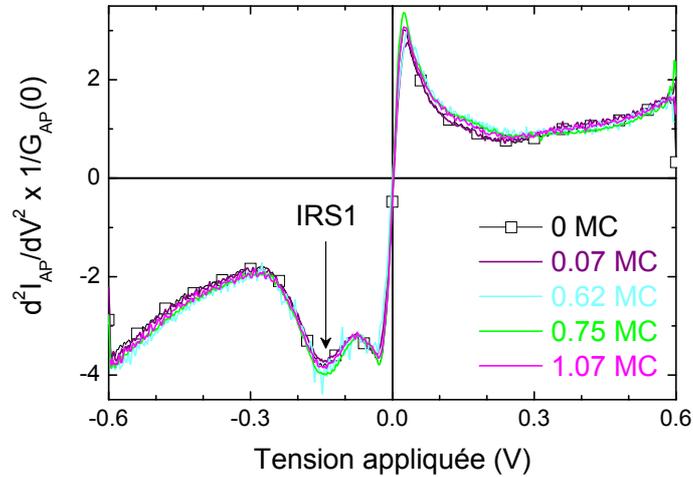


Figure III-35 – Dépendance avec la tension de la dérivée seconde de la caractéristique $I(V)$ mesurée à 5 K sur des jonctions $Fe/Fe(t_{Fe})/MgO(10 MC)/Fe$ en configuration AP, normalisée par rapport à la conductance AP à tension nulle, pour différents taux de recouvrements t_{Fe} .

Afin de confirmer cette observation, et d'étudier le comportement à plus forte tension, nous avons analysé le tracé de l'intensité tunnel normalisée, calculé d'après les mesures à forte tension sur les jonctions avec 0 MC et 0.62 MC de Fe interfacial. Ce tracé, présenté en configuration AP sur la Figure III-36, ne montre pas en tension positive de différences majeures entre les deux jonctions. En tension négative en revanche, le maximum à faible tension correspondant à l'IRS1 présente effectivement une intensité plus importante pour la jonction avec îlots à l'interface. De même, le pic situé à une même tension de -0.9 V pour les deux échantillons¹⁰, et que nous avons précédemment attribué à la contribution du second IRS de la bande minoritaire du Fe, voit son intensité augmenter dans la jonction avec îlots. L'augmentation de l'intensité de ces deux maxima en présence d'îlots pourrait donc signifier un renforcement de la contribution des IRS à l'interface inférieure.

¹⁰ Cette position correspond à celle observée au paragraphe III - 2.2.2 dans le cas de jonctions Fe/MgO/Fe classiques (avec empilement recuit).

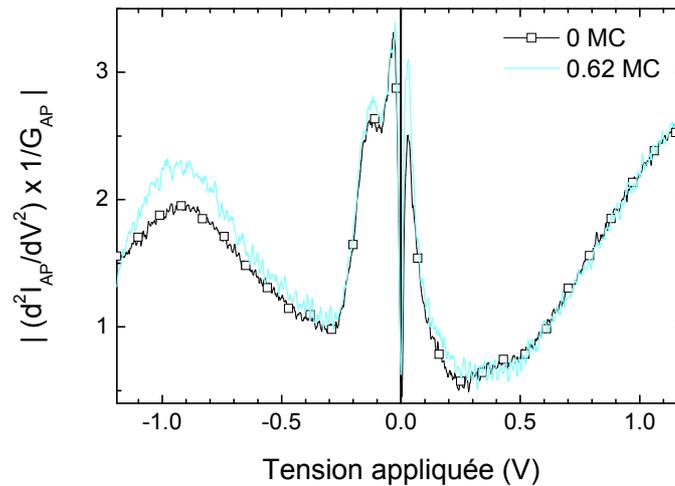


Figure III-36 – Spectres d'intensité tunnel normalisée en configuration AP calculés d'après la mesure de la caractéristique $I(V)$ à 5 K, pour deux jonctions $Fe/Fe(t_{Fe})/MgO(10 \text{ MC})/Fe$, où $t_{Fe} = 0$ ou 0.62 MC .

Enfin, nous terminons cette section par la présentation de l'effet d'une augmentation de la température sur la variation en tension. Globalement, cet effet est le même pour tous les échantillons, et toutes les grandeurs –conductances et dérivées secondes des caractéristiques $I(V)$ –, et consiste en un adoucissement des pics et variations observés à basse température. On peut en effet noter un élargissement de la largeur à mi-hauteur des pics, qui, d'après Hips et Peter [161] est proportionnel à $(0.54 \times T)$ meV. Nous présentons un exemple probant de cet élargissement sur la Figure III-37, avec les dérivées secondes des caractéristiques courant-tension d'une jonction $Fe/Fe(0 \text{ MC})/MgO(10 \text{ MC})/Fe$ en configuration AP obtenues à diverses températures.

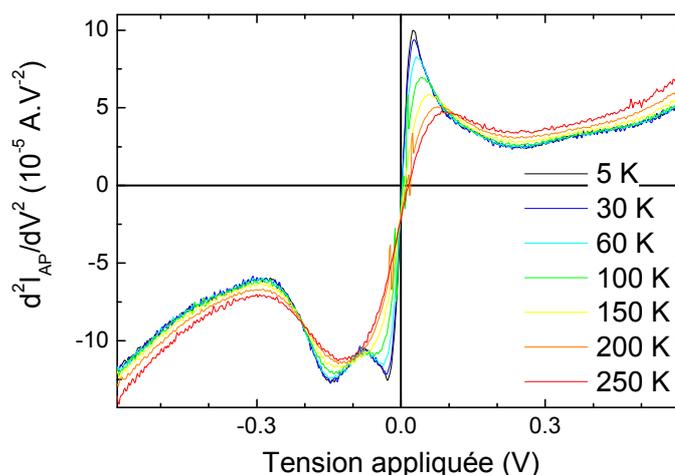


Figure III-37 – Evolution avec la température d'une courbe d^2I/dV^2 en fonction de la tension appliquée pour une JTM $Fe/Fe(0 \text{ MC})/MgO(10 \text{ MC})/Fe$ en configuration AP.

On peut remarquer sur cette Figure III-37 la présence à 5 K de deux pics en tension négative, dont on estime la séparation à 115 mV. A 250 K, ces deux pics ne sont plus résolus : l'élargissement thermique ($0.54 \times 250 = 135$ mV) est en effet alors supérieur à leur séparation. Cela montre donc l'importance et l'intérêt des mesures effectuées à basse température, qui permettent d'extraire des informations sur les mécanismes de transport et les densités d'états des électrodes.

III - 4.1.3 Effet de la température

Nous présentons dans cette section les dépendances en température des caractéristiques mesurées au voisinage de l'équilibre (10 mV) pour seulement quatre des cinq jonctions présentées ci-dessus, celle présentant un très faible taux de recouvrement (0.07 MC) n'ayant pas pu être mesurée au-delà de 10 K.

Sur la Figure III-38, on peut constater que les variations en température de la TMR normalisée sont identiques pour les différentes jonctions étudiées. A température ambiante, la TMR est ainsi réduite de 40% par rapport à sa valeur à basse température, quelle que soit la topographie de l'interface.

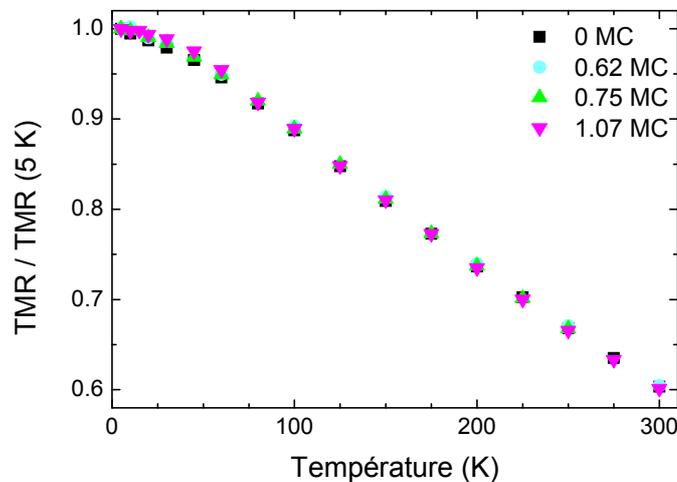


Figure III-38 – Variation avec la température de la TMR à 10 mV, normalisée par rapport à sa valeur à basse température, dans des JTMS Fe/Fe(t_{Fe})/MgO(10 MC)/Fe pour différents taux de remplissage de la couche de Fe à l'interface inférieure.

Les dépendances en température des résistances dans les deux configurations des aimantations sont représentées sur les Figure III-39 (a) et (b). Dans l'état antiparallèle (Figure III-39 (b)), lorsque la température diminue, la résistance augmente de manière monotone, et la variation est similaire pour les différentes jonctions.

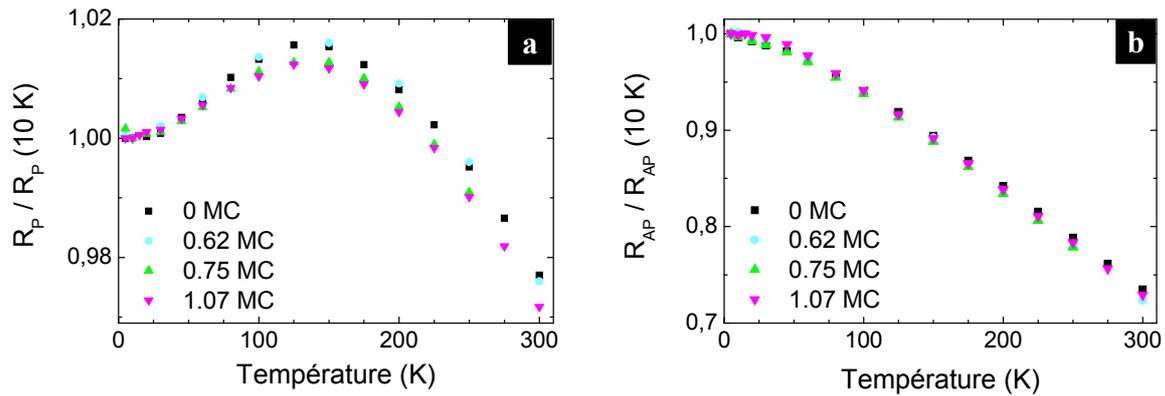


Figure III-39 – Evolution avec la température des résistances, mesurées à 10 mV et normalisées par rapport à leur valeur à 5 K, dans les configurations (a) P et (b) AP, pour des JTMs $\text{Fe}/\text{Fe}(t_{\text{Fe}})/\text{MgO}(10\text{ MC})/\text{Fe}$ présentant différents taux de recouvrements t_{Fe} à l'électrode inférieure.

En configuration parallèle (Figure III-39 (a)), on observe pour toutes les jonctions une variation non monotone de la résistance P avec la température. Ceci indique la présence des deux contributions antagonistes en température que nous avons déjà évoquées, la contribution « thermiquement assistée » engendrant une diminution de résistance avec l'augmentation de la température, et la contribution tendant à l'inverse à une augmentation de la résistance avec la température (cf. paragraphes III - 2.3 et III - 3.3). Nous reviendrons plus loin de manière plus détaillée sur cette variation non monotone de la résistance P avec la température, avec en particulier sa décomposition en deux contributions (§ III - 5.1.2).

III - 4.2 Origine physique de la deuxième barrière

III - 4.2.1 Des signatures d'oxydation

Nous avons donc vu que la présence d'îlots engendrait une augmentation des résistances P et AP, ainsi qu'un accroissement de la TMR jusqu'à une valeur 20% supérieure à celle observée dans un système sans îlots identique. L'effet des îlots semble ainsi s'apparenter à celui d'une seconde barrière dépendante de la symétrie, qui améliore le filtrage en symétrie. D'autres indices, relevés en particulier sur la dépendance en tension de la conductance P, nous ont permis de vérifier la plausibilité de cette hypothèse. Il reste à présent à identifier une origine possible de cet effet de deuxième barrière. Pour cela, nous avons représenté de manière schématique l'environnement d'un atome en bord d'îlot sur la Figure III-40 ; on peut s'apercevoir sur cette figure qu'un atome de Fe situé en bord d'îlot a pour voisin le plus proche un atome d'oxygène (atomes entourés sur le schéma). On peut alors supposer que cela favorise une hybridation en bord d'îlot entre les orbitales du Fe et celles de l'O. Dans cette hypothèse, la seconde barrière correspondrait à une barrière de FeO, localisée au niveau des

bords d'îlots, et issue du confinement d'une partie de la densité électronique du Fe dans sa liaison avec l'oxygène.

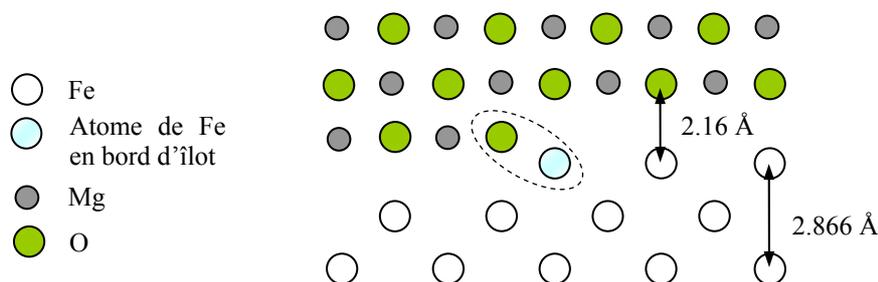


Figure III-40 – Représentation schématique de l'environnement d'un atome de Fe situé en bord d'îlot à l'interface Fe/MgO. Les positions des atomes de Mg et O ainsi que la distance interatomique verticale de 2.16 Å entre l'O et le Fe sont choisies identiques à celles des travaux ab initio de Butler *et al.* [13].

Cette hypothèse peut être confortée par deux observations de Bonell *et al.* [51]. D'une part, la diminution prononcée de la conductance parallèle en tension positive correspond à l'effet que ces auteurs ont observé en présence d'une monocouche ordonnée d'oxygène à l'interface inférieure entre le Fe et le MgO (voir aussi la Figure III-11 (b)). D'autre part, comme on peut le voir sur la Figure III-41, jusqu'à une monocouche, la présence d'oxygène n'entraîne pas de diminution importante de la TMR, et semble même l'augmenter pour un taux de couverture de 0.2 MC. Cette dernière observation est particulièrement intéressante, puisque dans notre cas, l'effet d'hybridation entre le Fe et l'oxygène ne représente qu'une fraction limitée de la surface (correspondant à la densité de bords d'îlots) : ces jonctions présentant un faible taux de recouvrement sont donc certainement les plus comparables à notre système.

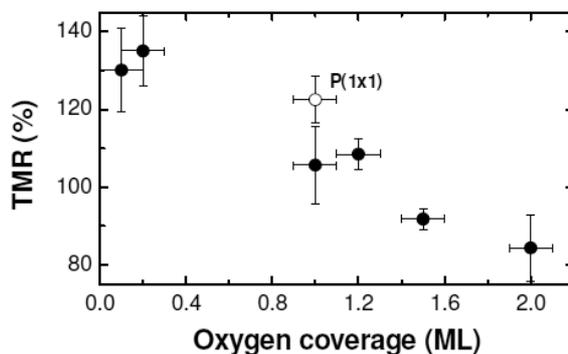


Figure III-41 – Evolution de la TMR avec la quantité d'oxygène (exprimée en monocouches) présente en surface de l'électrode inférieure. D'après [51].

III - 4.2.2 Oxydation et symétries électroniques

Concernant le mécanisme exact conduisant à la réduction des conductances P et surtout AP lorsqu'une hybridation entre les atomes de Fe à l'interface et des atomes d'oxygène se produit, les conclusions de l'étude théorique de Zhang *et al.* [46], ne s'avèrent pas satisfaisantes. Les auteurs y prévoient en effet une diminution de conductance parallèle liée au mauvais raccordement entre les états de symétrie Δ_1 des couches de FeO et de MgO, le courant tunnel s'écoulant principalement par les sites d'oxygène, dont la symétrie n'est pas la même dans le MgO et dans le FeO. Il en résulte une forte réduction de la transmission des états de symétrie Δ_1 à travers la barrière, et une chute de la TMR contraire à nos observations.

Nous avons montré qu'un des effets les plus marquants de la présence d'îlots est une diminution de la conductance AP. Dans la mesure où cette conductance est dominée par la symétrie Δ_5 , nous supposons que c'est cette symétrie qui est impliquée dans une hybridation avec l'oxygène. Dans ce cas, la conductance dans l'état parallèle sera moins affectée que la conductance AP par une diminution de la contribution des états Δ_5 , le canal $\Delta_1^\uparrow \rightarrow \Delta_1^\uparrow$ contribuant également à la conduction en configuration P. Par ailleurs, une diminution de la contribution des états Δ_5 résulte en une amélioration du caractère semi-métallique du Fe, ce qui est tout à fait cohérent avec l'augmentation observée de la TMR. Le mécanisme de réduction de transmission de ces états Δ_5 serait alors similaire à celui proposé par Zhang *et al.* pour les états Δ_1 . Le confinement de la densité d'états de symétrie Δ_5 dans la liaison FeO au détriment de la transmission dans la barrière résulterait ainsi d'un mauvais raccordement des fonctions d'onde entre le FeO et le MgO, lié à un poids spectral des contributions orbitales s et p dans les états Δ_5 différent dans ces deux oxydes.

Enfin, d'un point de vue géométrique, l'hybridation entre le Fe et l'O via des états de symétrie Δ_5 semble également la plus plausible. En effet, la position de l'atome d'oxygène le plus proche de l'atome de Fe en bord d'îlot (O et Fe encerclés sur la Figure III-40) ne semble pas favorable à un recouvrement avec des orbitales dont l'extension est seulement dans la direction z de croissance, comme celles compatibles avec la symétrie Δ_1 (pour mémoire p_z, d_{z^2} , voir Tableau I - 1) ; à l'inverse, certaines orbitales compatibles avec la symétrie Δ_5 possèdent une extension à la fois latérale et dans la direction de croissance (les orbitales d_{xz} et d_{yz}), et sont donc orientées de manière plus adéquate pour permettre l'hybridation des atomes de Fe en bord de marche avec l'oxygène.

III - 4.3 Synthèse

Nous avons donc observé que l'introduction d'îlots de Fe de hauteur monoatomique à l'interface entre l'électrode de Fe inférieure et la barrière de MgO engendrait une modulation de la TMR et des résistances P et AP, les valeurs maximales étant atteintes pour un

recouvrement de l'ordre de 0.5 MC. La TMR atteint alors une valeur de 20% supérieure à celle observée en l'absence d'îlots. La variation en tension des conductances est également affectée par la présence d'îlots, l'effet le plus significatif étant une forte réduction en tension positive de la conductance P. En configuration AP, nous n'avons pas décelé de déplacement concernant le pic attribué à un IRS sur les dérivées secondes du courant tunnel. Enfin, la dépendance en température n'est pas affectée de manière significative par l'introduction d'îlots.

Ces différentes observations ont été interprétées comme résultant de la présence d'une barrière de potentiel additionnelle qui améliore le filtrage en symétrie, sur la base de l'augmentation conjointe des résistances et de la TMR en présence d'îlots. La diminution de G_P en tension positive nous a mis sur la piste d'une hybridation des atomes de fer en bord d'îlots avec l'oxygène pour expliquer l'apparition de cette deuxième barrière pour des recouvrements non entiers. Enfin, ces observations sont en accord avec les prédictions théoriques sur le principe d'une localisation des électrons dans une liaison chimique entre le Fe et l'oxygène.

Ainsi, cette étude démontre la possibilité d'accroître la valeur de TMR dans des jonctions tunnel magnétiques Fe/MgO/Fe en modulant la topographie de l'interface inférieure, via l'introduction d'îlots de fer de hauteur monoatomique. En bord de ces îlots, une hybridation des atomes de fer avec les atomes d'oxygène adjacents a en effet lieu dans une géométrie favorisant une implication des états de symétrie Δ_5 ; l'hybridation, en réduisant la transmission de ces états, améliore alors l'efficacité du filtrage en symétrie.

La géométrie de l'hybridation en bord d'îlot est assez proche de celle observée lorsqu'une faible quantité d'oxygène est adsorbée sur une surface de fer [162] : les atomes d'O se placent alors en position dite *hollow* (Figure III-42, gauche) ; à l'inverse, lorsque la couche d'oxygène avoisine et dépasse un taux de remplissage d'une MC (un atome d'oxygène par atome de fer sous-jacent), les deux autres types de sites se peuplent également [162]. Or, pour ces sites, en particulier le site *on-top*, les orbitales ayant la symétrie Δ_1 (orientées dans la direction de croissance) sont les mieux orientées pour permettre l'hybridation entre le Fe et l'O.

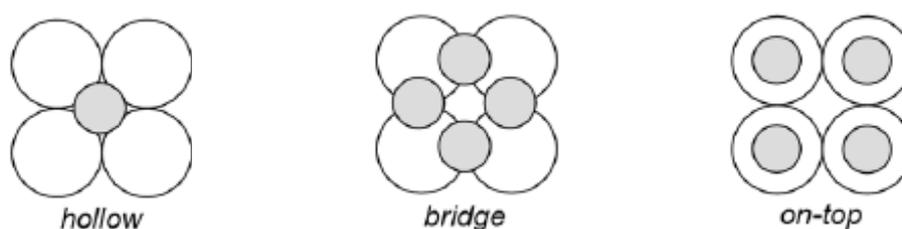


Figure III-42 – Schéma représentant la position des trois sites d'adsorption de l'oxygène sur une maille carrée (de fer par exemple).

Ainsi, dans une JTM Fe/O/MgO/Fe, le peuplement par l'oxygène des différents sites conduit à l'hybridation de symétries différentes, et a des effets sur la TMR antagonistes : si le confinement des états de symétrie Δ_5 permet d'augmenter la TMR, celui des états Δ_1 lui est au contraire nuisible. La compétition entre ces deux effets permettrait alors d'apporter une nouvelle interprétation aux valeurs de TMR en fonction du taux d'oxygène (Figure III-41) obtenues par Bonell *et al.* [51]. De plus, la reconstruction en $p(1 \times 1)$ de la surface d'oxygène, correspondant à une mise en ordre des atomes sur les sites *hollow*, permet d'accroître le confinement des états Δ_5 au détriment de ceux de symétrie Δ_1 : ceci est donc en accord avec une TMR expérimentale dans les jonctions avec 1 MC d'oxygène plus forte lorsque la reconstruction est présente (Figure III-41, point « $P(1 \times 1)$ ») que dans le cas d'une surface non reconstruite (Figure III-41, point en symbole plein pour un recouvrement d'oxygène d'1 MC).

L'introduction d'îlots permet donc d'une part de contourner la compétition entre les deux effets sur la TMR, en sélectionnant la symétrie qui sera impliquée dans l'hybridation, et d'autre part de bénéficier de l'effet d'amélioration du filtrage par des liaisons FeO sans avoir à introduire d'oxygène supplémentaire ! La question que l'on peut à présent soulever est de savoir si la TMR croît proportionnellement à la densité de bords de marches disponibles pour l'hybridation ; si cela est le cas, en déposant des îlots à plus basse température, leur densité et celle des bords étant alors plus importantes, on devrait observer une augmentation plus forte de TMR en présence d'îlots.

III - 5 Conclusion

III - 5.1 Analyse comparative des trois systèmes étudiés

Nous avons observé certaines caractéristiques récurrentes dans les dépendances en tension et en température de la conductance parallèle des trois types de jonctions étudiées. Nous allons donc, grâce à ces caractéristiques communes, tenter de répondre à quelques unes des questions laissées en suspens dans les paragraphes précédents.

III - 5.1.1 Dépendance en tension de G_P : oxydation de l'interface inférieure

Dans les trois types de jonctions étudiées, avec une électrode en CoFeB, à texture (001), et avec îlots de Fe à l'interface inférieure, une diminution en tension positive plus ou moins prononcée de la conductance P a été mentionnée (Figure III-43 (d) à (f)). Nous avons pointé le lien entre cette diminution de conductance et un phénomène d'oxydation de l'interface de l'électrode de fer inférieure (Figure III-43 (a)).

Dans le cas de l'échantillon à architecture hybride (Fe/MgO/CoFeB), l'oxydation a été attribuée à l'effet d'un recuit du CoFeB à trop haute température, qui a dégradé la qualité des interfaces, en particulier l'interface inférieure. Dans le cas des jonctions avec îlots, l'oxydation a été expliquée via une hybridation entre les atomes de fer en bord d'îlots et des atomes adjacents d'oxygène de la barrière.

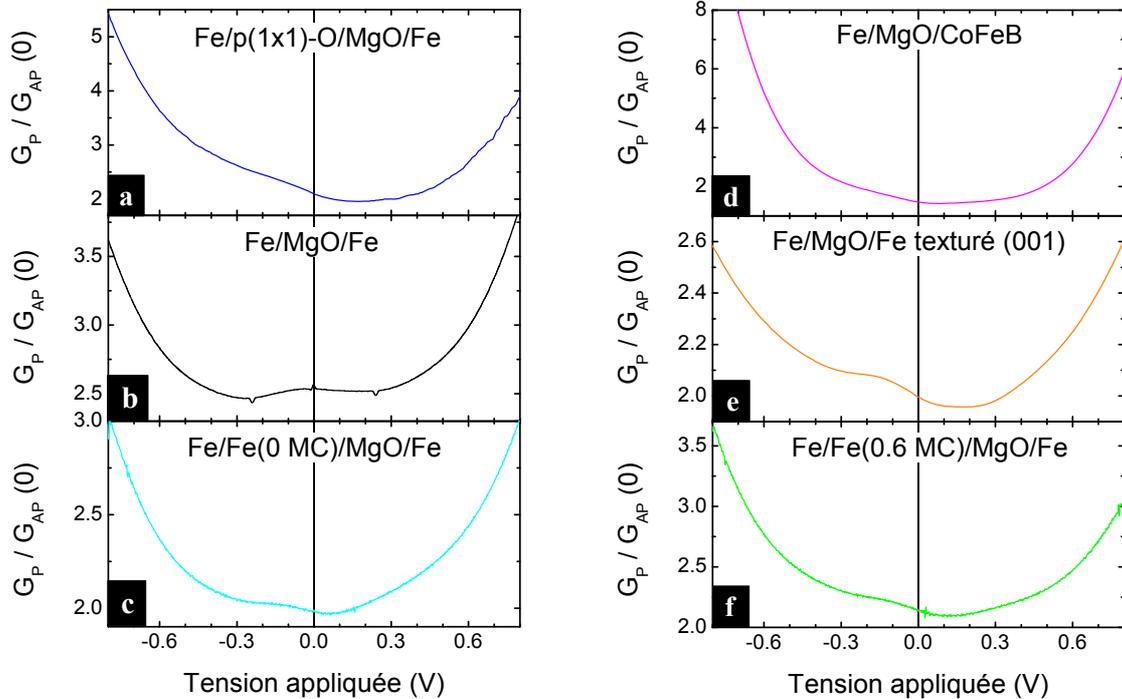


Figure III-43 – Conductance parallèle en fonction de la tension appliquée, normalisée par rapport à la valeur de la conductance AP à tension nulle, mesurée à température ambiante dans différents systèmes étudiés au cours de cette thèse ; les données de la figure (a) sont extraites de la thèse de F. Bonell [2].

Convention de signe : en tension positive, les électrons sont injectés vers l'électrode supérieure.

Dans les jonctions Fe/MgO/Fe à texture (001), l'origine de la signature de l'oxydation sur la conductance parallèle n'a pas été établie jusqu'à présent. Au regard des résultats obtenus sur les échantillons avec îlots, nous pensons qu'elle peut être similaire dans les deux cas. En effet, la présence des joints de grains peut limiter la distance sur laquelle des atomes de fer peuvent diffuser à la surface de l'électrode inférieure lors de son recuit, et par conséquent confiner la taille des terrasses à la taille d'un grain. Le résultat serait alors un accroissement de la densité de bords de marches dans ce type d'échantillon par rapport aux jonctions monocristallines, et une interaction amplifiée entre les atomes de Fe en bords de marches et l'oxygène.

Par ailleurs, les résultats obtenus sur les jonctions hybrides et avec îlots poussent à s'interroger sur l'effet du recuit de l'empilement complet. Les travaux de thèse de Muriel Sicot [163] ont montré qu'un recuit maîtrisé, comme dans le cas des jonctions

Fe/MgO/Fe(001) monocristallines présentées au cours de ce chapitre, améliore la TMR par rapport à un échantillon non recuit (voir par exemple, la jonction avec 0 MC de Fe étudiée dans la section III - 3). Cette augmentation de la valeur de TMR est habituellement attribuée à une amélioration de la qualité structurale de l'électrode supérieure et de son interface avec la barrière. Toutefois, au vu de la dégradation de l'interface inférieure observée dans l'échantillon hybride suite à un recuit mal contrôlé, cette étape de recuit paraît avoir deux actions antagonistes qui coexistent : une amélioration de la structure cristalline de l'électrode supérieure, et une altération des interfaces. Comme le montre l'augmentation de TMR observée en présence d'îlots, donc de rugosité, l'introduction d'un certain degré de désordre n'est pas forcément préjudiciable à une forte TMR. L'augmentation de TMR engendrée par le recuit de l'électrode supérieure n'est donc sans doute pas seulement imputable à une élévation de la qualité structurale de l'électrode supérieure, mais aussi à une modification des interfaces avec l'introduction d'une rugosité modérée.

III - 5.1.2 Dépendance en température : filtrage en symétrie

Une dépendance en température non monotone de la résistance parallèle a également été observée pour les différentes jonctions étudiées, résultant de la compétition entre deux mécanismes ayant des variations opposées avec la température. Nous nous proposons ici de séparer ces deux contributions, afin d'analyser plus précisément la contribution qui tend à une augmentation de résistance avec la température.

Nous supposons que ces deux contributions sont liées à des canaux de conduction de nature différente, placés en parallèle ; cela suggère donc d'adopter une représentation en termes de conductances, qui s'additionnent pour des canaux parallèles, plutôt qu'en termes de résistances. Nous avons donc reporté sur les Figure III-44 (a) et (b) les dépendances en température des conductances P et AP mesurées à 10 mV ; afin de comparer les différents échantillons étudiés au cours de ce chapitre, ces conductances ont été normalisées par rapport à leur valeur à basse température, et notées $G_{P,AP}^N = G_{P,AP}(T)/G_{P,AP}(T \rightarrow 0K)$. La structure des échantillons, leur TMR à basse température, ainsi que les notations que nous utiliserons pour les identifier au cours de ce paragraphe sont regroupées dans le Tableau III-1.

On peut constater sur les Figure III-44 (a) et (b) que les variations en température des conductances P et AP sont différentes d'un échantillon à l'autre ; par ailleurs, on observe qu'il n'existe pas de corrélation directe entre le taux de TMR et les variations en température observées en P ou AP.

Tableau III-1 – Récapitulatif des caractéristiques des échantillons étudiés dans ce chapitre. Sauf mention contraire, les échantillons ont une structure monocristalline (001).

	Structure de l'échantillon	TMR à basse température	§
A	Fe/MgO(13.5 MC)/Fe	290%	III - 2
B	Fe/MgO(11.5 MC)/Fe	204%	III - 3
C	Fe/MgO(11.5 MC)/Fe à texture (001)	170%	III - 3
D	Fe/MgO(10 MC)/Fe à électrode supérieure non recuite	165%	III - 4
D'	Fe/Fe(0.62 MC)/MgO(10 MC)/Fe	189%	III - 4
E	Fe/MgO(11.5 MC)/CoFeB	85%	III - 2

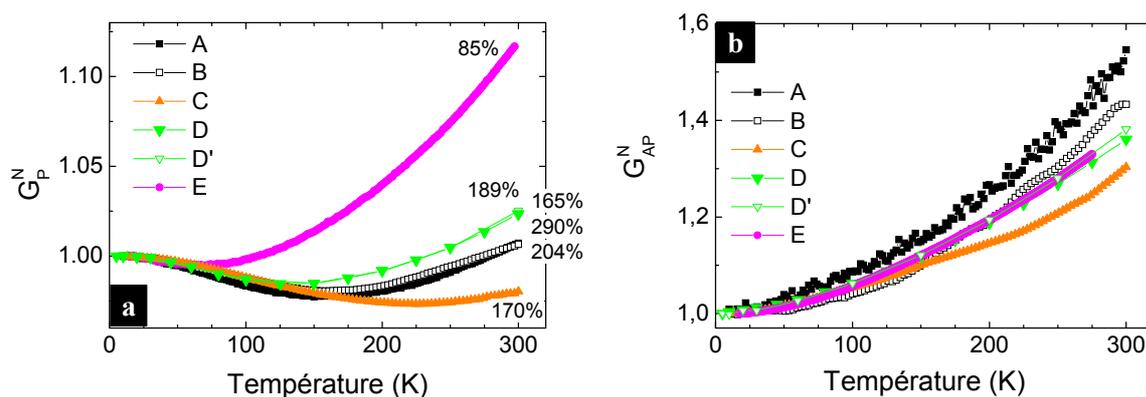


Figure III-44 – Variation en température des conductances à 10 mV normalisées par rapport à leur valeur à basse température pour les différents échantillons étudiés au cours du chapitre dans les configurations (a) P et (b) AP des aimantations. Les pourcentages correspondent aux taux de TMR mesurés à basse température. La correspondance entre les lettres majuscules et le type d'échantillon est donnée par le Tableau III-1.

Afin d'analyser la conductance parallèle, nous considérons qu'elle est composée des deux canaux de conduction suivants :

- un canal de conduction à l'origine de la TMR, qui ne contribue pas à la conductance antiparallèle, que nous appellerons par la suite contribution « filtrée »,
- un second canal dont la conductance est indépendante de la configuration magnétique (contribution « ICM ») du dispositif (la conductance est aussi importante en configuration parallèle qu'antiparallèle) ; il n'en résulte donc aucun effet magnétorésistif.

Soient $g_{\text{filtré}}(T)$ et $g_{\text{ICM}}(T)$ les dépendances en température des conductances normalisées par rapport à la basse température de ces deux canaux. On note α la proportion de la contribution « filtrée » dans la conductance parallèle ; cette conductance parallèle s'exprime alors, si $G_P(0)$ est la conductance parallèle à $T = 0$ K :

$$G_P(T) = G_P(0) \cdot [\alpha \cdot g_{\text{filtré}}(T) + (1 - \alpha) \cdot g_{\text{ICM}}(T)] \quad (\text{III-1})$$

La conductance AP s'écrit alors :

$$G_{AP}(T) = G_P(0) \cdot (1 - \alpha) \cdot g_{\text{ICM}}(T) \quad (\text{III-2})$$

L'expression de la TMR à une température quelconque s'écrit donc :

$$TMR(T) = \frac{G_P(T)}{G_{AP}(T)} - 1 = \frac{\alpha \cdot g_{\text{filtré}}(T) + (1 - \alpha) \cdot g_{\text{ICM}}(T)}{(1 - \alpha) \cdot g_{\text{ICM}}(T)} - 1 \quad (\text{III-3})$$

Lorsque la température tend vers 0 K, les conductances normalisées $g_{\text{filtré}}(T)$ et $g_{\text{ICM}}(T)$ tendent vers 1 ; l'expression (III-3) se simplifie, et nous pouvons établir une relation simple permettant d'estimer α à partir de la TMR à basse température d'un échantillon :

$$TMR(T \rightarrow 0) = \frac{1}{1 - \alpha} - 1 = \frac{\alpha}{1 - \alpha} \quad (\text{III-4})$$

Les conductances P et AP normalisées s'expriment, en fonction de la contribution des deux canaux $g_{\text{filtré}}$ et g_{ICM} :

$$G_P^N(T) = \frac{G_P(T)}{G_P(0)} = \alpha \cdot g_{\text{filtré}}(T) + (1 - \alpha) \cdot g_{\text{ICM}}(T) \quad (\text{III-5})$$

$$G_{AP}^N(T) = \frac{G_{AP}(T)}{G_{AP}(0)} = \frac{G_{AP}(T)}{G_P(0) \cdot (1 - \alpha)} = g_{\text{ICM}}(T) \quad (\text{III-6})$$

Enfin, en combinant les relations (III-5) et (III-6), on obtient une expression de $g_{\text{filtré}}(T)$ en fonction des grandeurs expérimentalement accessibles, à savoir les conductances P et AP normalisées, et le taux de TMR *via* la constante α et la relation (III-4) :

$$g_{\text{filtré}}(T) = \frac{G_P^N(T) - (1 - \alpha) \cdot g_{\text{ICM}}(T)}{\alpha} = \frac{G_P^N(T) - (1 - \alpha) \cdot G_{AP}^N(T)}{\alpha} \quad (\text{III-7})$$

Cette relation revient à effectuer la soustraction $G_P(T) - G_{AP}(T)$ (expressions (III-1) et (III-2)), et à la normaliser par rapport à la valeur atteinte lorsque la température tend vers zéro.

A partir de cette relation (III-7), nous avons tracé sur la Figure III-45 la variation de $g_{\text{filtré}}$ avec la température pour les différents échantillons. On observe ainsi une décroissance

monotone avec la température, qui se superpose très bien pour tous les échantillons, et ce malgré la forte disparité des valeurs de TMR observées, de 85 à 290%, correspondant à des variations de α de 0.46 à 0.74. La dépendance en température de ce canal $g_{\text{filtré}}$ est donc identique au premier ordre pour tous les échantillons ; par conséquent, elle ne dépend pas des caractéristiques spécifiques mais doit au contraire relever d'un phénomène intrinsèque commun aux différentes jonctions. Nous pouvons ici mentionner que dans l'étude de Kou *et al.* [62] sur des systèmes CoFeB/MgO/CoFeB texturés, la différence ΔG entre les conductances P et AP, équivalente à la contribution $g_{\text{filtré}}(T)$ de notre analyse, présente également une décroissance, dont l'amplitude entre 15 K et 300 K est similaire à celle que nous observons.

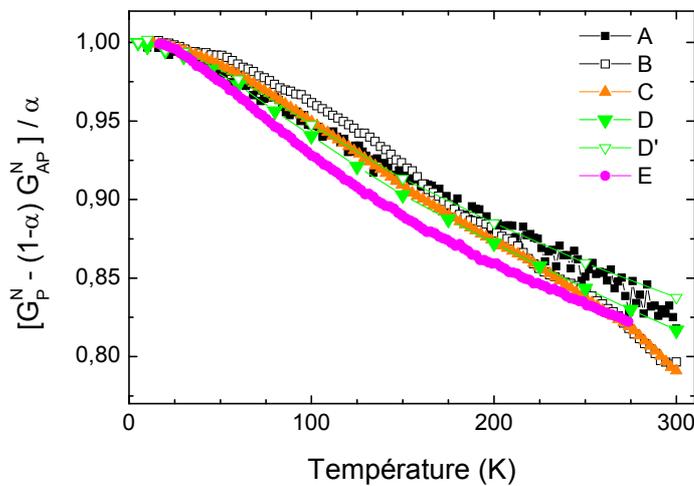


Figure III-45 – Evolution en température de la conduction du canal $g_{\text{filtré}}$ pour les différents échantillons considérés.

Le dénominateur commun de tous ces échantillons étant la présence d'une électrode de fer, nous pouvons relier la contribution $g_{\text{filtré}}$ à sa structure électronique. Cette contribution $g_{\text{filtré}}$ peut alors être majoritairement attribuée à la propagation des états de symétrie Δ_1 , ce canal étant polarisé à 100% et donc responsable en grande partie de la TMR observée ; la contribution du canal Δ_5 est certainement beaucoup plus faible, du fait de la polarisation nettement plus basse de ce canal.

La dépendance en température du canal $g_{\text{ICM}} = G_{AP}^N$ a été discutée précédemment ; nous renvoyons donc le lecteur aux paragraphes III - 2.3 et I - 1.4. Concernant l'interprétation de la dépendance en température observée pour le canal $g_{\text{filtré}}$, plusieurs hypothèses ont également été évoquées au paragraphe III - 2.3, afin de rendre compte d'une conductance diminuant lorsque la température augmente. Celle s'appuyant sur la variation en température de la polarisation $P(T)$ des électrodes a été utilisée de manière satisfaisante par Kou *et al.* pour reproduire la variation en température de la différence de conductances ΔG observée dans [62]. Dans notre cas, des mesures en température entre 5 K et 300 K ont révélé une variation

de l'aimantation de seulement 2% pour une couche de 50 nm de Fe, correspondant à une électrode inférieure typique des jonctions étudiées. Considérant que la variation de la polarisation est de cet ordre de grandeur pour les deux électrodes, la variation en température de la conductance prévue par ce mécanisme (donnée par $P_1(T).P_2(T)$) serait donc inférieure à 5% entre 5 K et 300 K. Ce mécanisme contribue donc probablement à la diminution avec la température de la conductance $g_{\text{filtré}}$ que nous observons, mais ne permet pas d'en rendre compte seul.

Il serait donc nécessaire pour reproduire l'amplitude de la variation observée de $g_{\text{filtré}}(T)$ de faire intervenir le dernier mécanisme proposé, correspondant à une perte de conductance du canal Δ_1 avec la température par le biais de diffusions vers des états de plus faible transmission à travers la barrière de MgO, de symétrie $\Delta_5, \Delta_2, \Delta_2'$ ou de $k_{//} \neq 0$.

En résumé, nous avons extrait, à partir d'une analyse pourtant extrêmement simplifiée, une contribution à la conductance parallèle présentant une dépendance en température qui semble être robuste pour différents systèmes à barrière de MgO, de divers degrés d'ordre cristallin. Sa variation en température peut essentiellement être attribuée à la diminution de la conductance du canal Δ_1 avec la température, par diffusion de ces états vers d'autres canaux ayant un plus fort taux d'atténuation dans le MgO.

III - 5.2 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons étudié les propriétés de transport de trois systèmes présentant des qualités cristallines diverses, et intermédiaires entre celle des jonctions polycristallines, et celle des jonctions entièrement monocristallines.

En premier lieu, nous nous sommes intéressés à des jonctions Fe/MgO/CoFeB, dans lesquelles la cristallisation de la couche de CoFeB n'était pas complète. Nous y avons mis en évidence un effet d'oxydation de l'interface inférieure, ainsi qu'une diminution importante des effets de filtrage en symétrie, qui ont fortement réduit les performances de ces jonctions en termes de propriétés de transport.

Nous avons ensuite étudié des échantillons Fe/MgO/Fe à texture (001), et avons ainsi montré qu'une cohérence cristalline conservée sur une échelle de l'ordre de la dizaine de nanomètres permet d'observer toutes les caractéristiques typiques aux échantillons entièrement monocristallins.

Enfin, nous avons considéré des systèmes monocristallins où, par le biais d'îlots de fer de hauteur monoatomique, un désordre contrôlé a été introduit à l'interface Fe/MgO inférieure. Nous avons alors constaté une augmentation de la TMR. L'introduction d'îlots permet en effet de conditionner à l'interface inférieure une hybridation entre le fer et l'oxygène dans une

direction préférentielle, engendrant une amélioration des effets de filtrage en symétrie dans ces jonctions.

Cette dernière étude présente un intérêt majeur, dans la mesure où des effets de l'interface ont pu être mis en évidence sans avoir recours à un quelconque élément polluant, et sans modification des caractéristiques de volume de l'électrode inférieure. Les effets d'interface et de volume sur les propriétés de transport y sont ainsi décorrélés. A l'inverse, que ce soit pour les JTMS Fe/MgO/CoFeB ou à texture (001), la modification des propriétés volumiques s'est également soldée par une action collatérale sur les caractéristiques de l'interface, s'agissant dans le premier cas d'une oxydation par interdiffusion, et dans le second d'une augmentation de la densité de marches à l'interface inférieure, due à une limitation de la diffusion de surface par la présence des joints de grains. La distinction que nous sommes parvenus à faire entre ces deux effets généralement indissociables ouvre ainsi des perspectives pour une meilleure compréhension des processus de transport dans les jonctions tunnel magnétiques texturées présentant les taux record de TMR.

Chapitre IV - Couplage magnétique dans des JTMs à barrière fine de MgO

Les jonctions tunnel magnétiques Fe/MgO/Fe(001) épitaxiées présentent, lorsque l'épaisseur de la barrière de MgO est inférieure à quatre plans atomiques, une forte interaction antiferromagnétique (AF) entre les deux électrodes de fer. Ce couplage, pourtant mis en évidence dès 2002 par Faure-Vincent *et al.* [107], n'a pas à ce jour fait l'objet d'études expérimentales réellement poussées ; de ce fait, l'origine de ce couplage demeure mal connue. Une des raisons pouvant expliquer cet apparent désintérêt se trouve probablement dans la difficulté d'élaboration. En effet, le couplage AF se manifeste dans une gamme d'épaisseur de MgO très étroite. De plus, il a été observé uniquement dans les systèmes préparés par épitaxie par jets moléculaires (MBE), aucune interaction AF n'ayant été rapportée pour les jonctions à aimantation planaire préparées par pulvérisation cathodique. On peut néanmoins noter qu'une interaction AF a été relevée dans le cas de jonctions texturées CoFeB/MgO/CoFeB à aimantation perpendiculaire [172, 173].

En nous appuyant sur des mesures en température, et en agissant sur la structure électronique de l'interface Fe/MgO, nous tenterons donc dans ce chapitre de collecter de nouvelles informations, pouvant éclaircir le mécanisme sous-jacent au couplage AF dans les JTMs épitaxiées Fe/MgO/Fe à barrières fines élaborées par MBE. La caractérisation structurale par microscopie électronique en transmission des échantillons étudiés présentée au Chapitre II, a permis d'établir la continuité des barrières dans cette gamme d'épaisseurs ; nous nous attacherons dans ce Chapitre IV à la caractérisation des interactions magnétiques dans ces échantillons par le biais de leur variation en température.

Nous présenterons brièvement dans une première partie les spécificités des systèmes antiferromagnétiques artificiels (AAF) étudiés. La deuxième partie sera consacrée à l'analyse, grâce à un modèle que nous introduirons, du comportement en température de plusieurs échantillons AAF Fe/MgO/Fe(001). Les deux sections suivantes du chapitre concerneront l'effet de la modification de la structure électronique de l'interface Fe/MgO inférieure, induite par la présence de carbone ou l'insertion d'îlots de fer. Nous terminerons enfin en confrontant nos observations avec des réalisations expérimentales précédentes.

IV - 1 Les systèmes antiferromagnétiques artificiels (AAF¹)

L'étude des interactions magnétiques entre deux électrodes peut être conduite soit avec des échantillons présentant une architecture douce/dure de type Fe/MgO/Fe/Co décrits au Chapitre I, soit simplement avec un AAF Fe₁/MgO/Fe₂, où les deux couches de fer ont des épaisseurs différentes. Nous avons choisi le deuxième dispositif, représenté sur la Figure IV-1, qui permet, si l'épaisseur de la couche Fe₂ est suffisamment faible, l'utilisation d'une technique optique comme la microscopie Kerr pour observer les retournements des deux électrodes.

Précisons que ces systèmes AAF, contrairement aux systèmes décrits au Chapitre I (§ I - 2.4.2) comportant une couche magnétiquement dure, permet exclusivement l'étude du couplage AF : dans un AAF, un couplage ferromagnétique se traduit en effet par un retournement simultané des deux couches.

Après la présentation de ces systèmes, nous exprimerons l'intensité du couplage en fonction des paramètres expérimentaux.

IV - 1.1 Structure d'un AAF

La structure typique de ces échantillons est représentée sur la Figure IV-1 les conditions d'élaboration correspondent à celles décrites dans le Chapitre II ; toutefois, afin de ne pas détruire la fine barrière de MgO, l'électrode supérieure (Fe 2) ne subit pas de recuit.

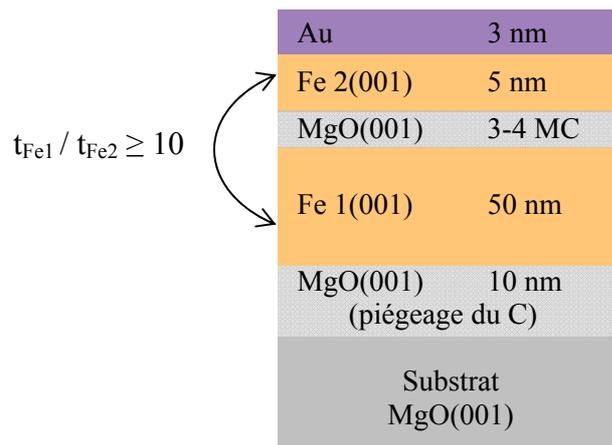


Figure IV-1 – Structure d'un échantillon antiferromagnétique artificiel AAF.

¹ AAF : *Artificial AntiFerromagnet*.

IV - 1.2 Comportement magnétique

Des cycles d'aimantation pour deux échantillons Fe/MgO/Fe(001) de type antiferromagnétique artificiel, mesurés suivant un axe de facile aimantation sont représentés sur les Figure IV-2 et Figure IV-3. Nous commençons par la description de la Figure IV-2, qui correspond au cas le plus général.

Pour des champs magnétiques suffisamment intenses, supérieurs au champ dit de saturation h_s (étape (a)), les aimantations des deux couches sont parallèles et alignées avec le champ magnétique : le système est dans un état magnétique saturé. Lorsque l'intensité du champ diminue, et devient inférieure au champ de saturation, l'aimantation de la couche la plus fine se retourne sous l'influence du couplage antiferromagnétique, celui-ci prenant le dessus sur le terme d'interaction Zeeman. Un palier se produit au cours de ce retournement (étape (b)), correspondant à une configuration à 90° des aimantations des deux couches de fer : l'aimantation de la couche fine se trouve alors piégée le long du second axe de facile aimantation du système.

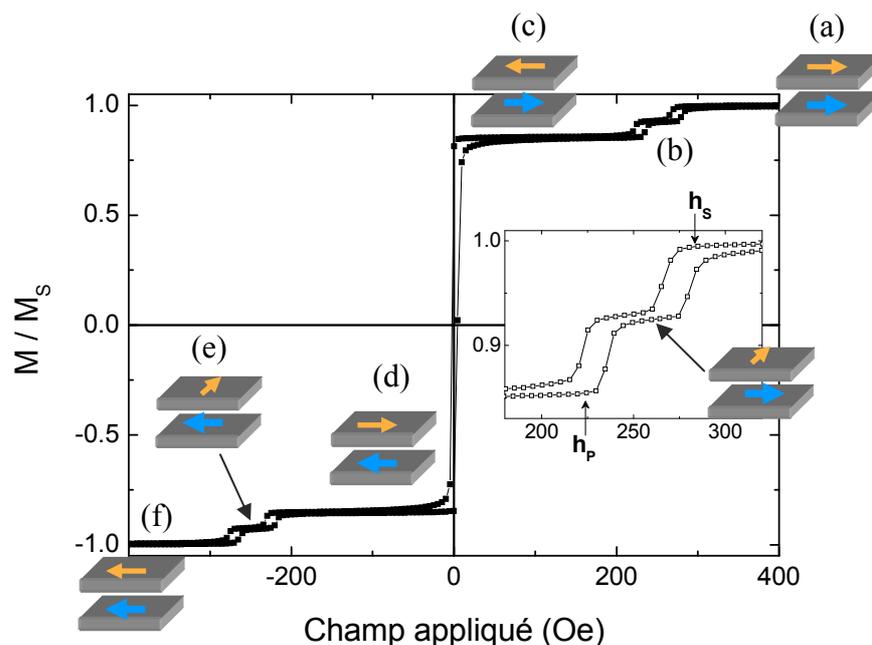


Figure IV-2 – Cycle d'aimantation d'un système AAF de structure Fe(50 nm)/MgO(3 MC)/Fe(5 nm)/Au(3 nm) mesuré à 300 K, et configurations magnétiques correspondant aux différentes étapes décrites dans le texte.

En diminuant encore l'intensité du champ, la configuration antiparallèle est atteinte pour un champ dit de plateau, noté h_p (étape (c)). Cette configuration est celle qui minimise l'énergie du système entre $+h_p$ et $-h_p$, ce qui signifie que le système se comporte dans cette gamme de champs comme une couche unique de moment net égal à $m_1 - m_2$. En renversant la direction du champ appliqué, la configuration est inchangée, jusqu'au champ coercitif de l'AAF : on observe alors un retournement en bloc du système (étape (d)), correspondant à

l'alignement du moment net de l'AAF avec la direction du champ appliqué. Enfin, pour des valeurs croissantes de champ en valeur absolue, le système sature finalement suivant la direction du champ appliqué (étape (f)), en passant de nouveau par un état à 90° (étape (e)).

Pour de très faibles valeurs de couplage, qui correspondent au cas particulier de la Figure IV-3, l'écart entre les champs h_s et h_p devient si faible que les cycles d'aimantation ne présentent plus le plateau correspondant à l'état à 90° , qui n'est donc plus stabilisé ; dans ce cas, on n'observe plus sur les cycles d'aimantation que les étapes (a), (c), (d) et (f) décrites précédemment.

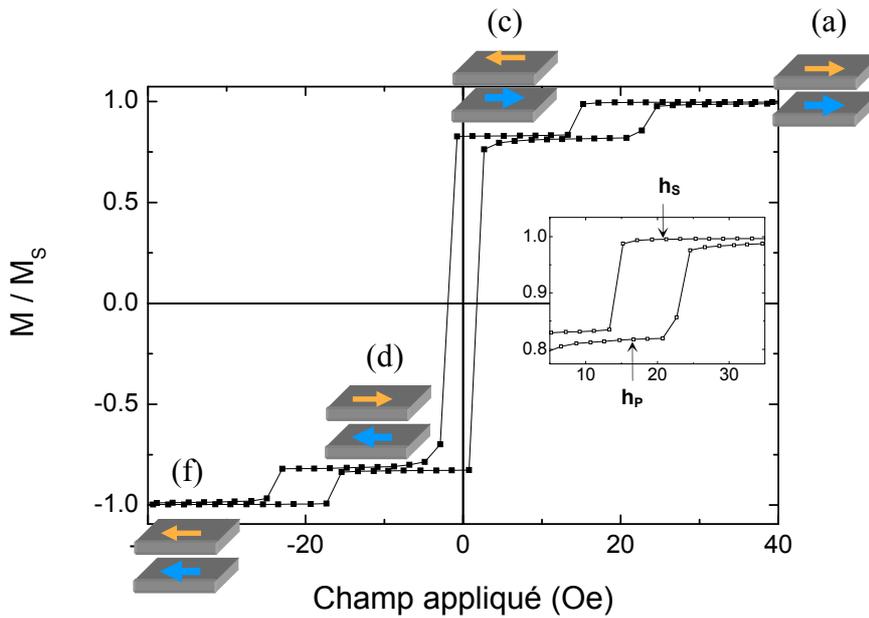


Figure IV-3 – Cycle d'aimantation d'un système AAF de structure $Fe(50\text{ nm})/MgO(3.85\text{ MC})/Fe(5\text{ nm})/Au(3\text{ nm})$ mesuré à 300 K ; pour cette épaisseur de barrière, l'état à 90° des aimantations n'est plus stabilisé. Les configurations magnétiques correspondant aux différentes étapes décrites dans le texte.

IV - 1.3 Expression des constantes de couplage J et J_b

Le problème se posant à présent est d'établir une relation entre les champs mesurés h_s et h_p et l'intensité du couplage antiferromagnétique entre les deux couches de fer. En nous basant sur des travaux précédents de J. Faure-Vincent [1] et l'article [15], nous avons établi une expression analytique de la constante de couplage bilinéaire J . Nous nous situons pour cela dans l'approximation du modèle de Stoner-Wohlfarth, supposant un retournement des aimantations par rotation cohérente, sans formation de domaines magnétiques. Nous considérons le système AAF représenté sur la Figure IV-4, constitué de deux couches magnétiques de Fe, caractérisées par leur épaisseur t_1 ou t_2 , leur aimantation \mathbf{M}_1 ou \mathbf{M}_2 de norme égale à la valeur de l'aimantation à saturation du Fe M_{Fe} , et leur constante d'anisotropie magnétocristalline par unité de volume K_1 ou K_2 . Nous modélisons les interactions entre ces deux couches par un couplage bilinéaire d'intensité J , négative dans le

cas d'un couplage AF, et un couplage biquadratique d'intensité J_b également négative, ce couplage favorisant une configuration à 90° des aimantations des deux couches. Les angles entre les aimantations des deux couches magnétiques et la direction d'application du champ \mathbf{H} sont notés θ_1 et θ_2 , et φ est l'angle formé par un axe facile de référence avec la direction du champ (Figure IV-4, droite).

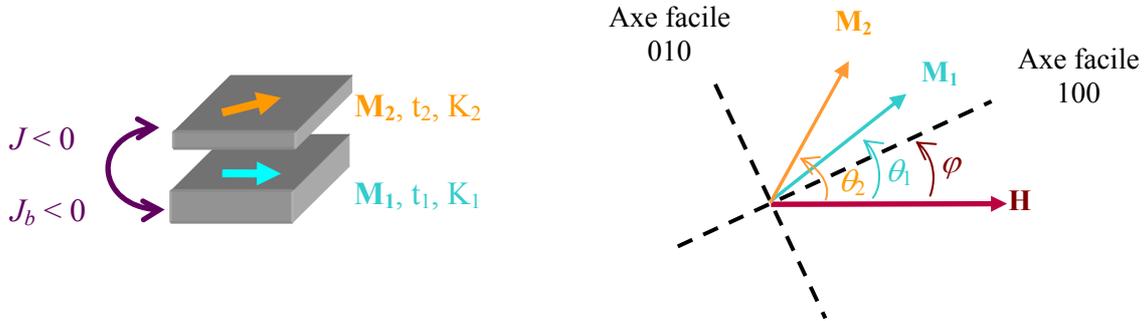


Figure IV-4 – Représentation schématique du système étudié, et notations utilisées. \mathbf{M}_1 et \mathbf{M}_2 sont les aimantations des deux couches, t_1 et t_2 en sont les épaisseurs, et K_1 et K_2 les constantes d'anisotropie d'ordre 4. J est la constante de couplage bilinéaire et J_b celle de couplage biquadratique. Les angles entre la direction d'application du champ et les aimantations ou l'axe facile de référence sont respectivement notés θ_1 , θ_2 et φ .

Dans ce cadre, plusieurs termes interviennent alors dans l'expression de l'énergie totale par unité de surface du système (on pose $\mu_0 = 1$) :

- l'énergie Zeeman, correspondant à l'interaction de chacune des couches avec le champ magnétique :

$$E_{Zeeman} = -M_{Fe} H (t_1 \cos \theta_1 + t_2 \cos \theta_2)$$

- l'énergie de couplage bilinéaire entre les couches :

$$E_{Bilinéaire} = -J \cos(\theta_1 - \theta_2)$$

- l'énergie de couplage biquadratique :

$$E_{Biquadratique} = -J_b \cos^2(\theta_1 - \theta_2)$$

- l'énergie d'anisotropie magnétocristalline d'ordre quatre :

$$E_{Anisotropie} = \frac{K_1 t_1}{4} \sin^2 2(\theta_1 - \varphi) + \frac{K_2 t_2}{4} \sin^2 2(\theta_2 - \varphi)$$

Par unité de surface, l'énergie totale du système s'écrit donc :

$$E_t = -M_{Fe} H (t_1 \cos \theta_1 + t_2 \cos \theta_2) - J \cos(\theta_1 - \theta_2) - J_b \cos^2(\theta_1 - \theta_2) + \frac{K_1 t_1}{4} \sin^2 2(\theta_1 - \varphi) + \frac{K_2 t_2}{4} \sin^2 2(\theta_2 - \varphi) \quad (IV-1)$$

La résolution complète de la minimisation de cette équation (IV-1) par rapport aux angles θ_1 et θ_2 , lorsque le champ est appliqué suivant un axe de facile aimantation ($\varphi = 0$) est effectuée dans l'Annexe A. Elle permet d'extraire les expressions analytiques des constantes J et J_b en fonction des champs de saturation h_s et de plateau h_p relevés expérimentalement sur des cycles d'hystérésis mesurés suivant un axe de facile aimantation. Ainsi, dans l'approximation $K_1 t_1 \gg K_2 t_2$, que l'on suppose vérifiée par les systèmes étudiés², on obtient les expressions (IV-2) et (IV-3), et l'on peut schématiser la situation comme sur la Figure IV-5 ci-après :

$$J = -M_{Fe} t_2 \frac{h_s + h_p}{2} \quad (IV-2)$$

$$J_b = -\frac{M_{Fe} t_2}{2} \cdot \frac{h_s - h_p}{2} \quad (IV-3)$$

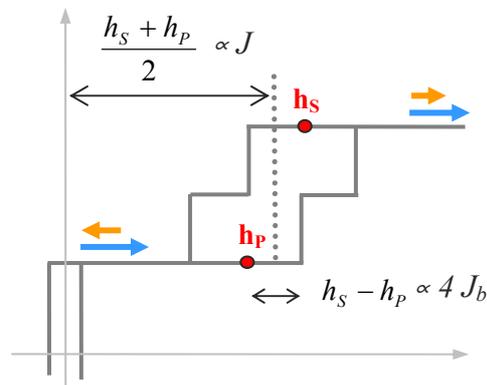


Figure IV-5 – Représentation schématique de l'action des couplages J et J_b : décalage du cycle mineur de la couche fine pour J , et écart entre les champs de saturation et de plateau pour J_b .

Nous avons observé que les champs h_s et h_p ne varient pas de la même manière, lors des mesures en température ou en angle. Dans un premier temps, afin de ne pas masquer cette caractéristique à travers le calcul de J et J_b , nous avons choisi d'attribuer à chacun de ces deux champs mesurés une intensité de couplage ; ces intensités sont logiquement notées J_s pour le champ h_s et J_p pour h_p , et définies par rapport aux deux constantes J et J_b suivant les relations (IV-4) et (IV-5) :

² Le rapport des épaisseurs des deux couches est de l'ordre de $t_1/t_2 \approx 10$; ces deux couches sont par ailleurs constituées du même matériau (le fer), elles sont donc d'anisotropies peu différentes : $K_2 / K_1 \approx 1$. Au final, $t_1 / t_2 \approx 10 \gg K_2 / K_1 \approx 1$. Dans le cas envisagé ici, où les anisotropies des deux couches sont peu différentes, on peut donc considérer qu'une couche fine se comporte par rapport à une couche épaisse comme une couche douce par rapport à une couche dure.

$$J_S = J + 2J_b = M_{Fe} t_2 h_S \quad (IV-4)$$

$$J_P = J - 2J_b = M_{Fe} t_2 h_P \quad (IV-5)$$

Les résultats seront donc présentés et analysés en termes de J_S et J_P ; par la suite, le passage –trivial– à une représentation plus classique en termes de constantes de couplage bilinéaire et biquadratique nous permettra d’effectuer des comparaisons avec divers résultats de la littérature.

IV - 2 Dépendance en température du couplage AF dans les JTMs Fe/MgO/Fe

Des échantillons de structure Fe(50 nm)/MgO(t_{MgO})/Fe(5 nm)/Au, dont l’épaisseur de MgO t_{MgO} est comprise entre 3 et 4 monocouches (MC), ont été mesurés dans des magnétomètres à SQUID³ (MPMS, S-VSM de chez Quantum Design). L’utilisation du S-VSM nous a en particulier permis de balayer une large gamme de températures, de 5 K à 600 K, grâce à un module « four ».

Nous présenterons successivement dans cette partie l’évolution des intensités de couplage J_S et J_P en fonction de la température pour différentes épaisseurs de MgO, puis le modèle d’ajustement que nous avons utilisé afin de reproduire les différents comportements observés ; enfin, nous discuterons l’évolution des paramètres d’ajustement obtenus pour les différents échantillons avec l’épaisseur de la barrière.

Dans la suite de cette section IV - 2, la couche de protection d’Au est omise dans l’expression de la structure des échantillons.

IV - 2.1 Résultats expérimentaux

IV - 2.1.1 Mesures à basse température

Les valeurs des intensités de couplage J_S et J_P ont été calculées à différentes températures à partir des champs de saturation et de plateau relevés lors de la mesure des cycles d’hystérésis de 300 K à 5 K, grâce à l’expression :

$$J_{S,P}(T) = M_{Fe}(T) t_2 h_{S,P}(T) \quad (IV-6)$$

³ SQUID : *Superconducting QUantum Interference Device* ; une description du principe de fonctionnement de ce type d’appareil peut être trouvée dans l’ouvrage [171].

Par le biais de la grandeur notée $M_{\text{Fe}}(T)$, nous avons tenu compte de la variation thermique de l'aimantation de la couche de fer de 5 nm d'épaisseur, cette variation étant également relevée sur les cycles d'aimantation. Huit échantillons présentant sept épaisseurs de barrière différentes et comprises entre 3 et 3.86 plans (6.2 à 8.1 Å) ont été étudiés, l'incertitude d'épaisseur étant estimée à 0.05 MC d'un échantillon à l'autre⁴. Le comportement en température varie d'un échantillon à l'autre, en fonction de l'épaisseur de la barrière ; trois comportements caractéristiques ont été sélectionnés et représentés sur les Figure IV-6 (a) à (c).

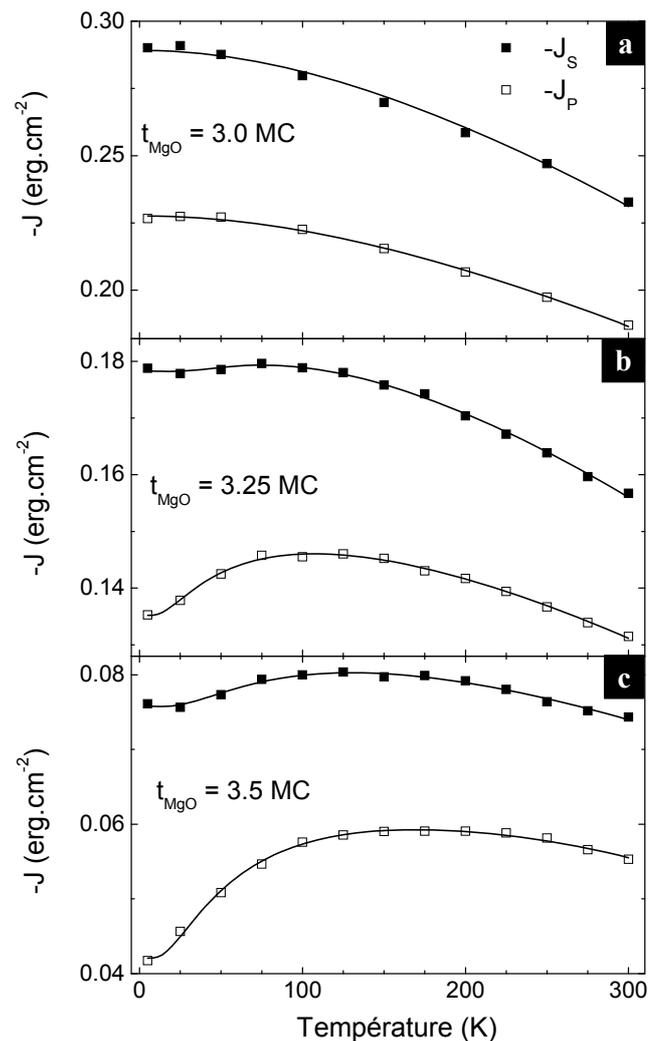


Figure IV-6 – Dépendance en température des constantes J_S (■) et J_P (□) dans des jonctions $\text{Fe}(50 \text{ nm})/\text{MgO}(t_{\text{MgO}})/\text{Fe}(5 \text{ nm})$, pour des épaisseurs de MgO t_{MgO} égales à : (a) 3.0 MC, (b) 3.25 MC et (c) 3.5 MC. Les lignes continues sont les ajustements effectués : avec l'expression (IV-9) pour la figure (a), et avec la somme des expressions (IV-9) et (IV-10) pour les figures (b) et (c).

⁴ Dans l'absolu, les épaisseurs sont connues à 0.3 MC près, mais les épaisseurs de barrière peuvent être estimées les unes par rapport aux autres beaucoup plus précisément.

D'un point de vue global, on peut constater sur ces figures qu'en valeur absolue, le couplage diminue avec l'augmentation de l'épaisseur de la barrière, conformément aux résultats publiés sur ces systèmes [107, 116]. De plus, de faibles variations d'épaisseur de barrière (inférieures à 1 MC) ont un impact important sur la dépendance en température de J_S et J_P .

En effet, pour une barrière de 3.0 plans atomiques, présentant le couplage le plus important (Figure IV-6 (a)), on relève une variation monotone des intensités J_S et J_P , toutes deux diminuant lorsque la température augmente.

A l'inverse, pour une épaisseur de barrière de 3.25 MC (Figure IV-6 (b)), les variations de J_S et J_P ne sont pas monotones : lorsque la température augmente depuis 5 K, on observe une augmentation du couplage, puis une diminution au-delà de 100 K. Ce comportement est révélateur de la présence de deux mécanismes ayant des effets en température antagonistes, l'un contribuant à la diminution du couplage avec la température (également observé sur la Figure IV-6 (a)), et le second conduisant au contraire à une augmentation du couplage lorsque la température augmente.

Enfin, pour une barrière de 3.5 MC d'épaisseur (Figure IV-6 (c)), on observe comme sur la Figure IV-6 (b) une évolution en température non monotone des deux intensités de couplage J_S et J_P . Les deux contributions mentionnées précédemment sont donc également à l'œuvre dans cet échantillon. Le poids relatif de ces deux contributions a néanmoins changé, au profit de celle visant à augmenter le couplage en température croissante : cette augmentation est en effet plus nette pour une épaisseur de barrière de 3.5 MC (Figure IV-6 (c)) que pour une épaisseur de 3.25 MC (Figure IV-6 (b)). Nous en déduisons donc que plus l'épaisseur de la barrière est importante (dans la gamme considérée), plus la contribution au couplage qui croît en température a un poids important.

En supposant une croissance couche par couche parfaite pour le MgO, ces résultats vont dans le sens de l'attribution de chacune des deux contributions à une épaisseur locale de barrière ; ainsi, la contribution au couplage présentant une décroissance en température correspondrait aux zones de barrière de trois plans atomiques d'épaisseur, alors que la contribution ayant une dépendance en température inverse (augmentation du couplage avec la température) serait de nature différente et correspondrait aux zones de quatre plans d'épaisseur. Dans cette approche, les différences de comportement observées en fonction de l'épaisseur sont logiquement justifiables : pour une barrière de trois couches atomiques, les zones à quatre plans sont absentes ou très peu nombreuses, la dépendance en température est donc monotone, et l'intensité de couplage décroît avec la température. En augmentant l'épaisseur nominale de la barrière à 3.25 MC puis 3.5 MC, la proportion des zones à quatre

plans augmente, et le poids de la contribution croissante en température également, expliquant l'apparition d'une variation non monotone en température.

IV - 2.1.2 Mesures à haute température

Nous avons ensuite réalisé des mesures à haute température, dans la gamme [300 K - 600 K], pour deux échantillons présentant des comportements différents en température entre 5 K et 300 K. Pour le premier échantillon, ayant une épaisseur de barrière de 3.0 MC, nous avons procédé en deux étapes (Figure IV-7) ; deux morceaux ont ainsi été prélevés et mesurés successivement.

Le premier, que nous avons étiqueté comme « zone a » (points de mesures en forme de triangles sur la Figure IV-7), a été placé dans le four, et un cycle d'hystérésis a été mesuré tous les 25 K jusqu'à 575 K. On observe alors que J_S et J_P diminuent avec la température jusqu'à environ 400 K, puis se stabilisent, avant de chuter brutalement à partir de 500 K. La brusque diminution se produisant aux plus hautes températures s'interprète naturellement comme une destruction de la barrière par interdiffusion et création de *pinholes* ferromagnétiques. Concernant le palier observé entre 400 et 500 K, il semble provenir d'une contribution supplémentaire, croissante en température, s'ajoutant à celle qui engendre la diminution observée entre 300 et 400 K. Cette contribution additionnelle pourrait correspondre à une signature en température du couplage par effet tunnel, le modèle de Bruno [87, 88] prédisant en effet une augmentation du couplage avec la température lorsque les deux électrodes ferromagnétiques sont séparées par une couche isolante. Une autre hypothèse envisageable pour expliquer l'origine de cette nouvelle contribution est une réorganisation de l'échantillon au niveau des interfaces, autrement dit un effet de recuit.

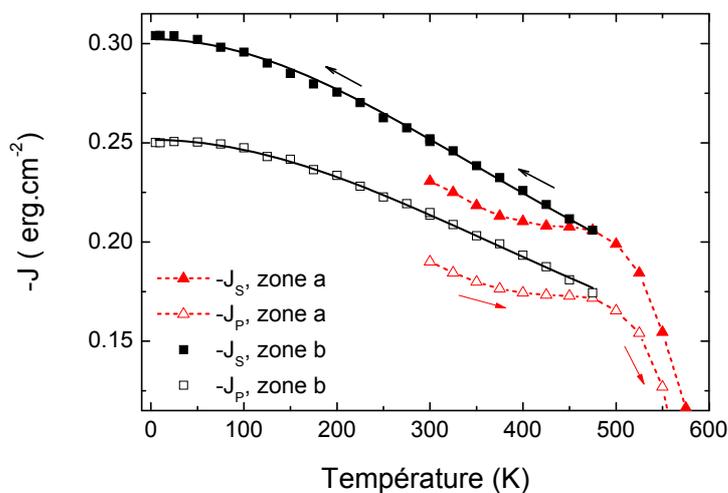


Figure IV-7 – Evolution des constantes de couplage J_S et J_P avec la température, dans la gamme 300 - 600 K (triangles rouges), et en température décroissante de 475 à 5 K (carrés noirs), pour deux morceaux d'un même échantillon de structure $Fe(50\text{ nm})/MgO(3.0\text{ MC})/Fe(5\text{ nm})$.

Dans une deuxième étape, afin d'attribuer ce palier à l'un ou l'autre des deux mécanismes, nous avons chauffé le deuxième morceau d'échantillon, nommé « zone b » jusqu'à une température de 475 K, qui correspond au maximum local sur le palier. Cet échantillon a ensuite été mesuré tous les 25 K jusqu'à 5 K⁵ (points de mesures carrés sur la Figure IV-7). On constate qu'après le passage à 475 K, les mesures de 300 à 475 K de l'échantillon « zone a » et de 475 K à 300 K de la « zone b » ne se superposent pas : cela signifie que le chauffage à 475 K des échantillons n'est pas un processus réversible. La contribution additionnelle qui augmente le couplage avec la température et se manifeste au-delà de 350 K ne traduit donc pas la manifestation d'un couplage par effet tunnel (qui serait réversible), mais un effet de recuit de l'échantillon.

Ces mesures ont été reproduites sur un échantillon présentant une dépendance en température non monotone, dont la barrière a une épaisseur de 3.5 MC (Figure IV-8) ; l'échantillon a ainsi été chauffé jusqu'à 475 K (triangles rouges) puis mesuré au cours du refroidissement de 475 K à 5 K (carrés noirs). Comme pour l'échantillon précédent, les mesures à des températures supérieures à 300 K ne montrent qu'une décroissance monotone des grandeurs J_S et J_P avec la température.

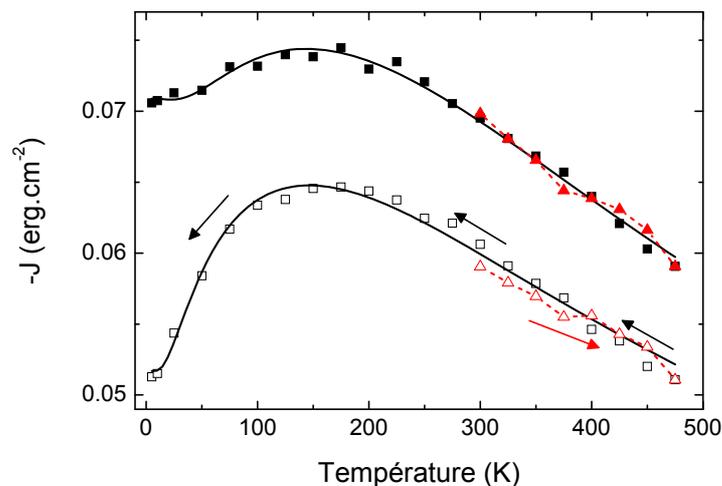


Figure IV-8 – Evolution des constantes de couplage J_S et J_P avec la température, dans la gamme 300-475 K (triangles rouges), et en température décroissante de 475 K à 5 K (carrés noirs), pour un échantillon de structure Fe(50 nm)/MgO(3.5 MC)/Fe(5 nm).

Les mesures à haute température pour deux échantillons, présentant des variations en température de J_S et J_P différentes, ont donc montré dans les deux cas une décroissance

⁵ Notons que du fait des contraintes expérimentales, la mesure de 475 K à 5 K a lieu en deux étapes, dans deux environnements différents : de 475 K à 300 K avec le four de l'appareil, et de 300 K à 5 K, avec le cryostat. Les deux mesures sont ensuite mises bout à bout, en effectuant si besoin une recalibration de l'une d'entre elles.

monotone des intensités de couplage au-delà de 300 K. Ainsi, à haute température, aucune contribution croissante en température, pouvant indiquer la présence d'un couplage par effet tunnel direct selon le modèle de P. Bruno, n'a été mise en évidence dans ces échantillons.

IV - 2.2 Modélisation des dépendances en température de J_S et J_P

Les résultats expérimentaux présentés au paragraphe précédent ont montré que le couplage antiferromagnétique (AF) dans les jonctions Fe/MgO/Fe résulte d'au moins deux contributions, ayant des variations opposées en température. Par ailleurs, nous avons cherché une signature d'un couplage par effet tunnel direct, auquel est habituellement attribué le couplage AF dans ces systèmes. Nous n'avons cependant pas observé la signature prédite par P. Bruno [87, 88] dans le cas d'un couplage par effet tunnel à travers un isolant. Nous présentons donc dans cette section un modèle analytique et phénoménologique simple, comportant deux contributions, et permettant de reproduire avec un minimum de paramètres tous les comportements observés pour les différents échantillons étudiés.

Nous commencerons par l'établissement de la relation modélisant la contribution décroissante en température, celle-ci pouvant être aisément extraite de la dépendance en température observée pour les échantillons à plus faible épaisseur de barrière, à laquelle elle contribue seule. La seconde relation sera alors introduite dans une deuxième étape.

IV - 2.2.1 Contribution d'échange

La décroissance en température observée pour l'échantillon d'épaisseur de barrière égale à 3 MC est qualitativement en accord avec la variation en température attendue par Zhuravlev *et al.* [93] pour un couplage par effet tunnel résonant. Aucune expression analytique de la dépendance en température n'est cependant donnée dans ces travaux. Or, comme cela a été décrit au cours du Chapitre I, une telle décroissance de l'intensité de couplage AF avec la température est observée dans des systèmes où l'espaceur non magnétique est une couche métallique. La dépendance en température du couplage peut alors souvent être ajustée, comme dans les travaux de Zhang *et al.* [89] ou de Almeida *et al.* [164], en utilisant la relation analytique (IV-7) établie par P. Bruno dans son modèle d'interférences quantiques [88] pour les systèmes à couche séparatrice métallique. Dans cette relation (IV-7), T_0 est une température caractéristique ayant une valeur de l'ordre de la centaine de Kelvins, et J_0 la valeur maximale du couplage, atteinte à 0 K :

$$J(T) = J_0 \cdot \frac{T/T_0}{\sinh(T/T_0)} \quad (\text{IV-7})$$

Nous avons donc essayé d'ajuster par une loi de cette forme les dépendances en température expérimentales de J_S et J_P obtenues pour une épaisseur de barrière de 3.0 MC ; le résultat obtenu pour J_S est représenté par la courbe en trait plein sur la Figure IV-9. On peut constater sur cette figure que la décroissance du couplage en température est qualitativement reproduite, mais l'accord entre l'ajustement et les points expérimentaux peut encore être amélioré.

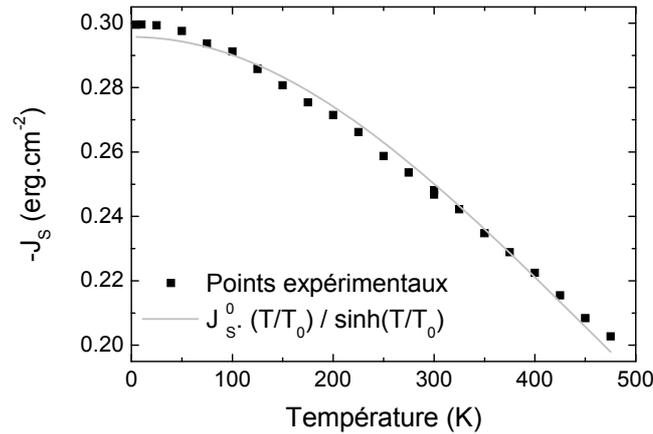


Figure IV-9 – Dépendance en température de J_S dans une jonction Fe(50 nm)/MgO(3 MC)/Fe(5 nm) (points), et ajustement par la loi de Bruno (en trait plein).

Afin de mieux reproduire l'allure de la courbe expérimentale, nous avons modifié le terme régissant la dépendance en température du couplage, en y ajoutant une distribution du paramètre $1/T_0$ que l'on note α pour simplifier l'écriture. Ce paramètre α varie alors entre 0 et une valeur limite a . L'ajout de cette distribution à l'équation (IV-7) donne alors :

$$J(T) = J_0 \frac{\int_0^a f(\alpha) \frac{\alpha T}{\sinh(\alpha T)} d\alpha}{\int_0^a f(\alpha) d\alpha} \quad (\text{IV-8})$$

Concernant la forme de la distribution $f(\alpha)$, nous avons opté pour la distribution représentée sur la Figure IV-10. Outre sa simplicité, cette distribution permet de conserver dans l'équation (IV-8) un nombre de paramètres inchangé par rapport à l'équation (IV-7) : un paramètre donne la courbure de la dépendance en température, et un autre la valeur du couplage à température nulle.

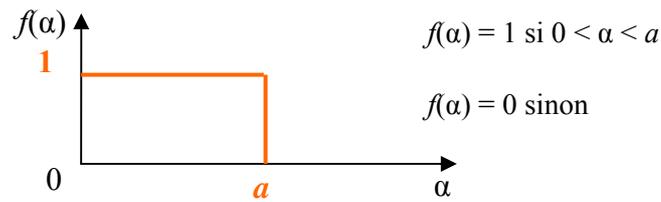


Figure IV-10 – Forme de la distribution $f(\alpha)$ choisie.

Concrètement, l'effet d'une telle distribution est de moyenner sans pondération différentes variations en température, dont la courbure et par conséquent la décroissance en température augmentent avec α (Figure IV-11). Ainsi, $\alpha = 0$ correspond à un terme invariant en température, et $\alpha = a$ au terme dont la courbure et la décroissance en température sont les plus grandes parmi tous les termes de la somme.

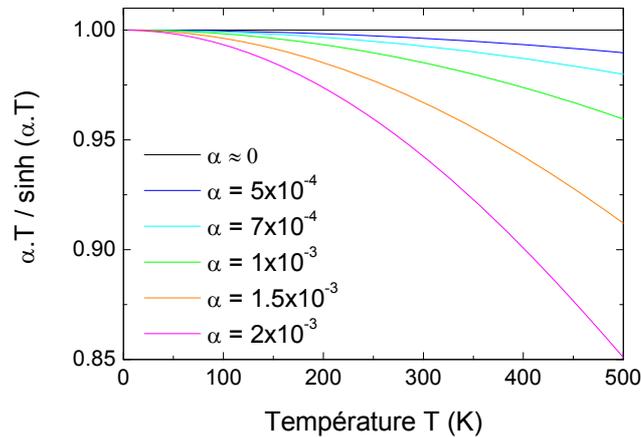


Figure IV-11 – Variation en température de la fonction $\alpha T / \sinh(\alpha T)$ pour différentes valeurs de α , comprises entre 0 et $2 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$.

La simplification de l'équation (IV-8) avec la forme de la distribution donne, en tenant compte du fait que l'on a à ajuster les variations des deux constantes de couplage J_S et J_P :

$$J_{S,P}^{exc}(T) = \frac{J_{S,P}^{exc}}{a_{S,P}} \int_0^{a_{S,P}} \frac{\alpha T}{\sinh(\alpha T)} d\alpha \quad (\text{IV-9})$$

Nous avons donc effectué cet ajustement pour l'échantillon avec 3 MC de MgO. Le résultat de ces ajustements est représenté pour J_S sur la Figure IV-12 (trait rouge), et comparé au résultat du précédent ajustement, sans l'introduction de la distribution (en gris). On peut ainsi constater que les mesures sont bien mieux reproduites lorsque l'ajustement est effectué à l'aide de l'équation (IV-9), tout en conservant le même nombre de paramètres d'ajustement.

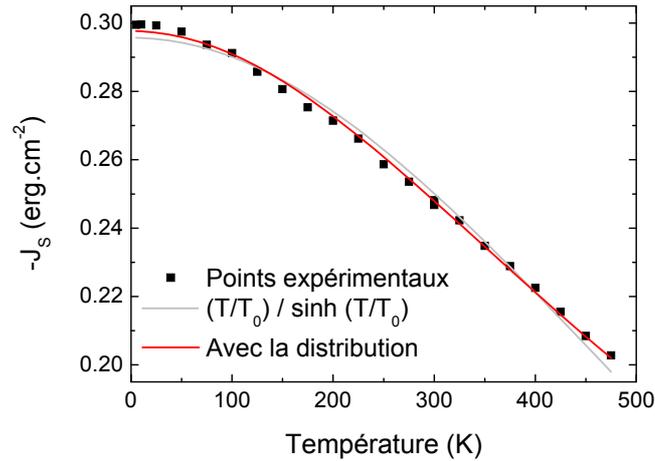


Figure IV-12 – Dépendance en température de J_S dans une jonction Fe(50 nm)/MgO(3 MC)/Fe(5 nm) (points), et comparaison des ajustements effectués avec la relation : (IV-7) (trait gris), ou (IV-9) (trait rouge).

Afin d'éprouver la robustesse de la relation (IV-9), nous l'avons testée sur une autre gamme de températures (5 - 300 K). Les paramètres d'ajustement obtenus dans les deux cas, pour J_S et pour J_P , sont reportés dans le Tableau IV-1 ; on peut ainsi constater que les paramètres obtenus entre 5 K et 300 K sont dans les barres d'erreur de ceux obtenus entre 5 K et 450 K, pour le champ de plateau et pour le champ de saturation.

Tableau IV-1 – Paramètres d'ajustement obtenus sur deux gammes de températures, pour une jonction Fe(50 nm)/MgO(3 MC)/Fe(5 nm).

	5-300 K	5-450 K
a_s (K ⁻¹)	$(6.68 \pm 0.08) \times 10^{-3}$	$(6.50 \pm 0.05) \times 10^{-3}$
J_S^{exc} (erg.cm ⁻²)	0.2985 ± 0.0006	0.2978 ± 0.0006
a_p (K ⁻¹)	$(6.02 \pm 0.06) \times 10^{-3}$	$(6.09 \pm 0.04) \times 10^{-3}$
J_P^{exc} (erg.cm ⁻²)	0.2474 ± 0.0004	0.2477 ± 0.0004

La relation est donc robuste sur toute la gamme de température étudiée ; nous conservons donc par la suite cette expression (IV-9) pour modéliser la contribution au couplage qui décroît en température.

Pouvoir ajuster la dépendance du couplage AF en température observée dans des jonctions tunnel Fe/MgO/Fe par une loi initialement prévue pour modéliser le comportement de systèmes où la couche séparatrice est métallique peut paraître surprenant au premier abord. Cela semble indiquer que la couche de MgO ne se comporte pas à cette épaisseur (3 MC) comme un isolant mais comme un métal, ce que nous interprétons comme pouvant résulter

d'un mécanisme permettant une transmission unitaire des électrons à travers la barrière, ou de super-échange par l'intermédiaire des atomes d'oxygène [165]. Concernant l'origine physique du premier mécanisme, l'hypothèse de la contribution d'un mécanisme résonant [93] évoquée dans la littérature, par un transport balistique via des impuretés dans la barrière comme des lacunes d'oxygène [94] ou impliquant l'état de résonance interfaciale du fer [12], est tout à fait plausible.

Enfin, afin de simplifier la lecture, nous appellerons par la suite cette contribution au couplage présentant une décroissance en température « terme d'échange ».

IV - 2.2.2 Introduction d'une seconde contribution

Pour les autres épaisseurs de barrière, la dépendance en température des constantes de couplage n'est pas monotone ; il est donc nécessaire d'ajouter au terme d'échange précédemment introduit un terme présentant une variation opposée avec la température.

D'après les évolutions en température présentées sur les Figure IV-6 (b) et (c), en particulier les variations des constantes J_P , on peut remarquer que l'augmentation du couplage avec la température est particulièrement marquée à basse température, à la manière d'un processus thermiquement activé. Notons que ce type de couplage antiferromagnétique et thermiquement activé a déjà été observé, dans des systèmes où un semi-conducteur amorphe sépare les deux électrodes ferromagnétiques, le silicium par exemple dans les références [111] et [112] (voir Chapitre I, § I – 2.4.1.1).

Nous modélisons donc ce terme de couplage croissant en température par une contribution « thermiquement activée », qui prend la forme d'une loi d'Arrhénius :

$$J_{S,P}^{th}(T) = J_{S,P}^{th} \cdot \exp\left(-\frac{E_{S,P}}{k_B T}\right) \quad (\text{IV-10})$$

Cette contribution contient, comme le terme d'échange deux paramètres, $J_{S,P}^{th}$ correspondant à la valeur maximale du couplage thermiquement activé, obtenue à haute température, et $E_{S,P}$ correspondant à une énergie d'activation.

Grâce à ces deux contributions, nous pouvons réaliser l'ajustement des dépendances en température non monotones. Nous avons ainsi représenté sur la Figure IV-13 l'ajustement réalisé pour J_S (en noir), dans le cas d'un échantillon dont la barrière a une épaisseur de 3.50 MC ; nous avons également reporté sur cette figure les contributions du terme d'échange $J_S^{exc}(T)$ en rouge et du terme d'activation thermique $J_S^{th}(T)$ en bleu. On peut constater que la dépendance en température de J_S observée expérimentalement est correctement reproduite par la somme des deux termes définis par les relations (IV-9) et (IV-10) (courbe noire).

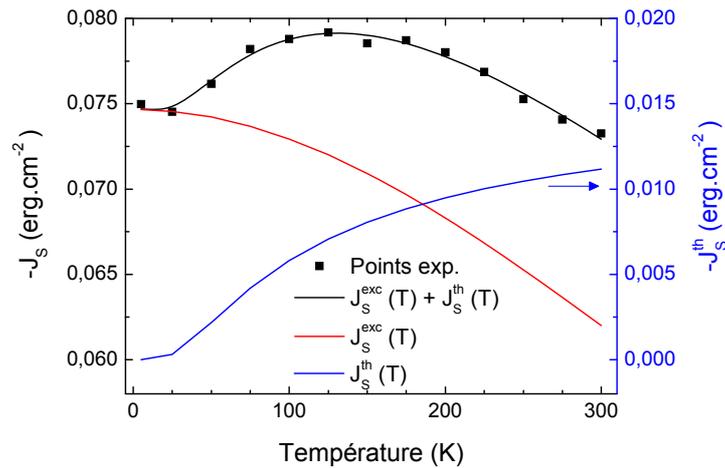


Figure IV-13 – Décomposition des deux contributions (terme d'échange en rouge, et terme thermiquement activé en bleu) intervenant dans la dépendance en température de J_S pour un échantillon de structure $Fe(50\text{ nm})/MgO(3.50\text{ MC})/Fe(5\text{ nm})$; la somme des deux contributions est représentée en trait noir.

IV - 2.3 Evolution des paramètres d'ajustement avec l'épaisseur de MgO

La Figure IV-6 (page 166) montre pour trois échantillons la qualité des ajustements de la variation en température des couplages J_S et J_P , avec l'expression (IV-9) pour le graphe (a), et la somme des expressions (IV-9) et (IV-10) pour les graphes (b) et (c). Les différents paramètres d'ajustement, obtenus pour les huit échantillons, ont été reportés en fonction de l'épaisseur de la barrière sur la Figure IV-14, les graphes (a) et (b) correspondant aux paramètres du terme d'échange, et (c) et (d) à ceux de la contribution thermiquement activée.

IV - 2.3.1 Couplage par échange vs couplage thermiquement activé

Nous commençons l'analyse de ces paramètres en comparant les évolutions avec l'épaisseur de la barrière des intensités des deux termes de couplage (Figure IV-14 (b) et (c)). Pour une barrière de 3.0 MC d'épaisseur, le terme d'échange adopte une valeur maximale pour les champs de saturation et de plateau, alors que le couplage par activation thermique ne contribue pas. La diminution de l'intensité du couplage d'échange commence en concomitance avec l'apparition du couplage par activation thermique, à partir d'une épaisseur de MgO de 3.1 à 3.2 MC. Le couplage reste néanmoins dominé par la contribution d'échange jusqu'à des épaisseurs de l'ordre de 3.4 MC, la contribution thermiquement activée ayant une intensité beaucoup plus faible : une différence d'un ordre de grandeur existe en effet entre les valeurs maximales de J^{exc} et J^{th} . Pour une épaisseur de 3.5 MC, les deux termes ont une amplitude comparable, et enfin, au-delà de 3.8 MC, l'intensité associée au terme d'échange étant très atténuée, le terme d'activation thermique devient le terme dominant.

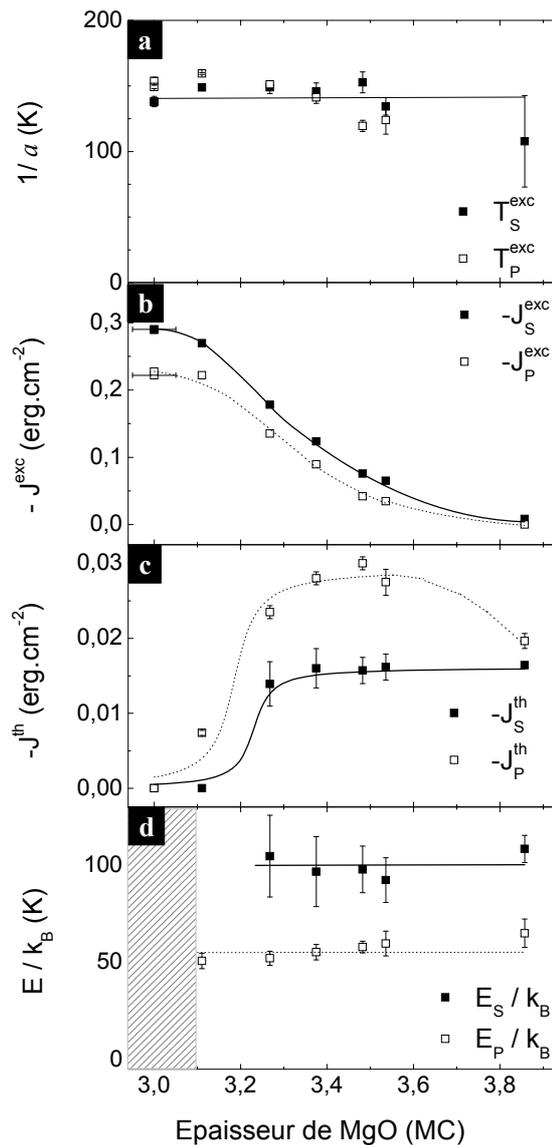


Figure IV-14 – Evolution en fonction de l'épaisseur de MgO des différents paramètres d'ajustement de $J_S(T)$ (■) et $J_P(T)$ (□) : (a) limite supérieure de la distribution de dépendance en température et (b) valeur du couplage à $T = 0$ K pour la contribution d'échange ; (c) intensité maximale du couplage dans la limite des hautes températures et (d) énergie d'activation pour la contribution par activation thermique. Les lignes sont des guides visuels.

IV - 2.3.2 Paramètres associés au terme d'échange

Nous nous intéressons à présent plus précisément aux paramètres associés au terme d'échange, et en premier lieu au paramètre a , correspondant à la limite supérieure de la distribution permettant de reproduire la variation en température de cette contribution. Ce paramètre est représenté sur la Figure IV-14 (a) sous la forme d'une température caractéristique $T^{\text{exc}} = 1/a$. On peut constater que cette température caractéristique est identique pour les champs de plateau et de saturation, et quelle que soit l'épaisseur de l'isolant. Ce résultat conforte donc *a posteriori* le modèle analytique proposé pour le terme d'échange, et

nous pouvons en déduire qu'un même mécanisme régit les dépendances en température des deux champs h_S et h_P .

Concernant les intensités de couplage J^{exc} à $T = 0$ K (Figure IV-14 (b)), on observe un comportement homothétique de J_S^{exc} et J_P^{exc} avec l'épaisseur de MgO. Leurs dépendances en température étant par ailleurs identiques, ces deux intensités J_S^{exc} et J_P^{exc} apparaissent donc comme les bornes respectivement supérieure et inférieure d'une distribution d'intensités du couplage antiferromagnétique de type échange.

Enfin, l'allure de la variation des intensités avec l'épaisseur de la barrière confirme le fait que ce mécanisme d'échange n'est présent que lorsque la barrière a une épaisseur inférieure ou égale à trois plans atomiques : en effet, la diminution de l'intensité du couplage d'échange observée quand l'épaisseur de MgO augmente peut être corrélée à la diminution de la surface occupée par les zones de 3 MC au profit de celles de 4 MC d'épaisseur.

IV - 2.3.3 Paramètres associés au couplage thermiquement activé

Concernant le couplage de type thermiquement activé, la Figure IV-14 (c) révèle que les intensités J_S^{th} et J_P^{th} sont constantes de 3.2 à 3.6 MC de MgO ; cela exclut une association de leur dépendance en épaisseur à une variation de la surface occupée par les zones de barrière de quatre plans atomiques d'épaisseur, comme nous l'avons fait plus haut pour le terme d'échange. Cette indépendance vis-à-vis de l'épaisseur de la barrière plaiderait plutôt en faveur de l'existence d'une taille ou d'une densité critique des zones de 4 MC d'épaisseur, qui, une fois atteinte, permettrait à ce couplage de se manifester. Enfin, au-delà de 3.8 MC, l'intensité associée au champ de plateau diminue, et tend vers celle associée au champ de saturation. Cela rejoint une observation faite plus haut : à cette épaisseur, le couplage thermiquement activé prend le dessus sur la contribution d'échange. Le champ de plateau ne pouvant par définition être supérieur au champ de saturation, on observe un rapprochement de ces deux champs. Cela se voit également clairement sur les cycles d'hystérésis obtenus pour cette épaisseur de barrière, où l'état à 90° des aimantations n'est plus stabilisé (cf. Figure IV-3, page 162).

Le second paramètre de cette contribution thermiquement activée, à savoir l'énergie d'activation, est représenté sur la Figure IV-14 (d) ; cette énergie est dans les deux cas (champ de saturation ou de plateau) indépendante du taux de recouvrement de la surface par le quatrième plan de MgO, comme l'intensité.

Outre ces évolutions des paramètres en fonction de l'épaisseur de l'isolant, on observe sur les Figure IV-14 (c) et (d) que les valeurs des intensités et des hauteurs de barrière sont très différentes pour les champs de saturation et de plateau. Ainsi, J_P^{th} est deux fois plus grand que J_S^{th} ; pour les hauteurs de barrière, la situation est inversée : l'énergie d'activation associée au

champ de plateau correspond à la moitié de celle associée au champ de saturation. Le mécanisme à l'origine du couplage thermiquement activé induit ainsi une forte dissymétrie entre les champs de saturation et de plateau associés à ce couplage, aussi bien sur l'intensité du couplage que sa variation en température (barrières d'activation différentes pour h_S et h_P). L'analyse des dépendances en température expérimentales en termes de champs de saturation et de plateau permet donc de mettre en évidence une brisure de symétrie dans les processus de retournement de l'aimantation entre les états 0° (P) \leftrightarrow 90° d'une part, et $90^\circ \leftrightarrow 180^\circ$ (AP) d'autre part, ce qui aurait été impossible dans une représentation plus classique en termes de constantes de couplage bilinéaire et biquadratique.

IV - 2.3.4 Influence de l'épaisseur de la couche « douce »

Nous nous sommes ensuite intéressés à l'effet de l'épaisseur de la couche la plus fine sur les intensités des deux types de couplage précédemment identifiés. Pour cela, nous avons élaboré et étudié deux échantillons supplémentaires, pour lesquels nous avons doublé l'épaisseur de la couche de Fe2 « douce », passant ainsi d'une électrode de fer de 5 nm à une électrode de 10 nm.

Les résultats de l'étude en température sont présentés sur la Figure IV-15 ; les paramètres T^{exc} et E n'ont pas été représentés sur cette figure, l'épaisseur de la couche douce n'ayant pas d'influence sur eux. On peut ainsi constater que l'intensité du couplage par échange (Figure IV-15 (a)) n'est pas affectée, alors même que le couplage par activation thermique voit son intensité doublée, pour le champ de saturation comme le champ de plateau, lorsqu'il est présent pour les fortes épaisseurs de barrière.

Ce résultat souligne de nouveau la différence fondamentale existant entre les deux contributions au couplage AF. En effet, l'intensité du terme d'échange ne dépend que de l'épaisseur de l'isolant, et le champ d'échange H^{exc} est inversement proportionnel à l'épaisseur de la couche douce, comme cela est attendu pour une interaction de surface :

$$H^{exc} = \frac{J}{M_{Fe}} \cdot \frac{1}{t_{Fe2}} \quad (\text{IV-11})$$

La portée caractéristique de cette interaction d'échange est donc largement inférieure à l'épaisseur de la couche la plus fine, soit 5 nm, ce qui correspond davantage à une interaction entre proches voisins, comme dans le cas d'un couplage par super-échange, qu'à un couplage par effet tunnel entre deux électrodes assisté d'un mécanisme résonant.

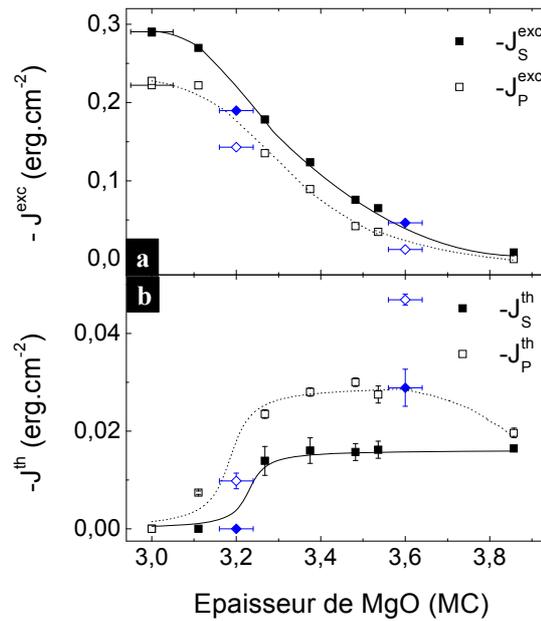


Figure IV-15 – Evolution en fonction de l'épaisseur de l'isolant de l'intensité des couplages (a) d'échange et (b) thermiquement activé, utilisés pour ajuster les couplages $J_S(T)$ (symboles pleins) et $J_P(T)$ (symboles creux), de systèmes $Fe1/MgO(t_{MgO})/Fe2$ présentant deux épaisseurs de la couche de Fe2 différentes : 5 nm (carrés noirs) et 10 nm (losanges bleus). Les lignes sont des guides visuels.

A l'inverse, l'intensité du terme de couplage par activation thermique a doublé en même temps que l'épaisseur de la couche. Ainsi, cette contribution n'est pas liée à une interaction de surface, mais relève plutôt d'une interaction à longue distance, avec une longueur caractéristique de l'ordre de l'épaisseur de la couche de Fe2. Dans ce cas, la relation (IV-11) n'est donc pas rigoureusement valide, et la valeur de J^{th} qui en est déduite ne peut pas être considérée comme une valeur intrinsèque du couplage. On peut alors attribuer ce couplage délocalisé à un transport thermiquement activé des électrons de conduction d'une électrode à l'autre, ce transport étant tel que le courant de charge entre les deux électrodes s'annule (le système est à l'équilibre) mais engendre un courant de spin net non nul. Un tel couplage par « transport » est d'ailleurs compatible avec la faible dépendance de ce terme avec le taux de recouvrement du quatrième plan de MgO. On peut en effet concevoir le processus suivant : une fois que les zones de barrière à quatre plans ont atteint une dimension latérale supérieure à la longueur de cohérence (latérale) des électrons circulant dans un sens et dans l'autre à travers la barrière, l'intensité du couplage thermiquement activé atteint une valeur de saturation pour $t_{Fe2} = 5$ nm.

Cette étude préliminaire de l'influence de l'épaisseur de Fe2 fournit ainsi de précieux indices quant à la nature des deux contributions au couplage AF ; une étude plus complète à ce sujet est d'ailleurs prévue très prochainement.

IV - 2.4 Synthèse

Nous avons étudié les dépendances en température des couplages J_S et J_P pour des échantillons de diverses épaisseurs de barrière. Différents comportements ont été observés, mais aucune signature d'un couplage par effet tunnel direct n'a pu être mise en évidence dans l'esprit du modèle de Bruno.

Afin de modéliser les comportements en température observés, nous avons établi une expression analytique contenant deux contributions dont les dépendances en température sont opposées. Ces deux contributions ont été attribuées à deux épaisseurs locales de la barrière (3 ou 4 MC de MgO) et correspondent à deux mécanismes de couplage de natures radicalement différentes. Ainsi, aux zones de barrière de trois plans atomiques d'épaisseur, nous avons associé une contribution de type « échange » par super-échange via les atomes d'oxygène de la barrière, très localisée et se transmettant de proche en proche d'une interface à l'autre. A travers les zones de barrière de quatre plans atomiques d'épaisseur, le couplage « thermiquement activé » relève d'une interaction à longue distance de type « transport », via les électrons de conduction des deux électrodes.

Les paramètres d'ajustement associés aux deux contributions ont ensuite été étudiés en fonction de l'épaisseur de la barrière, ce qui a permis de mettre en évidence une dissymétrie de J_S et J_P vis-à-vis du couplage thermiquement activé. En outre, nous disposons à présent d'un jeu de quatre paramètres, auquel nous pourrions comparer les résultats obtenus dans les sections ultérieures, en modifiant l'interface inférieure par l'insertion de carbone ou d'îlots de fer de hauteur monoatomique.

IV - 3 Contamination au carbone de l'interface inférieure

L'élaboration d'échantillons présentant une interface inférieure dopée-C et présentant une reconstruction $c(2 \times 2)$ de sa surface a été décrite au cours du Chapitre II. Rappelons que grâce à un cache *in situ*, deux zones sont définies pour chaque échantillon, et telles que l'interface inférieure est soit propre soit dopée-C ; tous les autres paramètres de croissance, et en particulier l'épaisseur de l'isolant, sont identiques pour les deux zones, afin d'isoler l'influence de la contamination au carbone sur le couplage AF entre les deux électrodes.

Nous présenterons dans cette section les résultats obtenus tout d'abord en fonction de l'épaisseur de l'isolant ; les mesures en température et leur ajustement par la procédure précédemment décrite nous permettront ensuite de discerner l'effet d'une contamination interfaciale de carbone sur les deux mécanismes contribuant au couplage.

IV - 3.1 Influence de l'épaisseur de la barrière

Nous avons tout d'abord mesuré par microscopie à effet Kerr à température ambiante l'évolution du couplage avec l'épaisseur de l'isolant sur des échantillons avec et sans carbone interfacial, où l'épaisseur de MgO varie continûment de trois à quatre plans atomiques le long d'une direction (échantillons de type *wedge*). Les résultats de ces mesures sont présentés sur la Figure IV-16 pour les deux zones de l'échantillon, à interface Fe/MgO inférieure avec (en rouge) ou sans C (en noir).

Concernant les mesures sur l'échantillon de référence (sans C), on observe une décroissance des constantes J_S et J_P avec l'augmentation de l'épaisseur de l'isolant, qui se traduit par une disparition du couplage AF au-delà de 4 MC de MgO (ou 0.84 nm), conformément aux précédentes observations [107, 116, 120]. On peut également remarquer la présence d'un changement de pente, au-delà duquel la décroissance du couplage avec l'épaisseur de MgO est plus rapide. Ce changement de pente est situé à une épaisseur d'environ 3.25 MC, correspondant à l'épaisseur où le couplage de type thermiquement activé se manifeste (cf. Figure IV-13 page 175).

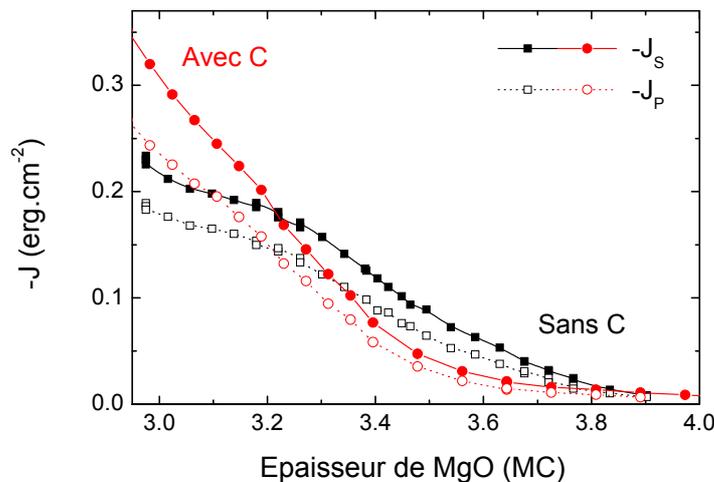


Figure IV-16 – Evolution avec l'épaisseur de l'isolant des constantes de couplage J_S et J_P mesurées à 300 K sur des échantillons $Fe(50\text{ nm})/MgO(t_{MgO})/Fe(5\text{ nm})$ (carrés noirs) et $Fe(50\text{ nm})/c(2\times 2)-C/MgO(t_{MgO})/Fe(5\text{ nm})$ (cercles rouges).

En présence de carbone interfacial (cercles rouges sur la Figure IV-16), on observe également pour cette gamme d'épaisseurs de barrière un couplage AF. Toutefois, des différences notables apparaissent entre les deux types d'échantillons, contrairement à ce qui a été auparavant rapporté à ce sujet [21, 120]. Ainsi, pour les plus faibles épaisseurs de MgO ($t_{MgO} < 3.2$ MC), la présence de carbone exacerbe le couplage, J_S et J_P étant plus importants dans l'échantillon avec C. De plus, la décroissance du couplage avec l'épaisseur de la barrière est plus rapide en présence de contamination interfaciale, de telle sorte qu'au-delà d'une

épaisseur de 3.2 MC, le couplage dans l'échantillon dopé-C devient inférieur à celui observé pour l'échantillon Fe/MgO/Fe standard. Cette observation suggère fortement que la présence de carbone entraîne une augmentation du couplage par échange, et une diminution du couplage thermiquement activé ; c'est précisément ce qui motive l'étude en température présentée ci-dessous.

IV - 3.2 Etude en température

Nous nous sommes ensuite intéressés à l'effet de cette contamination de l'interface inférieure sur l'évolution du couplage avec la température. Des mesures SQUID ont ainsi été effectuées entre 5 K et 300 K sur des échantillons présentant une barrière d'épaisseur homogène.

IV - 3.2.1 Evolution de J_S et J_P avec la température

La Figure IV-17 présente les évolutions en température des couplages J_S et J_P observées pour différentes épaisseurs de MgO, dans le cas d'échantillons monocristallins Fe/MgO/Fe (Figure IV-17 (a), rappel de la Figure IV-6) et Fe/c(2×2)-C/MgO/Fe (Figure IV-17 (b)). On peut constater sur ces figures que le carbone a un effet plutôt global sur les dépendances en température de J_S et J_P . Pour les différentes épaisseurs de barrière considérées, l'allure des courbes n'est en effet pas modifiée de manière drastique, et l'influence du carbone sur ces dépendances en température revient donc en première approche à l'effet de l'épaisseur de l'isolant observé sur la figure précédente : en présence de C, le couplage est augmenté aux faibles épaisseurs de barrière, et diminué aux plus fortes.

Ainsi, en présence de carbone, on retrouve qualitativement les mêmes comportements en température que pour des jonctions Fe/MgO/Fe pour les différentes épaisseurs de MgO ; en particulier, les variations de J_S et J_P sont non monotones aux plus fortes épaisseurs, indiquant la contribution au couplage de deux mécanismes ayant des variations en température opposées. Nous utilisons donc dans la suite la procédure d'ajustement des dépendances en température établie précédemment, afin d'étudier l'impact du dopage de l'interface au carbone sur les deux mécanismes de couplage.

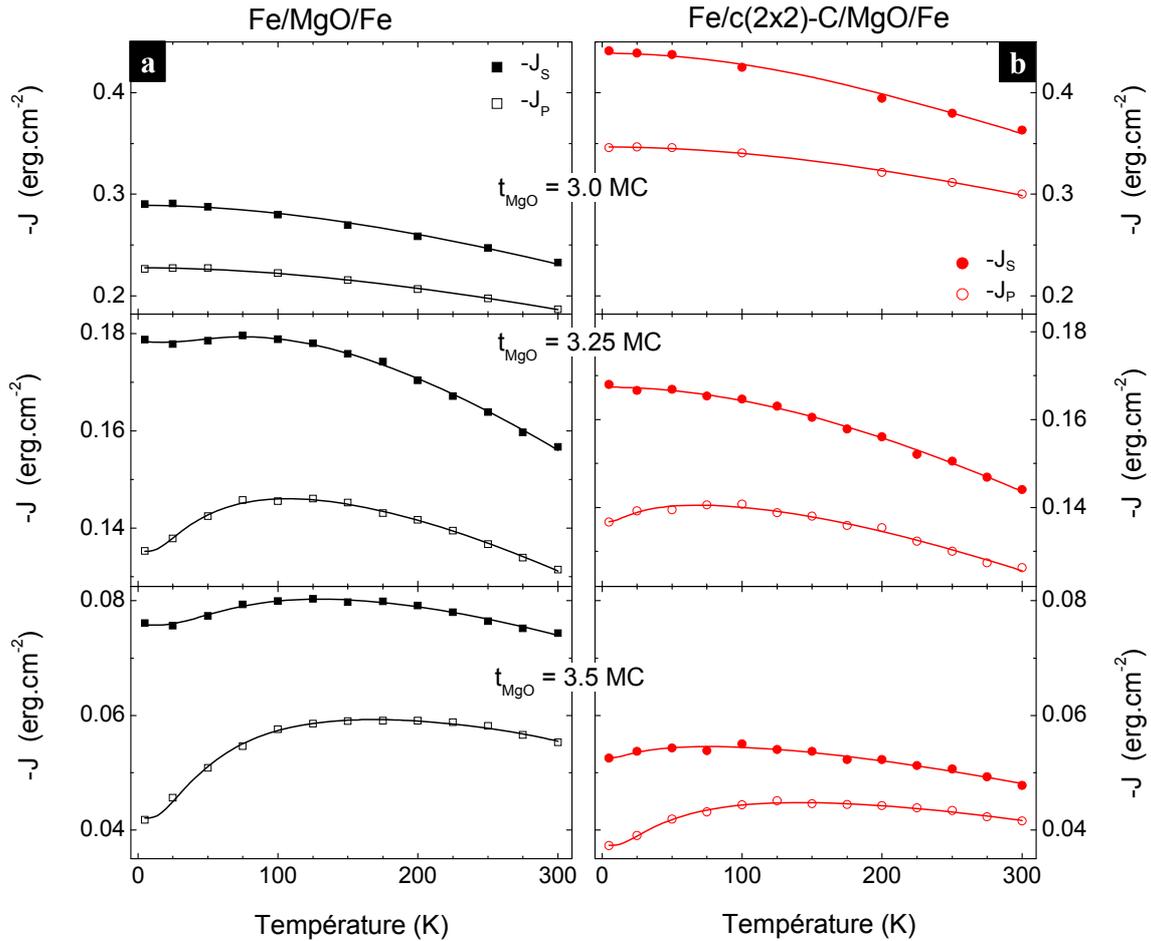


Figure IV-17 – Evolution avec la température des constantes de couplage J_S et J_P pour des jonctions (a) $Fe(50\text{ nm})/MgO(t_{MgO})/Fe(5\text{ nm})$ et (b) $Fe(50\text{ nm})/c(2\times 2)\text{-C}/MgO(t_{MgO})/Fe(5\text{ nm})$, pour $t_{MgO} = 3.0 ; 3.25 ; 3.5$ MC. Les lignes continues sont les ajustements effectués au moyen des relations (IV-9) et (IV-10).

IV - 3.2.2 Influence du C sur les paramètres d'ajustement

Les mesures en température, effectuées sur six échantillons présentant des épaisseurs de barrière comprises entre 3.0 et 3.8 MC, ont été ajustées à l'aide des relations (IV-9) et (IV-10). La Figure IV-17 illustre l'accord entre les points expérimentaux et les courbes calculées. Les résultats de ces ajustements sont présentés sur les Figure IV-18 (e)-(h), en vis-à-vis des paramètres obtenus pour des échantillons exempts de contamination (Figure IV-18 (a)-(d)), afin de faciliter la comparaison entre les deux systèmes.

IV - 3.2.2.1 Interaction d'échange

La température caractéristique T^{exc} de la contribution d'échange (Figure IV-18 (e)) ne dépend pas de l'épaisseur de l'isolant, et est similaire pour les champs de plateau et de saturation, comme pour les échantillons à interface sans carbone (Figure IV-18 (a)). Toutefois, la valeur de cette température semble légèrement plus importante en présence de C,

la valeur moyenne étant de 160 K au lieu de 140 K dans le cas « sans carbone ». L'intensité de cette contribution d'échange (Figure IV-18 (f)) est en revanche significativement affectée par la présence de carbone interfacial : on observe pour une épaisseur de barrière de trois plans atomiques une valeur de J^{exc} beaucoup plus importante en présence de carbone interfacial (Figure IV-18 (f)) que dans le cas d'une interface « propre » (Figure IV-18 (b)). A l'inverse, pour $t_{MgO} > 3.3$ MC, l'intensité du couplage d'échange est diminuée par la présence de carbone.

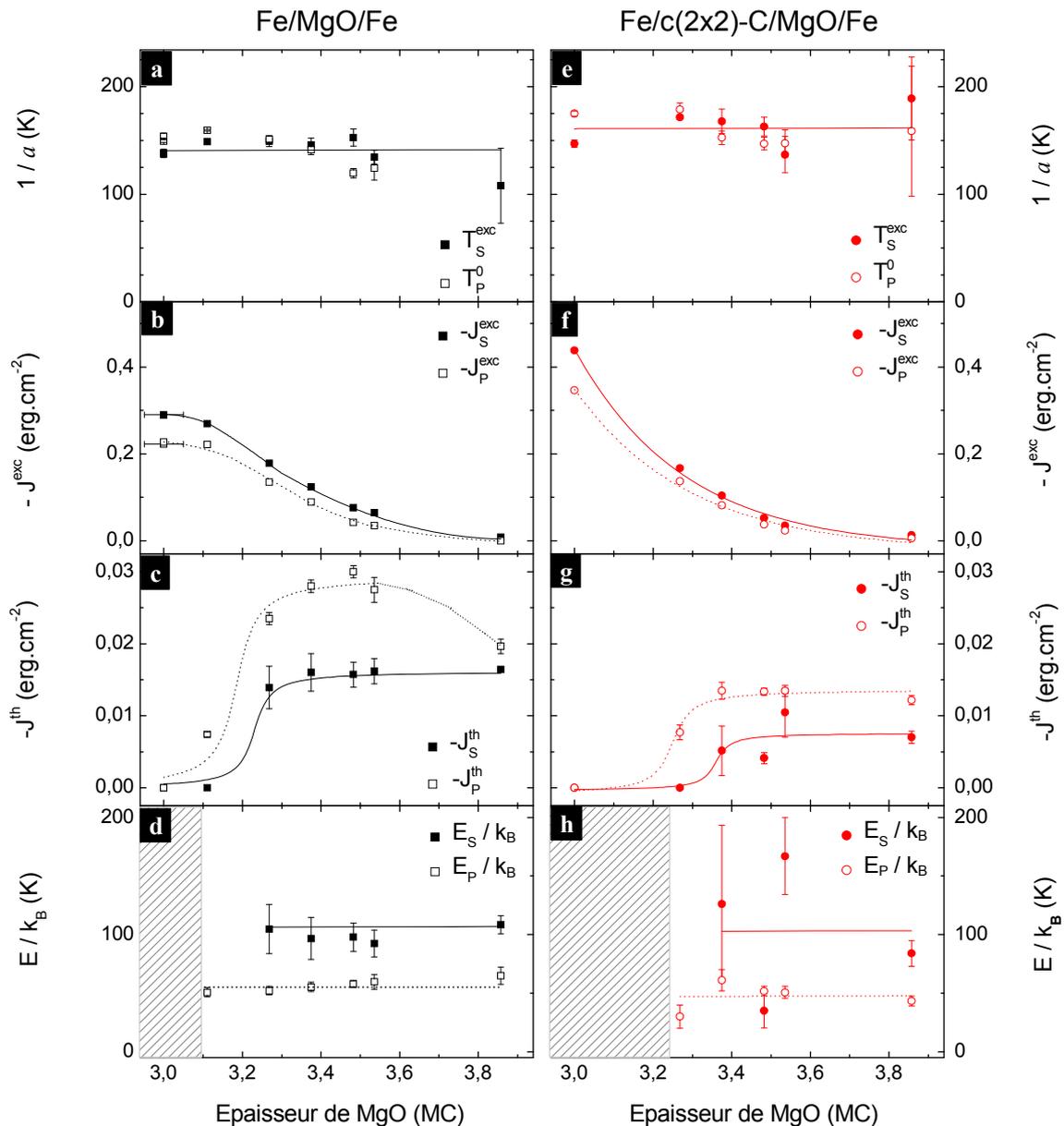


Figure IV-18 – Evolution en fonction de l'épaisseur de MgO des paramètres d'ajustement de $J_S(T)$ et $J_P(T)$: (a) limite supérieure de la distribution de dépendance en température et (b) valeur du couplage à $T = 0$ K pour la contribution d'échange ; (c) intensité maximale du couplage dans la limite des hautes températures et (d) énergie d'activation pour la contribution par activation thermique, pour des jonctions : (a)-(d) Fe(50 nm)/MgO(t_{MgO})/Fe(5 nm) et (e)-(h) Fe(50 nm)/c(2×2)-C/MgO(t_{MgO})/Fe(5 nm). Les lignes sont des guides pour l'œil.

Comme cela a été mentionné plus haut, ce terme d'échange correspond à une interaction très locale, agissant de proche en proche par super échange via les atomes d'oxygène de la barrière ; toute modification de la structure électronique des atomes situés à l'interface peut ainsi radicalement affecter l'intensité de l'interaction et donc le couplage. L'augmentation du couplage par échange pour une épaisseur de MgO de trois plans atomiques est donc une forte indication que la présence de carbone engendre un réarrangement des nuages électroniques des atomes situés à l'interface, de telle sorte qu'il favorise leur recouvrement avec ceux des atomes d'oxygène dans la barrière. Ce résultat ouvre des perspectives concernant le rôle du carbone dans l'hybridation Fe-O, qui pourraient être abordées par des calculs *ab initio*. Notons qu'un effet du carbone sur la structure électronique d'interface a déjà été observé dans des JTMs Fe/MgO/Fe à barrière épaisse, où la présence de carbone se traduit par une inversion du signe de la TMR, pour certaines valeurs de la tension appliquée [15, 166].

IV - 3.2.2.2 Contribution thermiquement activée

En ce qui concerne la contribution thermiquement activée, on remarque qu'elle se comporte de la même manière en présence de carbone (Figure IV-18 (g) et (h)) que dans le cas d'une interface non contaminée (Figure IV-18 (c) et (d)) : ainsi, malgré la diminution des intensités de couplage J^{th} en présence de carbone, on retrouve un facteur deux entre les intensités associées aux champs de saturation et de plateau. De même, les énergies d'activation des deux champs ont des valeurs proches de celles observées en l'absence de carbone interfacial, la plus grande dispersion des valeurs étant simplement reliée au fait que les intensités observées sont plus faibles, ce qui engendre une moins bonne précision dans les ajustements.

On peut également noter une apparition du couplage thermiquement activé plus tardive en termes d'épaisseur d'isolant en présence de C interfacial : ce couplage ne se manifeste en effet pour J_S et J_P qu'à partir de 3.4 MC sur la Figure IV-18 (g), alors qu'il apparaît pour une interface propre à partir de 3.25 MC (Figure IV-18 (c)). Ceci est vraisemblablement relié à une nucléation différente du MgO sur une surface de Fe dopée-C, du fait de la contraction du paramètre de surface en présence de C interfacial, que nous avons mentionnée au Chapitre II.

Concernant l'origine de la diminution de l'intensité du couplage thermiquement activé, nous avons évoqué plus haut le fait que ce couplage est issu d'un mécanisme lié à un transport de charge et de spin à l'équilibre. Or, il n'est plus à démontrer que le transport à travers une barrière isolante est très sensible aux caractéristiques des interfaces, qui gouvernent le raccordement des fonctions d'onde présentes de part et d'autre de la barrière.

Nous avons donc cherché à corréler cette diminution de couplage thermiquement activé à l'influence du carbone sur les densités d'états (DOS⁶) interfaciales. Ces dernières sont représentées pour les symétries Δ_1 et Δ_5 respectivement sur les Figure IV-19 (a) et (b), dans le cas d'une interface sans (en noir) ou avec carbone (en rouge). L'analyse de ces DOS montre que la principale modification autour du niveau de Fermi engendrée par la présence de carbone concerne les états Δ_5 minoritaires (Figure IV-19 (b)), et consiste en une forte diminution du nombre d'états de cette symétrie disponibles à E_F .

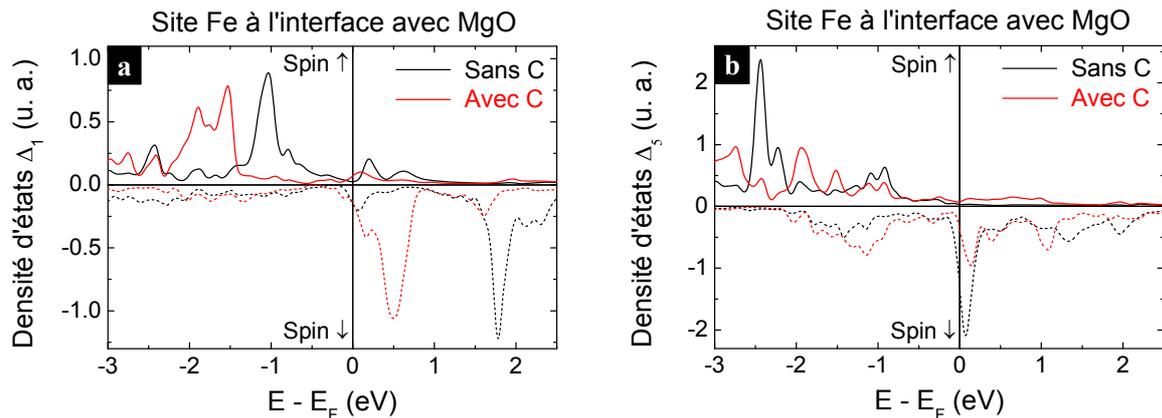


Figure IV-19 – Densités d'états au niveau des sphères atomiques de Fe en contact avec le MgO pour les symétries (a) Δ_1 et (b) Δ_5 , et pour des interfaces Fe/MgO (en noir) et Fe/c(2×2)-C/MgO (en rouge). Calcul de C. Tiusan, grâce au code Wien2k (communication privée).

Ainsi, la diminution de l'intensité de couplage thermiquement activé en présence de carbone pourrait être liée à celle de la DOS minoritaire pour les électrons de symétrie Δ_5 .

IV - 3.3 Synthèse

Nous avons donc vu qu'en présence de carbone à l'interface inférieure, le couplage antiferromagnétique entre les deux électrodes de Fe était préservé ; il conserve par ailleurs ses deux contributions, d'échange et thermiquement activée. Les température et énergie d'activation qui sont associées à ces deux contributions ne sont pas affectées par la contamination au carbone, contrairement aux intensités de couplage J^{exc} et J^{th} .

Enfin, et cela souligne de nouveau la différence fondamentale existant entre les deux mécanismes, l'influence du carbone sur l'intensité de chacun des deux termes est différente. Ainsi, en présence de carbone, la contribution d'échange voit son intensité augmenter, alors que l'intensité du couplage thermiquement activé est affaiblie.

⁶ DOS : *Density Of States*.

IV - 4 Insertion d'îlots à l'interface inférieure

Nous considérons dans cette section des échantillons présentant des îlots de Fe à l'interface Fe/MgO inférieure ; la procédure d'élaboration de ces échantillons a été décrite au Chapitre II. Nous nous intéresserons à l'effet de l'épaisseur de la barrière, puis au comportement en température présenté par ces échantillons, en focalisant l'analyse sur la comparaison d'échantillons à interface inférieure lisse ou couverte de 0.5 MC d'îlots, élaborés simultanément. Nous étudierons enfin l'influence de la densité (ou taille) des îlots sur le couplage AF, celle-ci étant modulée via le taux de recouvrement de l'interface inférieure.

IV - 4.1 Influence de l'épaisseur de la barrière

L'évolution du couplage avec l'épaisseur de MgO a été mesurée par microscopie Kerr sur des échantillons sans îlots et avec (0.5 ± 0.15) MC d'îlots de fer à l'interface Fe/MgO, où l'épaisseur de MgO varie continûment le long d'une direction (Figure IV-20).

Contre toute attente, on observe sur cette figure que l'introduction d'un désordre topologique à l'interface entre le fer et le MgO a qualitativement le même effet que l'insertion de carbone en site interstitiel (Figure IV-16). On constate en effet que pour les faibles épaisseurs de barrière (en-dessous de 3.3 MC), la présence d'îlots renforce le couplage AF. Le terme d'échange étant nettement dominant dans cette gamme d'épaisseurs, on peut alors supposer que les îlots engendrent une augmentation de ce couplage.

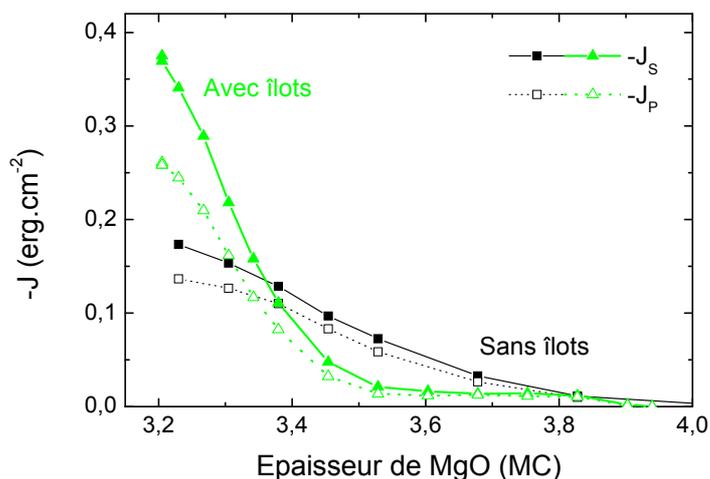


Figure IV-20 – Dépendance avec l'épaisseur de la barrière des couplages J_S et J_P mesurés à 300 K dans le cas de jonctions Fe(50 nm)/MgO(t_{MgO})/Fe(5 nm) présentant une interface inférieure lisse (0 MC de fer, carrés noirs) et avec (0.5 ± 0.15) MC d'îlots de fer (triangles verts).

De plus, comme dans le cas de l'insertion de carbone, pour les barrières présentant une épaisseur supérieure à 3.35 MC, le couplage est plus faible en présence d'îlots que dans le cas d'une interface lisse. On observe en effet une diminution très rapide de J_S et J_P lorsque l'épaisseur de MgO augmente. Plusieurs origines peuvent être invoquées pour justifier cette chute brutale du couplage avec l'épaisseur de l'isolant. On peut ainsi supposer une variation plus rapide du couplage d'échange avec l'épaisseur de MgO en présence d'îlots, ou une éventuelle diminution de la contribution thermiquement activée. Enfin, rappelons que pour une épaisseur de barrière supérieure à quatre plans atomiques, une contribution ferromagnétique d'origine dipolaire due à l'effet « peau d'orange » [117] est attendue pour ce système [107]. L'architecture des échantillons étudiés au cours de cette thèse, où les deux couches magnétiques sont douces, ne permet pas d'évaluer ce couplage. On peut cependant suspecter que ce couplage ferromagnétique, engendré par la rugosité des couches, est augmenté par la présence d'îlots. A forte épaisseur de MgO, le couplage antiferromagnétique effectivement mesuré avec îlots peut alors être réduit par rapport à celui obtenu pour une surface lisse.

La présence d'îlots semble donc accroître de manière significative l'intensité du couplage par échange à faible épaisseur de MgO ; l'analyse des variations en température du couplage va nous permettre d'éprouver cette hypothèse.

IV - 4.2 Etude en température

Des mesures en fonction de la température ont ainsi été réalisées sur ces échantillons à topographie d'interface modulée. Deux échantillons présentant une barrière d'épaisseur homogène, et dans la gamme où l'interaction d'échange domine le couplage pour une interface lisse (3.0 et 3.1 MC), ont été mesurés par magnétométrie SQUID entre 5 K et 300 K. Les dépendances en température de J_S et J_P alors obtenues en présence d'une demi-monocouche d'îlots à l'interface inférieure sont représentées sur la Figure IV-21 (b), en vis-à-vis de celles observées pour les mêmes épaisseurs de barrière et sans îlots (Figure IV-21 (a)).

On retrouve ainsi sur ces figures que, dans cette gamme d'épaisseurs de barrière, le couplage est fortement augmenté par la présence d'îlots, tout en conservant globalement une variation en température caractéristique d'un couplage d'échange. On peut donc en conclure que l'augmentation du couplage à 300 K en présence d'îlots pour les faibles épaisseurs de barrière (Figure IV-20) résulte d'un renforcement de l'intensité du couplage d'échange via les îlots de Fe à l'interface. Sans remettre ceci en cause, on peut toutefois remarquer qu'une très faible contribution du couplage thermiquement activé apparaît avec îlots pour une barrière de 3.1 MC (Figure IV-21 (b), bas), alors qu'elle est absente dans cette gamme d'épaisseur pour une surface lisse (Figure IV-21 (a), bas). On peut en effet concevoir qu'avec la modification de la topographie de l'interface engendrée par la présence d'îlots, des zones de barrière de

quatre plans d'épaisseur soient présentes dès 3 MC de MgO, et ainsi que ce terme de couplage « à 4 plans » se manifeste en présence d'îlots pour des épaisseurs nominales de barrière plus faibles.

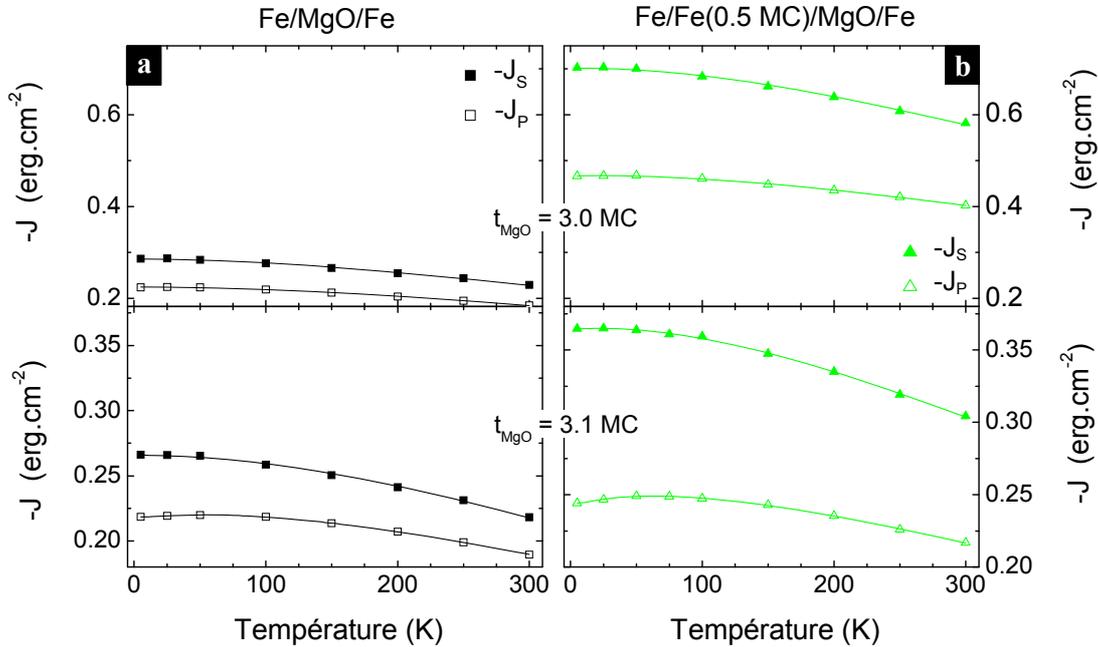


Figure IV-21 – Evolution avec la température des constantes de couplage J_S et J_P pour des jonctions $Fe(50\text{ nm})/Fe(t_{Fe})/MgO(t_{MgO})/Fe(5\text{ nm})$, où t_{Fe} correspond à un recouvrement de l'interface inférieure par : (a) 0 MC, et (b) (0.5 ± 0.15) MC de Fe, pour $t_{MgO} = 3.0$ et 3.1 MC. Les lignes continues sont les ajustements effectués au moyen des relations exposées précédemment.

La corrélation avec les résultats obtenus par les mesures de transport du chapitre précédent permet de cerner l'origine de cette augmentation du couplage par échange à faible épaisseur de barrière. Nous avons en effet observé au Chapitre III des signatures claires d'une hybridation entre les atomes de fer situés en bord d'îlots et les atomes voisins d'oxygène de la barrière, résultant en un transfert de la charge électronique sur les sites de l'oxygène. Nous supposons ainsi que ce transfert de charge est favorable aux interactions entre nuages électroniques responsables du couplage d'échange, permettant donc une augmentation de son intensité en présence d'îlots.

Notons que F. Bonell avait déjà, lors de ses travaux de thèse [2], observé une très forte augmentation du couplage AF en introduisant une monocouche ordonnée d'oxygène à l'interface inférieure, dans une jonction avec une faible épaisseur de barrière.

Ces observations constituent donc des arguments supplémentaires plaidant en faveur du mécanisme de super-échange via les atomes d'oxygène comme origine du terme d'échange. Enfin, les résultats présentés dans ce paragraphe doivent être complétés par l'étude en température d'échantillons à barrières plus épaisses ; ceci permettra alors de mieux cerner

l'origine de la décroissance très rapide du couplage avec l'épaisseur de MgO lorsque des îlots sont introduits à l'interface inférieure.

IV - 4.3 Influence de la densité d'îlots

L'évolution du couplage antiferromagnétique en fonction de la densité d'îlots de fer a été étudiée par microscopie à effet Kerr sur des échantillons de type *wedge*, où le taux de recouvrement de l'interface inférieure est varié entre 0 et 2 à 3 MC de fer grâce à l'utilisation d'un cache mobile *in situ*. Plusieurs échantillons, présentant des épaisseurs de MgO comprises entre 3.25 MC et 3.65 MC ont ainsi été élaborés et mesurés (Figure IV-22 (a) à (c)).

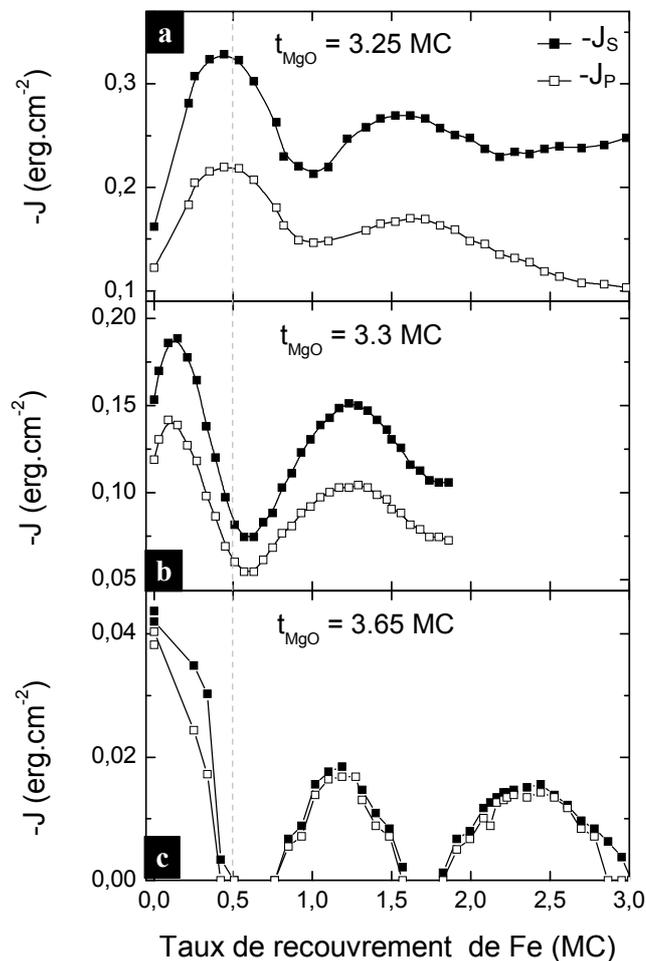


Figure IV-22 – Evolution des constantes de couplage J_S et J_P mesurées à 300 K avec le taux de recouvrement t_{Fe} de l'interface inférieure par des îlots de Fe, pour des jonctions $Fe(50\text{ nm})/Fe(t_{Fe})/MgO(t_{MgO})/Fe(5\text{ nm})$, où l'épaisseur de MgO t_{MgO} vaut : (a) 3.25 MC, (b) 3.3 MC et (c) 3.65 MC.

Sur ces figures, on observe clairement un effet de la topographie de l'interface inférieure sur le couplage antiferromagnétique mesuré : les deux constantes J_S et J_P présentent en effet une oscillation d'intensité dont la période correspond au remplissage d'une couche atomique

de fer. On peut remarquer que l'amplitude des oscillations s'amortit avec le remplissage de la couche interfaciale de fer : la valeur maximale du couplage diminue avec le recouvrement, donc avec le désordre à l'interface, et ce, quelle que soit l'épaisseur de MgO. On observe même une disparition du couplage AF pour la plus forte épaisseur de MgO, à certains taux de recouvrement de fer (Figure IV-22 (c)).

De plus, la période des oscillations est la même pour toutes les épaisseurs de barrière ; toutefois, l'augmentation de l'épaisseur de MgO entre 3.25 MC (Figure IV-22 (a)) et 3.65 MC (graphe (c)) se traduit par une modulation différente de l'intensité du couplage avec l'introduction d'îlots, et par un apparent déphasage des oscillations en fonction du taux de recouvrement.

Ce déphasage, de même que la disparition du couplage antiferromagnétique à demi-remplissage pour l'épaisseur de barrière la plus importante (Figure IV-22 (c)), peuvent s'expliquer simplement, en corrélant ce résultat avec la variation du couplage en fonction de l'épaisseur de MgO, beaucoup plus rapide en présence d'îlots (cf. Figure IV-20 et le long de la ligne pointillée sur la Figure IV-22). Ainsi, à faible épaisseur de MgO (Figure IV-22 (a)), le couplage est plus important au demi-remplissage de la couche de fer, c'est-à-dire en présence d'îlots ; cela reflète l'amplification du terme d'échange observée dans cette gamme d'épaisseurs de barrière. Pour une épaisseur de barrière de 3.3 MC (courbe (b)), le couplage a une intensité similaire pour 0 et 0.5 MC de fer : cette épaisseur correspond au cas où les courbes $J = f(t_{\text{MgO}})$ se croisent sur la Figure IV-20. Enfin, pour la barrière la plus épaisse (graphe (c)), on observe que le couplage est diminué en présence d'îlots de fer, ce qui est également en accord avec les précédentes observations.

Pour finir, on peut remarquer que les intensités J_S et J_P sont pratiquement superposées pour une épaisseur de MgO de 3.65 MC ; l'état à 90° des aimantations n'est en effet plus stabilisé dans cette gamme d'épaisseur ou d'intensités de couplage (cf. Figure IV-3, page 162).

IV - 4.4 Synthèse

Nous avons donc vu que le couplage antiferromagnétique entre les deux électrodes de Fe est modulé en présence d'îlots à l'interface inférieure, en fonction de leur densité.

A faible épaisseur de MgO, l'intensité du couplage d'échange est nettement accrue par la présence d'îlots, c'est-à-dire par un désordre topologique. Ce résultat contre-intuitif a été corrélé à l'interprétation des mesures de transport effectuées sur des échantillons à barrières épaisses avec îlots, et peut donc être compris comme résultant d'un transfert de charge entre le Fe et l'O en bords de marches. Au-delà de 3.3 MC de MgO, la décroissance attendue du couplage AF en présence d'un désordre topologique induit par les îlots est bien observée.

Enfin, cette étude de l'influence des îlots sur le couplage permet, au regard des résultats obtenus au cours du précédent chapitre, de confirmer le mécanisme de super-échange par les atomes d'oxygène de la barrière comme étant responsable de la contribution d'échange au couplage AF.

IV - 5 Conclusion

IV - 5.1 Comparaison avec des résultats antérieurs

Dans ce paragraphe, nous retrouvons une présentation « conventionnelle » des constantes de couplage, en considérant les constantes de couplage bilinéaire J et biquadratique J_b , recalculées à partir de J_S et J_P (cf. équations (IV-4) et (IV-5)). Cela nous permettra de comparer nos observations à quelques résultats expérimentaux précédemment publiés au sujet du couplage antiferromagnétique dans les JTMs Fe/MgO/Fe. Nous terminerons par une observation concernant les caractéristiques d'une barrière de MgO de très faible épaisseur.

IV - 5.1.1 Couplage AF dans Fe/MgO/Fe : un couplage par effet tunnel ?

Nous revenons tout d'abord sur les premières mesures de couplage rapportées dans ces systèmes Fe/MgO/Fe épitaxiés par Faure-Vincent *et al.* [107] (Figure IV-23 (a)) ; quelques commentaires s'imposent en effet. Tout d'abord, précisons que la structure des échantillons considérés dans cette étude est un peu différente de celle des échantillons étudiés au cours de cette thèse. Ainsi, ces échantillons comportent une vraie couche dure, l'électrode de Fe supérieure étant durcie par une couche de cobalt ; cela permet d'observer et de mesurer un éventuel couplage ferromagnétique entre les deux électrodes. De plus, l'électrode inférieure de Fe a été déposée directement sur le substrat, sans y avoir préalablement déposé une couche de MgO de piégeage du carbone résiduel ; celui-ci était donc libre de diffuser dans la couche de Fe et de ségréger en surface. Parmi les échantillons élaborés au cours de cette thèse, les plus semblables à ceux étudiés pour cet article sont donc ceux présentant une interface inférieure dopée-C ; c'est donc ces mesures que nous comparons à celles de Faure-Vincent *et al.* sur la Figure IV-23 (b).

On peut observer sur les Figure IV-23 (a) et (b) que les intensités maximales du couplage AF, notées J , sont du même ordre de grandeur dans les deux cas, et que les dépendances avec l'épaisseur de MgO sont similaires, aux incertitudes de détermination près. On observe ainsi une variation très rapide de l'intensité de couplage J entre 0.5 et 0.8 nm, c'est-à-dire approximativement entre trois et quatre plans de MgO.

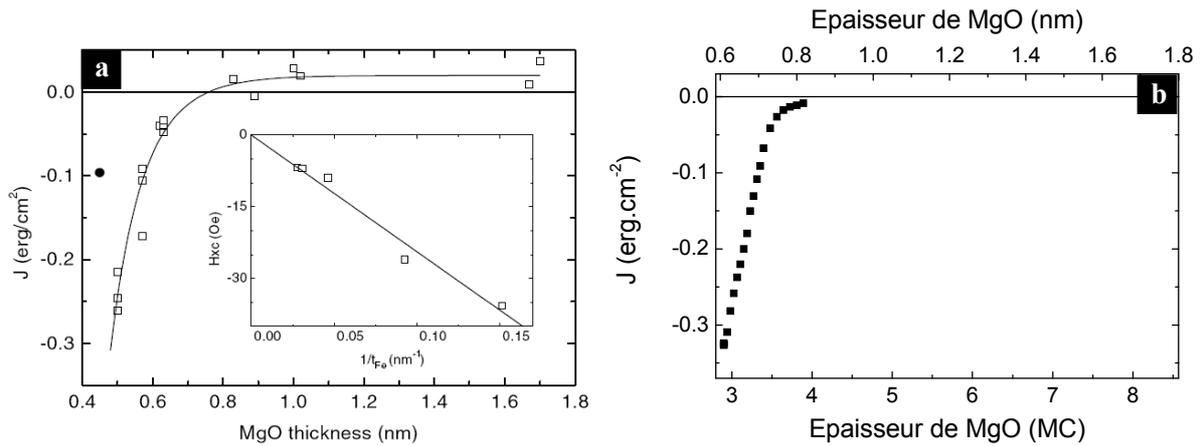


Figure IV-23 – (a) Variation de l'intensité du couplage bilinéaire J avec l'épaisseur de MgO d'échantillons Fe/MgO/Fe/Co ; la ligne continue est une estimation théorique de J avec l'expression de Slonczewski pour le couplage par effet tunnel. Insert : Variation du champ d'échange H_{xc} avec l'épaisseur de la couche douce. D'après [107] ; (b) Evolution de J avec l'épaisseur de MgO dans un échantillon Fe/MgO/Fe monocristallin à interface dopée-C.

Cette variation avait alors été interprétée à l'aide d'un modèle analytique continu, dérivé par J. Slonczewski dans l'approximation des fortes épaisseurs de barrière [9] ; cela avait conduit à la conclusion que le couplage observé était un couplage par effet tunnel d'électrons polarisés en spin (voir aussi le Chapitre I). Or, les deux hypothèses du modèle utilisé, à savoir le caractère continu de la variation de l'épaisseur de la barrière, et la forte épaisseur d'isolant, ne sont clairement pas vérifiées pour des épaisseurs de barrière variant entre trois et cinq plans atomiques. Dans une étude plus poussée et centrée sur le régime du couplage AF (3 à 4 MC de MgO), nous avons mis en évidence une variation discrète du couplage avec l'épaisseur de l'isolant. Il s'avère en effet que deux mécanismes différents, associés chacun à un nombre entier de plans de MgO, contribuent à ce couplage antiferromagnétique. De plus, aucun des deux mécanismes mis en évidence ne porte la signature en température d'un processus de couplage par effet tunnel comme le décrit P. Bruno [87].

Enfin, Faure-Vincent *et al.* ont étudié l'évolution du champ d'échange noté H_{xc} avec l'épaisseur de la couche douce t_{Fe} pour une barrière de 0.62 nm (3 MC) d'épaisseur (insert de la Figure IV-23). La dépendance linéaire de H_{xc} avec $1/t_{Fe}$ montre clairement que le couplage observé entre les deux électrodes est dû à une interaction de surface, ce qui n'est pas compatible avec le mécanisme proposé initialement de couplage par les électrons de conduction. En revanche, cette dépendance est tout à fait cohérente avec l'interprétation que nous apportons. En effet, pour l'épaisseur de barrière considérée (3 MC), la contribution d'échange est dominante ; or, elle présente justement les caractéristiques d'une interaction de surface (voir § IV - 2.3.4).

Ainsi, les mesures réalisées au cours de cette thèse sont dans la parfaite continuité de celles publiées dix ans en arrière ; toutefois, le recul offert par l'analyse poussée d'une étude complète en température nous permet aujourd'hui de remettre en cause l'interprétation alors proposée d'un couplage via des électrons tunnel polarisés en spin.

IV - 5.1.2 Evolution en température des couplages bilinéaire et biquadratique

Nous revenons dans ce paragraphe sur l'effet de la température sur le couplage, présenté ici en termes de J et J_b ; ces dépendances en température sont représentées sur les Figure IV-24 (a) et (b), pour différentes épaisseurs de MgO. On peut tout d'abord remarquer que J_b augmente systématiquement lorsque la température diminue, contrairement à J , qui suit une évolution non monotone pour les épaisseurs les plus importantes. Cette évolution non monotone reflète la compétition des deux contributions, d'échange et thermiquement activée, variant de manière opposée avec la température.

Concentrons-nous à présent sur le couplage biquadratique et son évolution en température (Figure IV-24 (b)). A faible épaisseur de MgO (3 MC), J_b augmente d'environ 20% lorsque la température décroît de 300 K à 5 K. A l'inverse, à plus forte épaisseur, le couplage biquadratique varie de manière beaucoup plus importante ; par exemple, pour une barrière de 3.5 MC d'épaisseur, il double presque entre 300 K et 5 K. Cette variation est plus particulièrement marquée en-dessous de 100 K, où une divergence de J_b se dessine.

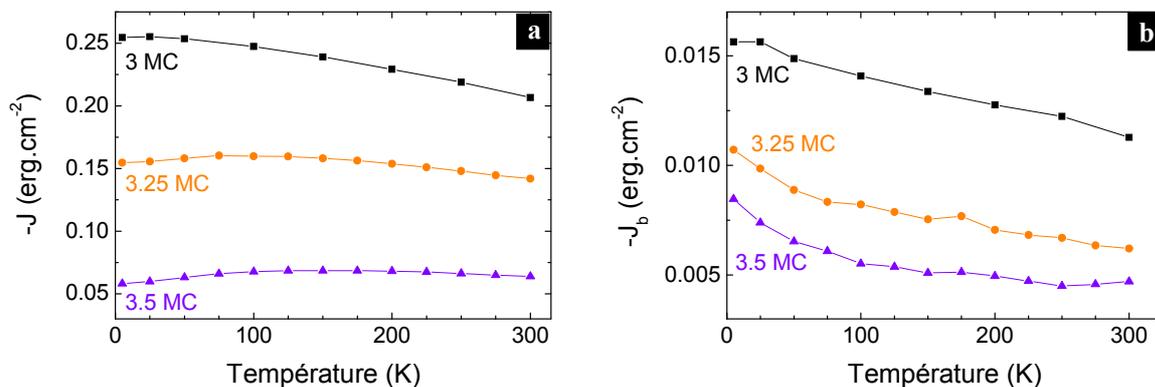


Figure IV-24 – Evolution en température des constantes de couplage (a) bilinéaire J et (b) biquadratique J_b dans des échantillons $Fe(50\text{ nm})/MgO(t_{MgO})/Fe(5\text{ nm})$.

Cette variation caractéristique pourrait être interprétée avec le modèle de *loose spins* développé par J. C. Slonczewski [102] (voir Chapitre I), autrement dit comme une interaction indirecte entre les couches de Fe via des impuretés magnétiques dans la barrière, comme l'ont fait Chiang *et al.* [120] dans leurs travaux de 2009. Ce modèle ne permet toutefois pas d'expliquer de manière unifiée les comportements en température observés pour les

différentes épaisseurs de MgO, dans notre cas comme dans le cas de Chiang *et al.* ; ces derniers doivent en effet faire intervenir des impuretés soit d'interface soit situées au milieu de la barrière, suivant l'épaisseur de barrière considérée.

Au regard des résultats présentés dans ce manuscrit, en termes de constantes de couplage associées aux champs de plateau et de saturation, une explication plus globale de ces résultats est permise. Ainsi, la divergence de J_b n'apparaît que pour les plus fortes épaisseurs de barrière, lorsque la contribution thermiquement activée se manifeste ; aux plus faibles épaisseurs, quand l'interaction d'échange est dominante, cette caractéristique est absente. Il est donc tout naturel d'attribuer la divergence observée à basse température à la contribution de type thermiquement activé, et en particulier à son caractère anisotrope vis-à-vis de J_S et J_P (cf. § IV - 2.3.2).

Ce second exemple nous permet ainsi de montrer que les modèles classiques, basés sur une description des couplages bilinéaire et biquadratique, masquent la complexité du comportement des systèmes Fe/MgO/Fe présentant un couplage antiferromagnétique. De ce point de vue, l'apport de notre analyse est donc majeur.

IV - 5.1.3 Une barrière à gap modulable ?

Nous terminons par un retour sur une remarque faite plus tôt au cours de ce chapitre, lors de l'identification des deux contributions au couplage AF par le biais de leur dépendance en température. Ainsi, nous avons mentionné que l'intensité de l'interaction d'échange, associée aux zones de barrière de trois plans atomiques d'épaisseur, diminue avec l'augmentation de la température, à la manière du couplage observé dans les multicouches {matériau ferromagnétique / métal non magnétique / matériau ferromagnétique}. De même, le terme thermiquement activé, correspondant aux zones de quatre plans d'épaisseur, présente une dépendance en température typique des systèmes couplés de type {matériau ferromagnétique / matériau semi-conducteur / matériau ferromagnétique}.

Ce comportement discret du couplage AF dans les JTMS Fe/MgO/Fe vis-à-vis de l'épaisseur de MgO entre 3 et 5 MC peut être rapproché d'une discontinuité des propriétés de transport de ces JTMS dans la même gamme d'épaisseurs de barrière. En effet, récemment, la signature d'un comportement non isolant d'une barrière de MgO a été rapportée par Matsumoto *et al.* [167], d'après l'étude des propriétés de transport de JTMS Fe/MgO/Fe pour une large gamme d'épaisseurs de barrière (Figure IV-25). Ces auteurs observent ainsi, pour des barrières de 0.6 nm d'épaisseur (3 MC) présentant une faible valeur du produit RA, une évolution en température des résistances caractéristique d'un transport métallique à travers le MgO (Figure IV-25 (a), insert de gauche). Le comportement en température attendu pour un

transport tunnel des électrons à travers une barrière isolante n'est alors observé qu'à partir de 1 nm d'épaisseur, soit environ 5 MC de MgO (Figure IV-25 (a), insert de droite).

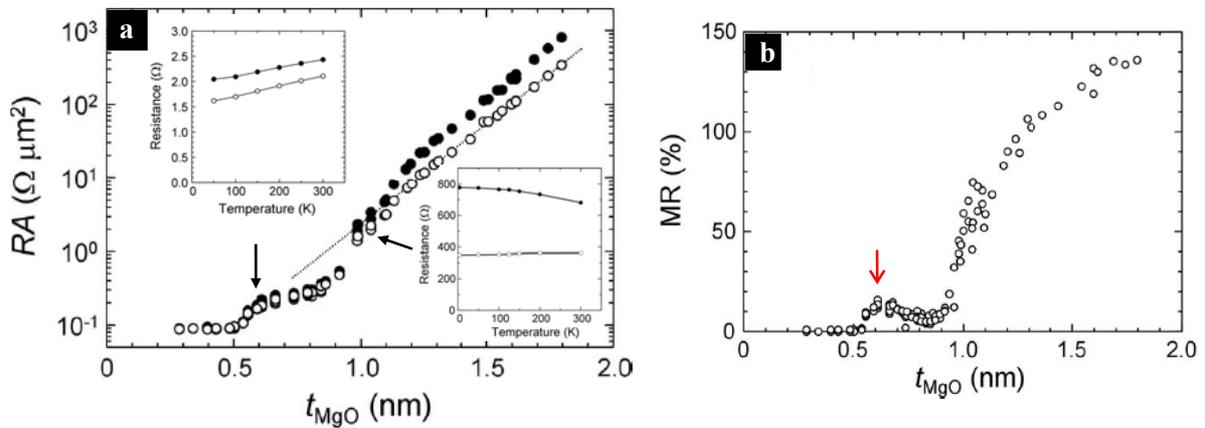


Figure IV-25 – Dépendance avec l'épaisseur de la barrière de MgO t_{MgO} (a) des produits RA dans les configurations P (symboles ouverts) et AP (symboles pleins), et (b) de la magnétorésistance (MR), pour des JTMs Fe/MgO/Fe épitaxiés. Les mesures sont effectuées à température ambiante. D'après [167].

L'interprétation de ce phénomène que proposent Matsumoto *et al.* est basée sur la présence, pour les épaisseurs de barrière de l'ordre de trois plans atomiques, de points conducteurs locaux, ou ponts métalliques, à travers lesquels le courant s'écoulerait préférentiellement. Ceci expliquerait l'augmentation de résistance observée avec l'augmentation de la température ; le pic de magnétorésistance également constaté pour cette épaisseur (Figure IV-25 (b), flèche rouge) correspondrait alors à un effet de magnétorésistance géante en configuration hors plan, ou CPP GMR⁷, la GMR étant équivalente à la TMR lorsqu'on considère des systèmes {matériau ferromagnétique / métal non magnétique / matériau ferromagnétique}. Par analogie avec ces systèmes où des effets de GMR et de couplage coexistent, on pourrait alors envisager que, dans les JTMs Fe/MgO/Fe, un couplage AF s'établisse entre les deux électrodes de Fe par le biais de ces ponts métalliques.

Mais face à cette curieuse coïncidence, il est aussi légitime de s'interroger quant à une origine plus intrinsèque pour les caractéristiques métalliques observées avec une barrière fine de MgO. En particulier, on recherche un mécanisme dont l'origine n'est pas localisée en points chauds de conductance, mais serait une caractéristique propre à l'ensemble de la couche de MgO. L'évolution du comportement de la barrière, d'isolant pour 5 MC à « métallique » pour 3 MC, en passant par un stade semi-conducteur pour les épaisseurs de 4 MC, suggère une fermeture progressive du gap lorsque la barrière s'affine, ou du moins une

⁷ GMR : Giant MagnetoResistance, CPP : Current Perpendicular to Plane.

forte diminution de la hauteur de barrière. Une hauteur de barrière du MgO variable suivant son épaisseur a d'ailleurs déjà été évoquée par Klaua *et al.* [17], avec une stabilisation de la hauteur de barrière à sa valeur usuelle de 3.6 eV pour une épaisseur d'environ 6 MC.

Ainsi, par ces deux analyses bien différentes, en sondant soit dans notre cas le comportement magnétique macroscopique, soit dans le cas de Matsumoto *et al.* les propriétés de transport résultant de mécanismes à l'échelle nanométrique, le même comportement métallique d'une barrière de MgO fine a pu être mis en évidence. Si la question quant à son origine demeure ouverte, l'explication impliquant une fermeture de la bande interdite à faible épaisseur est de loin la plus séduisante.

IV - 5.2 Conclusion

Nous nous sommes donc attachés dans ce chapitre à l'étude du couplage AF se manifestant entre les deux électrodes de fer dans des JTMS Fe/MgO/Fe à barrières fines. Afin d'y apporter de nouveaux éléments de compréhension, nous avons opté pour une présentation non conventionnelle des constantes de couplage, en termes de constantes associées aux champs de saturation et de plateau, plutôt qu'en termes de constantes de couplage bilinéaire et biquadratique.

Cette présentation a été employée pour analyser les variations en température du couplage, mesurées entre 5 K et 500 K, pour des échantillons couplés présentant des épaisseurs de barrière différentes. De la modélisation analytique de ces mesures en température, nous avons pu déduire que deux mécanismes, dont les dépendances en température sont opposées, sont responsables du couplage AF observé, l'un étant associé aux zones de barrière de trois plans atomiques d'épaisseur, l'autre aux zones de quatre plans.

L'étude de l'influence de plusieurs paramètres –l'épaisseur de la barrière, celle de la couche douce, la présence de contaminants d'interface– nous a permis d'établir que ces deux contributions résultent de deux interactions d'origines physiques et de portées radicalement différentes. Ainsi, aux zones de barrière à trois plans d'épaisseur correspond une interaction localisée, agissant de proche en proche par super-échange via les atomes d'oxygène de la barrière. Aux zones de quatre plans en revanche, serait associée une interaction à longue portée gouvernée par l'existence d'un courant de spin non nul entre les deux électrodes. Cette contribution de type transport s'avère être fort complexe, du fait d'une anisotropie importante entre les champs de saturation et de plateau. La recherche de l'origine de cette brisure de symétrie constitue donc une perspective intéressante à l'étude présentée dans ce Chapitre.

De plus, de façon très surprenante, nous avons observé que l'introduction de carbone ou d'îlots de fer à l'interface conduit à une augmentation importante de l'intensité du couplage d'échange pour les faibles épaisseurs de barrière (3 MC). Cela laisse ainsi supposer que ces

deux paramètres agissent sur l'arrangement des nuages électroniques et leur recouvrement de manière similaire.

Les avancées permises par cette nouvelle étude sont donc importantes ; ainsi, comme cela avait été pressenti dans plusieurs études précédentes, nous avons confirmé un rôle majeur de l'oxygène dans le couplage AF, à travers le terme de super-échange. De plus, cette étude remet en cause le mécanisme de couplage par effet tunnel auquel est habituellement attribué le couplage AF dans les systèmes Fe/MgO/Fe monocristallins. En effet, dans la gamme d'épaisseurs où ce couplage est observé, le comportement magnétique macroscopique du système indique que la barrière de MgO ne se comporte pas comme un isolant, mais comme un métal ou un semi-conducteur, respectivement pour des épaisseurs de trois et quatre monocouches. Le comportement isolant ne semble ainsi se développer que pour des épaisseurs supérieures à cinq monocouches.

Conclusion et perspectives

L'objectif de ce travail de thèse était l'étude et la mise en relation des deux régimes de propriétés extrêmes des JTMs Fe/MgO/Fe épitaxiées, le premier étant celui du couplage antiferromagnétique, observé aux faibles épaisseurs de barrière, et le second celui des fortes valeurs de TMR obtenues en présence de barrières épaisses. Il s'agissait alors d'identifier le rôle de la structure cristalline de volume, ainsi que celui de la topographie d'interface sur les propriétés de transport, et de tester la relation entre les caractéristiques structurales et chimiques de l'interface, et l'interaction antiferromagnétique. Pour cela, des moyens de caractérisation structurale, magnétique, électrique ont été déployés, notamment dans le cadre d'analyses en température, qui constituent la principale innovation de ce travail par rapport aux précédentes thèses du laboratoire.

Nous nous sommes intéressés d'une part au régime des barrières épaisses (Chapitre III), et en premier lieu aux caractéristiques de transport dans des jonctions à structure hybride Fe/MgO/CoFeB(001), où la couche de CoFeB initialement amorphe a été partiellement cristallisée par un recuit. Dans ces jonctions, nous avons observé une forte réduction de la TMR, qui a été attribuée à deux effets concomitants. Ainsi, ont été mises en cause l'oxydation de l'interface inférieure, induite par le recuit de la couche de CoFeB, et la réduction des effets de filtrage en symétrie, dont plusieurs origines ont été évoquées (zones amorphes de CoFeB, désordre aux interfaces, lacunes d'O dans la barrière...).

Le second système étudié dans ce chapitre a permis de tester l'influence de la texture (001) sur le transport résolu en spin et en symétrie. Nous avons ainsi élaboré et étudié des JTMs Fe/MgO/Fe présentant une texture (001). Les analyses structurales menées sur ces systèmes ont révélé une structure colonnaire cohérente à travers l'empilement, à l'échelle latérale de la taille d'un grain, estimée à environ 25 nm. Cette structure, en assemblée de nano-jonctions monocristallines désorientées les unes par rapport aux autres, a été confirmée par les caractérisations en tension et en température, qui, par ailleurs, ne révèlent pas de contribution au transport de la part des joints de grains. Les différentes réponses en tension et en température de ces jonctions présentent donc de très fortes similarités avec celles observées pour des jonctions Fe/MgO/Fe(001) monocristallines : cela constitue le point d'orgue de cette

étude, puisqu'il est alors démontré que du point de vue des effets de filtrage en spin et en symétrie, les JTM à texture (001) et monocristallines à orientation (001) sont équivalentes.

Dans une troisième étape, nous avons considéré l'effet d'une modification structurale de l'interface de jonctions épitaxiées Fe/MgO/Fe(001), via l'introduction d'îlots de fer de hauteur monoatomique, et dont la taille au demi-recouvrement est de l'ordre de 8 nm. Contre toute attente, la TMR est maximale lorsque la densité d'îlots et donc le désordre à l'interface sont les plus importants (autour du demi-remplissage). L'augmentation de TMR en présence d'îlots est attribuée à une hybridation entre les atomes de fer situés en bord d'îlots et les atomes d'oxygène de la barrière, dont la géométrie, de type *hollow*, induit une barrière de potentiel supplémentaire, qui n'est vue que par les électrons de Bloch de symétrie Δ_5 . La densité d'états Δ_5 transmise à travers la barrière étant réduite, l'efficacité du filtrage en spin et en symétrie et par conséquent la polarisation tunnel et la TMR augmentent. Il faut noter que l'oxydation d'une surface lisse, avec l'oxygène dans une position *on-top* ou *bridge* conduit à une hybridation dont la géométrie est différente, et impliquant en particulier la symétrie Δ_1 ; l'effet sur la TMR est alors opposé, puisque le confinement des états de symétrie Δ_1 tend à réduire la polarisation et la TMR. Ainsi, la modification de la chimie d'interface, sans apport d'élément polluant, mais via une rugosité artificielle contrôlée, permet de renforcer la sélectivité en symétrie et le caractère demi-métallique de la jonction Fe/MgO/Fe.

Enfin, les trois systèmes étudiés ont été mis en parallèle dans une étude comparative des variations en température de leurs conductances P et AP, mesurées au voisinage de l'équilibre. La conductance parallèle a en particulier été analysée; sa dépendance en température est ainsi régie par deux composantes ayant des variations en température antagonistes, et dont le poids relatif est fortement relié à l'efficacité du filtrage en symétrie et à la valeur de la TMR.

D'autre part, nous avons étudié les caractéristiques de l'interaction antiferromagnétique apparaissant entre les deux électrodes de fer lorsque la barrière de MgO a une épaisseur suffisamment fine (entre trois et quatre plans atomiques) (Chapitre IV). Dans un premier temps, nous avons considéré la réponse en température d'échantillons Fe/MgO/Fe(001) épitaxiés, pour différentes épaisseurs de barrière dans la gamme où le couplage est observé. Nous avons alors modélisé de manière analytique les comportements observés à l'aide de deux termes, ayant des variations en températures opposées, associés à deux épaisseurs locales de la barrière (trois ou quatre plans atomiques) et correspondant à deux mécanismes de natures radicalement différentes. Ainsi, aux zones de barrière de trois plans d'épaisseur a été attribué un couplage de type « échange », agissant de proche en proche par super-échange via les atomes d'oxygène de la barrière. Le second mécanisme, associé aux zones de barrière à quatre plans, présente des signatures d'un couplage « thermiquement activé », et relèverait d'une interaction à longue portée de type « transport » via les électrons de conduction des

deux électrodes. Aucune signature d'un couplage par effet tunnel, auquel est habituellement attribuée l'interaction AF dans les systèmes Fe/MgO/Fe épitaxiés, n'a donc été observée dans cette étude.

Dans un deuxième temps, l'effet sur chacune de ces deux contributions de la modification structurale (par insertion d'îlots de fer) ou chimique (par contamination au carbone) de l'interface a été étudié. Il a alors été observé dans les deux cas un couplage exacerbé pour les barrières les plus fines, et réduit pour les barrières les plus épaisses. Ainsi, il a été conclu que l'intensité de la contribution d'échange se voyait augmentée en présence d'îlots ou de carbone. Dans le cas d'îlots à l'interface, le renforcement de la contribution d'échange a été attribué à l'effet d'hybridation Fe-O en bords d'îlots, en accord avec les études sur les JTMs à barrières épaisses. La présence de carbone ayant des effets sur les composantes du couplage similaires à ceux des îlots, cela laisse supposer que ce contaminant agit sur la structure électronique d'interface en favorisant d'une manière ou d'une autre le recouvrement entre le fer et l'oxygène à l'interface.

Les résultats de cette étude traduisent, du point de vue des propriétés magnétiques, l'évolution graduelle de la largeur du gap du MgO : ce matériau présente en effet des propriétés typiques de couches métalliques puis semi-conductrices lorsque son épaisseur passe de trois à quatre monocouches. Ces observations sont en très bon accord avec des études précédentes, ayant mis en évidence cette évolution graduelle de la largeur du gap du MgO, d'une part par des mesures directes de spectroscopie par effet tunnel, et d'autre part de manière indirecte, par l'analyse de la réponse en température de la résistance de JTMs.

Les résultats les plus originaux de cette thèse ont donc été obtenus grâce à l'introduction d'une rugosité artificielle à l'interface barrière/électrode ; ce désordre contrôlé peut en effet augmenter les performances des jonctions aussi bien en ce qui concerne l'intensité du couplage antiferromagnétique que l'effet de magnétorésistance. Ce résultat contre-intuitif a été imputé dans les deux cas à une hybridation fer-oxygène et permet d'établir ainsi un lien inattendu entre les deux régimes de propriétés associés aux deux gammes d'épaisseurs extrêmes des barrières de MgO épitaxiées.

Des questions demeurent naturellement encore en suspens, ouvrant plusieurs perspectives à ce travail. En premier lieu, dans le régime des fortes épaisseurs de barrière, nous avons émis plusieurs hypothèses concernant l'origine des propriétés exceptionnelles rapportées dans les JTMs texturées CoFeB/MgO/CoFeB. En particulier, il serait intéressant de tester l'impact du recuit *ex situ* et de la cristallisation simultanée de tout l'empilement sur ces propriétés : nous avons en effet supposé que le voisinage de couches de CoFeB amorphes permettait au MgO de cristalliser sans contraintes et sans formation de dislocations sur de larges distances. La

question qui se pose donc est de savoir si les mêmes propriétés sont observées lorsque la cristallisation est effectuée *in situ* et couche par couche. Pour répondre à cette problématique, une piste expérimentale consiste à élaborer par MBE des JTM_s texturées (001) grâce à l'emploi d'un substrat de Si(001), et de structure CoFeB/MgO/Fe, chaque couche étant recuite avant le dépôt de la suivante.

Une autre perspective de ce travail a déjà été évoquée précédemment. Il s'agirait d'augmenter la densité de bords de marches (ou d'îlots), afin d'établir si une augmentation de TMR plus importante s'ensuit. Dans l'affirmative, cela ouvrirait des possibilités formidables de modulation de la TMR, par le biais du contrôle de la morphologie de l'interface inférieure.

Dans le régime du couplage antiferromagnétique, un des points les plus importants et prioritaires serait de conforter l'hypothèse concernant les différences de portée des deux interactions, et en particulier quantifier la distance caractéristique de l'interaction thermiquement activée. Un moyen serait de réaliser une étude approfondie de la variation des deux termes avec l'épaisseur de la couche de fer fine ; il s'agirait alors de déterminer l'épaisseur de Fe₂ à partir de laquelle l'intensité du terme thermiquement activé amorce une variation inversement proportionnelle à cette grandeur. Notons qu'une autre inconnue demeure au sujet de cette interaction thermiquement activée : une brisure de symétrie concernant les transitions entre les états $0^\circ \leftrightarrow 90^\circ$ et $90^\circ \leftrightarrow 180^\circ$ a en effet été mise en évidence, mais son origine n'a pas encore été comprise.

On peut également s'interroger quant au rôle que l'anisotropie magnétocristalline peut jouer dans les deux contributions au couplage. Dans toute l'étude présentée dans ce manuscrit, elle a été négligée, ce qui a imposé certaines conditions expérimentales : mesures suivant un axe de facile aimantation ($\varphi = 0$), et contrainte sur les épaisseurs relatives des deux couches de fer ($K_1 t_1 \gg K_2 t_2$). Le rôle de l'anisotropie peut donc être cerné en relaxant ces approximations : ainsi, quel est l'effet d'un rapport t_1/t_2 différent, et comment doivent être prises en compte les anisotropies K_1 et K_2 ? Des mesures en fonction de l'angle φ entre le champ appliqué et un axe d'anisotropie magnétocristalline, peuvent être très utiles afin de répondre à cette problématique. Des mesures préliminaires ont en effet montré un comportement dissymétrique des champs de saturation et de plateau lorsque l'on s'écarte de l'axe de facile aimantation ; nous avons ainsi l'intime conviction que la compréhension de ces comportements est une des clés pour appréhender l'influence de l'anisotropie dans les systèmes étudiés.

L'étude de systèmes présentant une barrière dont l'épaisseur est inférieure à trois plans atomiques constitue également une perspective intéressante, notamment dans le cadre de la comparaison d'échantillons Fe/MgO/Fe avec des échantillons avec îlots ou carbone à l'interface. En effet, lorsque l'épaisseur de barrière diminue vers trois monocouches, une

saturation de l'intensité de couplage est observée dans les échantillons Fe/MgO/Fe, alors que cette intensité continue à croître dans les deux autres cas. On peut ainsi s'interroger quant à l'effet de ces modifications d'interface lorsque la barrière est plus fine que 3 MC : le couplage continue-t-il sa croissance exponentielle en-dessous de 3 MC ? La limite inférieure de la gamme où le couplage AF se manifeste est-elle repoussée par rapport à celle obtenue dans le système Fe/MgO/Fe ? Les effets du carbone et des îlots se distinguent-ils alors plus nettement ?

Enfin, aucune signature de l'état de surface n'a pu être montrée dans l'étude du régime des faibles épaisseurs de MgO effectuée à l'équilibre. Il n'en reste pas moins une particularité de la structure électronique du système qui doit avoir un rôle dans ce régime. La réalisation de mesures de transport sur des JTMs à barrière fine permettrait l'observation du couplage AF hors équilibre, avec une éventuelle activation de cet état de surface.

Références bibliographiques

- [1] J. Faure-Vincent,
Transport tunnel polarisé en spin dans le système épitaxié Fe/MgO/Fe: Interactions magnétiques et Symétries électroniques,
Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy (2004).
- [2] F. Bonell,
Analyse du transport dans les jonctions tunnel magnétiques épitaxiées à barrière de MgO(001) par manipulation des interfaces, de la barrière et des électrodes,
Thèse de l'Université Henri Poincaré, Nancy (2009).
- [3] E. Y. Tsymbal and O. N. Mryasov,
Spin-dependent tunnelling in magnetic tunnel junctions,
Journal of Physics: Condensed Matter **109**, R109 (2003).
- [4] J. S. Moodera and G. Mathon,
Spin polarized tunneling in ferromagnetic junctions,
Journal of Magnetism and Magnetic Materials **200**, 248 (1999).
- [5] X.-G. Zhang and W. H. Butler,
Band structure, evanescent states, and transport in spin tunnel junctions,
Journal of Physics: Condensed Matter **15**, R1603 (2003).
- [6] M. Julliere,
Tunneling between ferromagnetic films,
Physics Letters A **54**, 225 (1975).
- [7] P. M. Tedrow and R. Meservey,
Spin-Dependent Tunneling into Ferromagnetic Nickel,
Physical Review Letters **26**, 192 (1971).
- [8] J. M. MacLaren and X.-G. Zhang,
Validity of the Julliere model of spin-dependent tunneling,
Physical Review B **56**, 827 (1997).
- [9] J. C. Slonczewski,
Conductance and exchange coupling of two ferromagnets separated by a tunneling barrier,
Physical Review B **39**, 6995 (1989).
- [10] M. B. Stearns,
Simple explanation of tunneling spin-polarization of Fe, Co, Ni and its alloys,
Journal of Magnetism and Magnetic Materials **5**, 167 (1977).

- [11] P. Mavropoulos, N. Papanikolaou, and P. H. Dederichs,
Complex band structure and tunneling through ferromagnet/Insulator/Ferromagnet junctions,
Physical Review Letters **85**, 1088 (2000).
- [12] O. Wunnicke, N. Papanikolaou, R. Zeller, P. H. Dederichs, V. Drchal, and J. Kudrnovský,
Effects of resonant interface states on tunneling magnetoresistance,
Physical Review B **65**, 064425 (2002).
- [13] W. H. Butler, X.-G. Zhang, T. Schulthess, and J. M. MacLaren,
Spin-dependent tunneling conductance of Fe|MgO|Fe sandwiches,
Physical Review B **63**, 054416 (2001).
- [14] J. Mathon and A. Umerski,
Theory of tunneling magnetoresistance of an epitaxial Fe/MgO/Fe(001) junction,
Physical Review B **63**, 220403(R) (2001).
- [15] C. Tiusan, F. Greullet, M. Hehn, F. Montaigne, S. Andrieu, and A. Schuhl,
Spin tunnelling phenomena in single-crystal magnetic tunnel junction systems,
Journal of Physics: Condensed Matter **19**, 165201 (2007).
- [16] F. Greullet,
Les jonctions tunnel magnétiques épitaxiées à base de MgO(001): de l'étude statique et dynamique à l'injection de spin dépendant des symétries,
Thèse de l'Université Henri Poincaré, Nancy (2009).
- [17] M. Klaua, D. Ullmann, J. Barthel, W. Wulfhekel, J. Kirschner, R. Urban, T. Monchesky,
A. Enders, J. F. Cochran, and B. Heinrich,
Growth, structure, electronic, and magnetic properties of MgO/Fe(001) bilayers and Fe/MgO/Fe(001) trilayers,
Physical Review B **64**, 134411 (2001).
- [18] C. Li and A. J. Freeman,
Giant monolayer magnetization of Fe on MgO: A nearly ideal two-dimensional magnetic system,
Physical Review B **43**, 780 (1991).
- [19] P. H. Dederichs, P. Mavropoulos, O. Wunnicke, N. Papanikolaou, V. Bellini, R. Zeller,
V. Drchal, and J. Kudrnovský,
Importance of complex band structure and resonant states for tunneling,
Journal of Magnetism and Magnetic Materials **240**, 108 (2002).
- [20] J. A. Stroscio, D. T. Pierce, A. Davies, R. Celotta, and M. Weinert,
Tunneling Spectroscopy of bcc (001) Surface States,
Physical Review Letters **75**, 2960 (1995).
- [21] C. Tiusan, M. Sicot, J. Faure-Vincent, M. Hehn, C. Bellouard, F. Montaigne, S. Andrieu, and
A. Schuhl,
Static and dynamic aspects of spin tunnelling in crystalline magnetic tunnel junctions,
Journal of Physics: Condensed Matter **18**, 941 (2006).
- [22] C. Tiusan, J. Faure-Vincent, C. Bellouard, M. Hehn, E. Jouguelet, and A. Schuhl,
Interfacial Resonance State Probed by Spin-Polarized Tunneling in Epitaxial Fe/MgO/Fe Tunnel Junctions,
Physical Review Letters **93**, 106602 (2004).

- [23] F. Greullet, C. Tiusan, F. Montaigne, M. Hehn, D. Halley, O. Bengone, M. Bowen, and W. Weber,
Evidence of a Symmetry-Dependent Metallic Barrier in Fully Epitaxial MgO Based Magnetic Tunnel Junctions,
Physical Review Letters **99**, 187202 (2007).
- [24] T. Niizeki, N. Tezuka, and K. Inomata,
Enhanced Tunnel Magnetoresistance due to Spin Dependent Quantum Well Resonance in Specific Symmetry States of an Ultrathin Ferromagnetic Electrode,
Physical Review Letters **100**, 047207 (2008).
- [25] M. Bowen, V. Cros, F. Petroff, A. Fert, C. Martínez Boubeta, J. L. Costa-Krämer, J. V. Anguita, A. Cebollada, F. Briones, J. M. de Teresa, L. Morellón, M. R. Ibarra, F. Güell, F. Peiró, and A. Cornet,
Large magnetoresistance in Fe/MgO/FeCo(001) epitaxial tunnel junctions on GaAs(001),
Applied Physics Letters **79**, 1655 (2001).
- [26] J. Faure-Vincent, C. Tiusan, E. Jouguelet, F. Canet, M. Sajieddine, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, and A. Schuhl,
High tunnel magnetoresistance in epitaxial Fe/MgO/Fe tunnel junctions,
Applied Physics Letters **82**, 4507 (2003).
- [27] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki, and K. Ando,
Giant room-temperature magnetoresistance in single-crystal Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions,
Nature Materials **3**, 868 (2004).
- [28] S. G. Wang, R. C. C. Ward, G. X. Du, X. F. Han, C. Wang, and A. Kohn,
Temperature dependence of giant tunnel magnetoresistance in epitaxial Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions,
Physical Review B **78**, 180411(R) (2008).
- [29] S. Yuasa, A. Fukushima, H. Kubota, Y. Suzuki, and K. Ando,
Giant tunneling magnetoresistance up to 410% at room temperature in fully epitaxial Co/MgO/Co magnetic tunnel junctions with bcc Co(001) electrodes,
Applied Physics Letters **89**, 042505 (2006).
- [30] F. Bonell, T. Hauet, S. Andrieu, F. Bertran, P. Le Fèvre, L. Calmels, A. Tejada, F. Montaigne, B. Warot-Fonrose, B. Belhadji, A. Nicolaou, and A. Taleb-Ibrahimi,
Spin-Polarized Electron Tunneling in bcc FeCo/MgO/FeCo(001) Magnetic Tunnel Junctions,
Physical Review Letters **108**, 176602 (2012).
- [31] S. Ikeda, J. Hayakawa, Y. Ashizawa, Y. M. Lee, K. Miura, H. Hasegawa, M. Tsunoda, F. Matsukura, and H. Ohno,
Tunnel magnetoresistance of 604% at 300 K by suppression of Ta diffusion in CoFeB/MgO/CoFeB pseudo-spin-valves annealed at high temperature,
Applied Physics Letters **93**, 082508 (2008).
- [32] P. G. Mather, J. C. Read, and R. A. Buhrman,
Disorder, defects, and band gaps in ultrathin (001) MgO tunnel barrier layers,
Physical Review B **73**, 205412 (2006).

- [33] J. P. Velev, K. D. Belashchenko, S. S. Jaswal, and E. Y. Tsymbal, *Effect of oxygen vacancies on spin-dependent tunneling in Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions*, Applied Physics Letters **90**, 072502 (2007).
- [34] Y. Ke, K. Xia, and H. Guo, *Oxygen-vacancy-induced diffusive scattering in Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions*, Physical Review Letters **105**, 236801 (2010).
- [35] G. X. Miao, Y. J. Park, J. S. Moodera, M. Seibt, G. Eilers, and M. Münzenberg, *Disturbance of tunneling coherence by oxygen vacancy in epitaxial Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions*, Physical Review Letters **100**, 246803 (2008).
- [36] J. L. Vassent, M. Dynna, A. Marty, and B. Gilles, *A study of growth and the relaxation of elastic strain in MgO on Fe (001)*, Journal of Applied Physics **80**, 5727 (1996).
- [37] F. Bonell, S. Andrieu, F. Bertran, P. Lefevre, A. Taleb-Ibrahimi, E. Snoeck, C. Tiusan, and F. Montaigne, *MgO-Based Epitaxial Magnetic Tunnel Junctions Using Fe-V Electrodes*, IEEE Transactions on Magnetics **45**, 3467 (2009).
- [38] F. Bonell, S. Andrieu, C. Tiusan, F. Montaigne, E. Snoeck, B. Belhadji, L. Calmels, F. Bertran, P. Le Fèvre, and A. Taleb-Ibrahimi, *Influence of misfit dislocations on the magnetoresistance of MgO-based epitaxial magnetic tunnel junctions*, Physical Review B **82**, 092405 (2010).
- [39] V. Serin, S. Andrieu, R. Serra, F. Bonell, C. Tiusan, L. Calmels, M. Varela, S. Pennycook, E. Snoeck, M. Walls, and C. Colliex, *TEM and EELS measurements of interface roughness in epitaxial Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions*, Physical Review B **79**, 144413 (2009).
- [40] C. Wang, A. Kohn, S. G. Wang, L. Chang, S.-Y. Choi, A. Kirkland, A. K. Petford-Long, and R. C. C. Ward, *Structural characterization of interfaces in epitaxial Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions by transmission electron microscopy*, Physical Review B **82**, 024428 (2010).
- [41] H. Meyerheim, R. Popescu, J. Kirschner, N. Jedrecy, M. Sauvage-Simkin, B. Heinrich, and R. Pinchaux, *Geometrical and Compositional Structure at Metal-Oxide Interfaces: MgO on Fe(001)*, Physical Review Letters **87**, 076102 (2001).
- [42] S. G. Wang, G. Han, G. H. Yu, Y. Jiang, C. Wang, A. Kohn, and R. C. C. Ward, *Evidence for FeO formation at the Fe/MgO interface in epitaxial TMR structure by X-ray photoelectron spectroscopy*, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **310**, 1935 (2007).
- [43] M. Sicot, S. Andrieu, F. Bertran, and F. Fortuna, *Electronic properties of Fe, Co, and Mn ultrathin films at the interface with MgO(001)*, Physical Review B **72**, 144414 (2005).

- [44] P. Luches, S. Benedetti, M. Liberati, F. Boscherini, I. I. Pronin, and S. Valeri, *Absence of oxide formation at the Fe/MgO(001) interface*, *Surface Science* **583**, 191 (2005).
- [45] L. Plucinski, Y. Zhao, B. Sinkovic, and E. Vescovo, *MgO/Fe(100) interface: A study of the electronic structure*, *Physical Review B* **75**, 214411 (2007).
- [46] X.-G. Zhang, W. H. Butler, and A. Bandyopadhyay, *Effects of the iron-oxide layer in Fe-FeO-MgO-Fe tunneling junctions*, *Physical Review B* **68**, 092402 (2003).
- [47] P. Bose, A. Ernst, I. Mertig, and J. Henk, *Large reduction of the magnetoresistance in Fe/MgO/Fe tunnel junctions due to small oxygen concentrations at a single FeO interface layer: A first-principles study*, *Physical Review B* **78**, 092403 (2008).
- [48] C. Zhang, X.-G. Zhang, P. Krstić, H.-P. Cheng, W. H. Butler, and J. M. MacLaren, *Electronic structure and spin-dependent tunneling conductance under a finite bias*, *Physical Review B* **69**, 134406 (2004).
- [49] C. Heiliger, P. Zahn, and I. Mertig, *Influence of interface oxidation on the TMR ratio of Fe/MgO/Fe tunnel junctions*, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **316**, 478 (2007).
- [50] C. Heiliger, P. Zahn, B. Yavorsky, and I. Mertig, *Interface structure and bias dependence of Fe/MgO/Fe tunnel junctions: Ab initio calculations*, *Physical Review B* **73**, 214441 (2006).
- [51] F. Bonell, S. Andrieu, A. Bataille, C. Tiusan, and G. Lengaigne, *Consequences of interfacial Fe-O bonding and disorder in epitaxial Fe/MgO/Fe(001) magnetic tunnel junctions*, *Physical Review B* **79**, 224405 (2009).
- [52] C. Tiusan, M. Sicot, M. Hehn, C. Bellouard, S. Andrieu, F. Montaigne, and A. Schuhl, *Fe/MgO interface engineering for high-output-voltage device applications*, *Applied Physics Letters* **88**, 062512 (2006).
- [53] T. X. Wang, Y. Li, K. J. Lee, J. U. Cho, D. K. Kim, S. J. Noh, and Y. K. Kim, *Influence of interface state in Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junction system: C modified interfaces—a first principle study*, *Journal of Applied Physics* **109**, 083714 (2011).
- [54] S. S. P. Parkin, N. More, and K. P. Roche, *Oscillations in Exchange Coupling and Magnetoresistance in Metallic Superlattice Structures: Co/Ru, Co/Cr, and Fe/Cr*, *Physical Review Letters* **64**, 2304 (1990).
- [55] G.-X. Miao, K. B. Chetry, A. Gupta, W. H. Butler, K. Tsunekawa, D. D. Djayaprawira, and G. Xiao, *Inelastic tunneling spectroscopy of magnetic tunnel junctions based on CoFeB/MgO/CoFeB with Mg insertion layer*, *Journal of Applied Physics* **99**, 08T305 (2006).

- [56] Q. L. Ma, S. G. Wang, J. Zhang, Y. Wang, R. C. C. Ward, C. Wang, A. Kohn, X.-G. Zhang, and X. F. Han,
Temperature dependence of resistance in epitaxial Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions,
Applied Physics Letters **95**, 052506 (2009).
- [57] S. S. P. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P. M. Rice, B. Hughes, M. Samant, and S.-H. Yang,
Giant tunnelling magnetoresistance at room temperature with MgO (100) tunnel barriers,
Nature Materials **3**, 862 (2004).
- [58] R. Stratton,
Volt-current characteristics for tunneling through insulating films,
Journal of Physics and Chemistry of Solids **23**, 1177 (1962).
- [59] J. G. Simmons,
Generalized Thermal J-V Characteristic for the Electric Tunnel Effect,
Journal of Applied Physics **35**, 2655 (1964).
- [60] C. Shang, J. Nowak, R. Jansen, and J. S. Moodera,
Temperature dependence of magnetoresistance and surface magnetization in ferromagnetic tunnel junctions,
Physical Review B **58**, R2917 (1998).
- [61] J. M. Teixeira, J. Ventura, J. P. Araujo, J. B. Sousa, P. Wisniowski, and P. P. Freitas,
Tunneling processes in thin MgO magnetic junctions,
Applied Physics Letters **96**, 262506 (2010).
- [62] X. Kou, J. Schmalhorst, A. Thomas, and G. Reiss,
Temperature dependence of the resistance of magnetic tunnel junctions with MgO barrier,
Applied Physics Letters **88**, 212115 (2006).
- [63] L. I. Glazman and K. A. Matveev,
Inelastic tunnelling across thin amorphous films,
Zhurnal Eksperimental'noi i Teoreticheskoi Fiziki **94**, 332 (1988).
- [64] A. Khan, J. Schmalhorst, G. Reiss, G. Eilers, M. Münzenberg, H. Schuhmann, and M. Seibt,
Elastic and inelastic conductance in Co-Fe-B/MgO/Co-Fe-B magnetic tunnel junctions,
Physical Review B **82**, 064416 (2010).
- [65] Y. Lu, M. Tran, H. Jaffrès, P. Seneor, C. Deranlot, F. Petroff, J.-M. George, B. Lépine, S. Ababou, and G. Jézéquel,
Spin-Polarized Inelastic Tunneling through Insulating Barriers,
Physical Review Letters **102**, 176801 (2009).
- [66] S. Zhang, P. Levy, A. Marley, and S. S. P. Parkin,
Quenching of Magnetoresistance by Hot Electrons in Magnetic Tunnel Junctions,
Physical Review Letters **79**, 3744 (1997).
- [67] X.-F. Han, A. Yu, M. Oogane, J. Murai, T. Daibou, and T. Miyazaki,
Analyses of intrinsic magnetoelectric properties in spin-valve-type tunnel junctions with high magnetoresistance and low resistance,
Physical Review B **63**, 224404 (2001).

- [68] V. Drewello, J. Schmalhorst, A. Thomas, and G. Reiss,
Evidence for strong magnon contribution to the TMR temperature dependence in MgO based tunnel junctions,
Physical Review B **77**, 014440 (2008).
- [69] A. M. Bratkovsky,
Assisted tunneling in ferromagnetic junctions and half-metallic oxides,
Applied Physics Letters **72**, 2334 (1998).
- [70] T. Dimopoulos,
Influence of barrier overoxidation and annealing on the inelastic spin-dependent tunneling in AlO_x -based junctions,
Journal of Applied Physics **95**, 6936 (2004).
- [71] X.-G. Zhang, Y. Wang, and X. F. Han,
Theory of nonspecular tunneling through magnetic tunnel junctions,
Physical Review B **77**, 144431 (2008).
- [72] A. Vedyayev, D. Bagrets, A. Bagrets, and B. Dieny,
Resonant spin-dependent tunneling in spin-valve junctions in the presence of paramagnetic impurities,
Physical Review B **63**, 064429 (2001).
- [73] K. Lee, S. Joo, J. Lee, K. Rhie, T.-S. Kim, W. Lee, K. Shin, B. Lee, P. LeClair, J.-S. Lee, and J.-H. Park,
Kondo Effect in Magnetic Tunnel Junctions,
Physical Review Letters **98**, 107202 (2007).
- [74] J. Bernos, M. Hehn, F. Montaigne, C. Tiusan, D. Lacour, M. Alnot, B. Negulescu, G. Lengaigne, E. Snoeck, and F. G. Aliev,
Impact of electron-electron interactions induced by disorder at interfaces on spin-dependent tunneling in Co-Fe-B/MgO/Co-Fe-B magnetic tunnel junctions,
Physical Review B **82**, 060405(R) (2010).
- [75] P. A. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky, H. Sowers, and P. A. Grünberg,
Layered magnetic structures: Evidence for antiferromagnetic coupling of Fe layers across Cr interlayers,
Physical Review Letters **57**, 2442 (1986).
- [76] S. S. P. Parkin,
Systematic variation of the strength and oscillation period of indirect magnetic exchange coupling through the 3d, 4d, and 5d transition metals,
Physical Review Letters **67**, 3598 (1991).
- [77] S. S. P. Parkin and D. Mauri,
Spin engineering: Direct determination of the Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida far-field range function in ruthenium,
Physical Review B **44**, 7131 (1991).
- [78] P. Bruno,
Interlayer exchange coupling: a unified physical picture,
Journal of Magnetism and Magnetic Materials **121**, 248 (1993).

- [79] M. D. Stiles,
Interlayer exchange coupling,
Journal of Magnetism and Magnetic Materials **200**, 322 (1999).
- [80] P. Bruno and C. Chappert,
Oscillatory Coupling between Ferromagnetic Layers Separated by a Nonmagnetic Metal Spacer,
Physical Review Letters **67**, 1602 (1991).
- [81] Y. Yafet,
Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida range function of a one-dimensional free-electron gas,
Physical Review B **36**, 3948 (1987).
- [82] R. Coehoorn,
Period of oscillatory exchange interactions in Co/Cu and Fe/Cu multilayer systems,
Physical Review B **44**, 9331 (1991).
- [83] K. B. Hathaway and J. R. Cullen,
A free-electron model for the exchange coupling of ferromagnets through paramagnetic metals,
Journal of Magnetism and Magnetic Materials **104**, 1840 (1992).
- [84] R. P. Erickson, K. B. Hathaway, and J. R. Cullen,
Mechanism for non-Heisenberg-exchange coupling between ferromagnetic layers,
Physical Review B **47**, 2626 (1993).
- [85] J. Barnaś,
Coupling between two ferromagnetic films through a non-magnetic metallic layer,
Journal of Magnetism and Magnetic Materials **111**, L215 (1992).
- [86] D. M. Edwards, J. Mathon, R. B. Muniz, and M. S. Phan,
Oscillations of the exchange in magnetic multilayers as an analog of de Haas–van Alphen effect,
Physical Review Letters **67**, 493 (1991).
- [87] P. Bruno,
Theory of intrinsic and thermally induced interlayer magnetic coupling between ferromagnetic films separated by an insulating layer,
Physical Review B **49**, 13231 (1994).
- [88] P. Bruno,
Theory of interlayer magnetic coupling,
Physical Review B **52**, 411 (1995).
- [89] Z. Zhang, L. Zhou, P. E. Wigen, and K. Ounadjela,
Using ferromagnetic resonance as a sensitive method to study temperature dependence of interlayer exchange coupling,
Physical Review Letters **73**, 336 (1994).
- [90] C.-L. Lee, J. A. Bain, S. Chu, and M. E. McHenry,
Separation of contributions to spin valve interlayer exchange coupling field by temperature dependent coupling field measurements,
Journal of Applied Physics **91**, 7113 (2002).

- [91] N. Persat and A. Dinia,
Strong temperature dependence of the interlayer exchange coupling strength in Co/Cu/Co sandwiches,
Physical Review B **56**, 2676 (1997).
- [92] N. S. Almeida, D. L. Mills, and M. Teitelman,
Temperature Variation of the Interfilm Exchange in Magnetic Multilayers: The Influence of Spin Wave Interactions,
Physical Review Letters **75**, 733 (1995).
- [93] M. Y. Zhuravlev, E. Y. Tsymbal, and A. Vedyayev,
Impurity-Assisted Interlayer Exchange Coupling across a Tunnel Barrier,
Physical Review Letters **94**, 026806 (2005).
- [94] M. Y. Zhuravlev, J. P. Velev, A. Vedyayev, and E. Y. Tsymbal,
Effect of oxygen vacancies on interlayer exchange coupling in Fe/MgO/Fe tunnel junctions,
Journal of Magnetism and Magnetic Materials **300**, e277 (2006).
- [95] H. X. Yang, M. Chshiev, A. Kalitsov, A. Schuhl, and W. H. Butler,
Effect of structural relaxation and oxidation conditions on interlayer exchange coupling in Fe/MgO/Fe tunnel junctions,
Applied Physics Letters **96**, 262509 (2010).
- [96] A. Manchon, N. Ryzhanova, A. Vedyayev, M. Chshiev, and B. Dieny,
Description of current-driven torques in magnetic tunnel junctions,
Journal of Physics: Condensed Matter **20**, 145208 (2008).
- [97] A. Kalitsov, M. Chshiev, I. Theodonis, N. Kioussis, and W. H. Butler,
Spin-transfer torque in magnetic tunnel junctions,
Physical Review B **79**, 174416 (2009).
- [98] S. O. Demokritov,
Biquadratic interlayer coupling in layered magnetic systems,
Journal of Physics D: Applied Physics **31**, 925 (1998).
- [99] J. C. Slonczewski,
Overview of interlayer exchange theory,
Journal of Magnetism and Magnetic Materials **150**, 13 (1995).
- [100] J. C. Slonczewski,
Fluctuation mechanism for biquadratic exchange coupling in magnetic multilayers,
Physical Review Letters **67**, 3172 (1991).
- [101] S. O. Demokritov, E. Y. Tsymbal, P. A. Grünberg, W. Zinn, and I. K. Schuller,
Magnetic-dipole mechanism for biquadratic interlayer coupling,
Physical Review B **49**, 720 (1994).
- [102] J. C. Slonczewski,
Origin of biquadratic exchange in magnetic multilayers (invited),
Journal of Applied Physics **73**, 5957 (1993).
- [103] S. Toscano, B. Briner, H. Hopster, and M. Landolt,
Exchange-coupling between ferromagnets through a non-metallic amorphous spacer-layer,
Journal of Magnetism and Magnetic Materials **114**, L6 (1992).

- [104] A. Dinia, P. Carrof, G. Schmerber, and C. Ulhaq,
Indirect exchange coupling between two ferromagnetic electrodes through ZnS barrier in magnetic tunnel junctions,
Applied Physics Letters **83**, 2202 (2003).
- [105] T. Fix, S. Colis, G. Schmerber, C. Ulhaq, and a. Dinia,
Coupling between ferromagnetic electrodes through ZnS barrier,
Journal of Magnetism and Magnetic Materials **286**, 134 (2005).
- [106] R. R. Gareev, D. E. Bürgler, M. Buchmeier, R. Schreiber, and P. A. Grünberg,
Very strong interlayer exchange coupling in epitaxial Fe/Fe_{1-x}Si_x/Fe trilayers (x = 0.4 – 1.0),
Journal of Magnetism and Magnetic Materials **240**, 235 (2002).
- [107] J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, and A. Schuhl,
Interlayer Magnetic Coupling Interactions of Two Ferromagnetic Layers by Spin Polarized Tunneling,
Physical Review Letters **89**, 107206 (2002).
- [108] M. Landolt and B. Briner,
Exchange coupling in multilayers with semiconductors,
Applied Physics A: Materials Science & Processing **60**, 403 (1995).
- [109] B. Briner and M. Landolt,
Intrinsic and Heat-Induced Exchange Coupling through Amorphous Silicon,
Physical Review Letters **73**, 340 (1994).
- [110] P. Walser, M. Schleberger, P. Fuchs, and M. Landolt,
Heat Induced Antiferromagnetic Coupling in Multilayers with Ge Spacers,
Physical Review Letters **80**, 2217 (1998).
- [111] M. Hunziker and M. Landolt,
Heat-induced effective exchange in magnetic multilayers,
Physical Review B **64**, 134421 (2001).
- [112] B. Briner and M. Landolt,
Thermally Activated Bilinear and Biquadratic Exchange Coupling Across Amorphous Silicon,
Europhysics Letters **28**, 65 (1994).
- [113] R. R. Gareev, L. L. Pohlmann, S. Stein, D. E. Bürgler, P. A. Grünberg, and M. Siegel,
Tunneling in epitaxial Fe/Si/Fe structures with strong antiferromagnetic interlayer coupling,
Journal of Applied Physics **93**, 8038 (2003).
- [114] D. E. Bürgler, R. R. Gareev, L. L. Pohlmann, H. Braak, M. Buchmeier, M. Luysberg, R. Schreiber, and P. A. Grünberg,
Interlayer Exchange Coupling Across Epitaxial Si Spacers,
Molecular Physics Reports **40**, 13 (2004).
- [115] G. J. Strijkers, J. Kohlhepp, H. J. Swagten, and W. de Jonge,
Origin of biquadratic exchange in Fe/Si/Fe,
Physical review letters **84**, 1812 (2000).
- [116] T. Katayama, S. Yuasa, J. P. Velez, M. Y. Zhuravlev, S. S. Jaswal, and E. Y. Tsymbal,
Interlayer exchange coupling in Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions,
Applied Physics Letters **89**, 112503 (2006).

- [117] L. Néel,
Sur un nouveau mode de couplage entre les aimantations de deux couches minces ferromagnétiques,
Comptes rendus hebdomadaires des séances de l'Académie des Sciences **T255**, 1676 (1962).
- [118] E. Popova, N. Keller, F. Gendron, C. Tiusan, A. Schuhl, and N. A. Lesnik,
Temperature dependence of the interlayer exchange coupling in epitaxial Fe1/MgO/Fe2/Co tunnel junctions,
Applied Physics Letters **91**, 112504 (2007).
- [119] E. Popova, C. Tiusan, A. Schuhl, F. Gendron, and N. A. Lesnik,
Ferromagnetic resonance in the epitaxial system Fe/MgO/Fe with coupled magnetic layers,
Physical Review B **74**, 224415 (2006).
- [120] Y. Chiang, J. J. I. Wong, X. Tan, Y. Li, K. Pi, W. Wang, H. Tom, and R. K. Kawakami,
Oxidation-induced biquadratic coupling in Co/Fe/MgO/Fe(001),
Physical Review B **79**, 184410 (2009).
- [121] E. Snoeck, P. Baules, G. BenAssayag, C. Tiusan, F. Greullet, M. Hehn, and A. Schuhl,
Modulation of interlayer exchange coupling by ion irradiation in magnetic tunnel junctions,
Journal of Physics: Condensed Matter **20**, 055219 (2008).
- [122] C. Bellouard, J. Faure-Vincent, C. Tiusan, F. Montaigne, M. Hehn, V. Leiner, H. Fritzsche, and M. Gierlings,
Interlayer magnetic coupling in Fe/MgO junctions characterized by vector magnetization measurements combined with polarized neutron reflectometry,
Physical Review B **78**, 134429 (2008).
- [123] H. Yanagihara, Y. Toyoda, and E. Kita,
Antiferromagnetic coupling between spinel ferrite and α -Fe layers in $Fe_{3-\delta}O_4$ /MgO/Fe(001) epitaxial films,
Journal of Physics D: Applied Physics **44**, 064011 (2011).
- [124] H.-C. Wu, S. K. Arora, O. N. Mryasov, and I. V. Shvets,
Antiferromagnetic interlayer exchange coupling between Fe_3O_4 layers across a nonmagnetic MgO dielectric layer,
Applied Physics Letters **92**, 182502 (2008).
- [125] M. Bischoff, T. Yamada, C. Fang, R. de Groot, and H. van Kempen,
Local electronic structure of Fe(001) surfaces studied by scanning tunneling spectroscopy,
Physical Review B **68**, 045422 (2003).
- [126] S. Andrieu and P. Müller,
Les surfaces solides: concepts et méthodes,
L'Editeur: EDP Sciences (2005).
- [127] P. Turban,
Epitaxie de films minces métalliques: (i) Relaxation élastique pendant la croissance pseudomorphe; (ii) Epitaxie d'hétérostructures NiMnSb/MgO/NiMnSb pour l'électronique de spin,
Thèse de l'Université Henri Poincaré, Nancy (2001).

- [128] F. Dulot,
Etude par microscopie en champ proche et diffraction d'électrons rapides des premiers stades de croissance de systèmes métalliques. Application aux systèmes Fe/Cu(100), Cu/Fe(100) et Fe/Fe(100),
Thèse de l'Université Henri Poincaré, Nancy (2000).
- [129] P. Müller, P. Turban, L. Lapena, and S. Andrieu,
Elastic relaxation during 2D epitaxial growth: a study of in-plane lattice spacing oscillations,
Surface Science **488**, 52 (2001).
- [130] P. Turban, L. Hennet, and S. Andrieu,
In-plane lattice spacing oscillatory behaviour during the two-dimensional hetero- and homoepitaxy of metals,
Surface Science **446**, 241 (2000).
- [131] J. A. Stroscio, D. T. Pierce, and R. Dragoset,
Homoepitaxial growth of iron and a real space view of reflection-high-energy-electron diffraction,
Physical Review Letters **70**, 3615 (1993).
- [132] J. A. Stroscio and D. T. Pierce,
Scaling of diffusion-mediated island growth in iron-on-iron homoepitaxy,
Physical Review B **49**, 8522 (1994).
- [133] P. Turban, P. Müller, L. Lapena, and S. Andrieu,
Stress and strain in two-dimensional epitaxial growth: nucleation density effect on the in-plane lattice spacing oscillations,
Applied Surface Science **188**, 97 (2002).
- [134] F. Dulot, B. Kierren, and D. Malterre,
Lineshape analysis of RHEED pattern: scaling behavior and linewidth oscillations,
Thin Solid Films **428**, 72 (2003).
- [135] M. Sicot, S. Andrieu, C. Tiusan, F. Montaigne, and F. Bertran,
On the quality of molecular-beam epitaxy grown Fe/MgO and Co/MgO(001) interfaces,
Journal of Applied Physics **99**, 08D301 (2006).
- [136] H. Kurt, K. Rode, K. Oguz, M. Boese, C. C. Faulkner, and J. M. D. Coey,
Boron diffusion in magnetic tunnel junctions with MgO (001) barriers and CoFeB electrodes,
Applied Physics Letters **96**, 262501 (2010).
- [137] S. Pinitsoontorn, A. Cerezo, A. K. Petford-Long, D. Mauri, L. Folks, and M. J. Carey,
Three-dimensional atom probe investigation of boron distribution in CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions,
Applied Physics Letters **93**, 071901 (2008).
- [138] C. Y. You, T. Ohkubo, Y. K. Takahashi, and K. Hono,
Boron segregation in crystallized MgO/amorphous-Co₄₀Fe₄₀B₂₀ thin films,
Journal of Applied Physics **104**, 033517 (2008).
- [139] J. Y. Bae, W. C. Lim, H. J. Kim, T. D. Lee, K. W. Kim, and T. W. Kim,
Compositional change of MgO barrier and interface in CoFeB/MgO/CoFeB tunnel junction after annealing,
Journal of Applied Physics **99**, 08T316 (2006).

- [140] S. V. Karthik, Y. K. Takahashi, T. Ohkubo, K. Hono, S. Ikeda, and H. Ohno, *Transmission electron microscopy investigation of CoFeB/MgO/CoFeB pseudospin valves annealed at different temperatures*, Journal of Applied Physics **106**, 023920 (2009).
- [141] D. K. Fork, F. a. Ponce, J. C. Tramontana, and T. H. Geballe, *Epitaxial MgO on Si(001) for Y-Ba-Cu-O thin-film growth by pulsed laser deposition*, Applied Physics Letters **58**, 2294 (1991).
- [142] G. X. Miao, J. Y. Chang, M. J. van Veenhuizen, K. Thiel, M. Seibt, G. Eilers, M. Münzenberg, and J. S. Moodera, *Epitaxial growth of MgO and Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions on (100)-Si by molecular beam epitaxy*, Applied Physics Letters **93**, 142511 (2008).
- [143] C. Martínez Boubeta, A. Cebollada, J. F. Calleja, C. Contreras, F. Peiró, and A. Cornet, *Magnetization reversal and magnetic anisotropies in epitaxial Fe/MgO and Fe/MgO/Fe heterostructures grown on Si(001)*, Journal of Applied Physics **93**, 2126 (2003).
- [144] A. Kohn, A. Kovács, T. Uhrmann, T. Dimopoulos, and H. Brückl, *Structural and electrical characterization of SiO₂/MgO(001) barriers on Si for a magnetic transistor*, Applied Physics Letters **95**, 042506 (2009).
- [145] J. Bernos, *Elaboration de jonctions tunnel magnétiques et de jonctions métal/oxyde/semi-conducteur pour l'étude du transport et de la précession du spin d'électrons chauds*, Thèse de l'Université Henri Poincaré, Nancy (2010).
- [146] Y. S. Choi, K. Tsunekawa, Y. Nagamine, and D. D. Djayaprawira, *Transmission electron microscopy study on the polycrystalline CoFeB/MgO/CoFeB based magnetic tunnel junction showing a high tunneling magnetoresistance, predicted in single crystal magnetic tunnel junction*, Journal of Applied Physics **101**, 013907 (2007).
- [147] J.-L. Martin and A. George, *Caractérisation expérimentale des matériaux, Volume 2*, Presses Polytechniques et Universitaires Romandes (1998).
- [148] C. Esnouf, *Caractérisation microstructurale des matériaux*, Presses Polytechniques et Universitaires Romandes (2011).
- [149] E. E. Fullerton, J. S. Jiang, and S. D. Bader, *Hard/soft magnetic heterostructures: model exchange-spring magnets*, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **200**, 392 (1999).
- [150] P.-J. Zermatten, F. Bonell, S. Andrieu, M. Chshiev, C. Tiusan, A. Schuhl, and G. Gaudin, *Influence of Oxygen Monolayer at Fe/MgO Interface on Transport Properties in Fe/MgO/Fe(001) Magnetic Tunnel Junctions*, Applied Physics Express **5**, 023001 (2012).

- [151] P.-J. Zermatten, G. Gaudin, G. Maris, M. Miron, A. Schuhl, C. Tiusan, F. Greullet, and M. Hehn,
Experimental evidence of interface resonance states in single-crystal magnetic tunnel junctions,
Physical Review B **78**, 033301 (2008).
- [152] K. W. Hipps and U. Mazur,
An Experimental Study of the Line Shape of Orbital Mediated Tunneling Bands Seen in Inelastic Electron Tunneling Spectroscopy,
The Journal of Physical Chemistry B **104**, 4707 (2000).
- [153] D. O. Bang, T. Nozaki, Y. Suzuki, K. Rhie, T.-S. Kim, A. Fukushima, S. Yuasa, E. Minamitani, H. Nakanishi, and H. Kasai,
Study of Kondo effect in MgO-based magnetic tunnel junctions by electron tunnelling spectroscopy,
Journal of Physics: Conference Series **200**, 052004 (2010).
- [154] C. Heiliger, P. Zahn, B. Yavorsky, and I. Mertig,
Thickness dependence of the tunneling current in the coherent limit of transport,
Physical Review B **77**, 224407 (2008).
- [155] S. Yuasa, T. Katayama, T. Nagahama, A. Fukushima, H. Kubota, Y. Suzuki, and K. Ando,
Giant tunneling magnetoresistance in fully epitaxial body-centered-cubic Co/MgO/Fe magnetic tunnel junctions,
Applied Physics Letters **87**, 222508 (2005).
- [156] J. Hayakawa, S. Ikeda, Y. M. Lee, F. Matsukura, and H. Ohno,
Effect of high annealing temperature on giant tunnel magnetoresistance ratio of CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions,
Applied Physics Letters **89**, 232510 (2006).
- [157] J. Ventura, J. M. Teixeira, J. P. Araujo, J. B. Sousa, P. Wisniowski, and P. P. Freitas,
Pinholes and temperature-dependent transport properties of MgO magnetic tunnel junctions,
Physical Review B **78**, 024403 (2008).
- [158] Y. M. Lee, J. Hayakawa, S. Ikeda, F. Matsukura, and H. Ohno,
Effect of electrode composition on the tunnel magnetoresistance of pseudo-spin-valve magnetic tunnel junction with a MgO tunnel barrier,
Applied Physics Letters **90**, 212507 (2007).
- [159] R. Matsumoto, Y. Hamada, M. Mizuguchi, M. Shiraishi, H. Maehara, K. Tsunekawa, D. D. Djayaprawira, N. Watanabe, Y. Kurosaki, and T. Nagahama,
Tunneling spectra of sputter-deposited CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions showing giant tunneling magnetoresistance effect,
Solid State Communications **136**, 611 (2005).
- [160] D. D. Djayaprawira, K. Tsunekawa, M. Nagai, H. Maehara, S. Yamagata, N. Watanabe, S. Yuasa, Y. Suzuki, and K. Ando,
230% room-temperature magnetoresistance in CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions,
Applied Physics Letters **86**, 092502 (2005).
- [161] K. W. Hipps and S. L. Peter,
Line shape in normal metal tunneling spectroscopy,
The Journal of Physical Chemistry **93**, 5717 (1989).

- [162] J. P. Lu, M. R. Albert, and S. L. Bernasek,
The adsorption of oxygen on the Fe (100) surface,
Surface Science **215**, 348 (1989).
- [163] M. Sicot,
Des interfaces réelles métal/MgO(001) au transport dans les jonctions tunnel épitaxiées,
Thèse de l'Université Henri Poincaré, Nancy (2005).
- [164] B. G. Almeida, V. S. Amaral, J. B. Sousa, and J. Colino,
Temperature dependence of the magnetic interlayer coupling in Fe/Cr multilayers,
Journal of Magnetism and Magnetic Materials **177**, 1170 (1998).
- [165] J. B. Goodenough,
Magnetism and the chemical bond,
Interscience Publishers (1963).
- [166] R. Guerrero, D. Herranz, F. G. Aliev, F. Greullet, C. Tiusan, M. Hehn, and F. Montaigne,
High bias voltage effect on spin-dependent conductivity and shot noise in carbon-doped Fe(001)/MgO(001)/Fe(001) magnetic tunnel junctions,
Applied Physics Letters **91**, 132504 (2007).
- [167] R. Matsumoto, A. Fukushima, K. Yakushiji, S. Yakata, T. Nagahama, H. Kubota, T. Katayama, Y. Suzuki, K. Ando, S. Yuasa, B. Georges, V. Cros, J. Grollier, and A. Fert,
Spin-torque-induced switching and precession in fully epitaxial Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions,
Physical Review B **80**, 174405 (2009).
- [168] J. M. MacLaren, S. Crampin, D. D. Vvedensky, and J. B. Pendry,
Layer Korringa-Kohn-Rostoker technique for surface and interface electronic properties,
Physical Review B **40**, 12164 (1989).
- [169] V. Heine,
Some theory about surface states,
Surface Science **2**, 1–7 (1964).
- [170] P. Blaha, K. Schwarz, G. Madsen, D. Kvasnicka, and J. Luitz,
WIEN 2k Programm Package,
<http://www.wien2k.at/>.
- [171] E. Du Trémolet de Lacheisserie,
Magnétisme: II - Matériaux et applications,
EDP Sciences (2000).
- [172] L. E. Nistor,
Magnetic tunnel junctions with perpendicular magnetization: anisotropy, magnetoresistance, magnetic coupling and spin transfer torque switching,
Thèse de l'Université de Grenoble (2011).
- [173] L. E. Nistor, B. Rodmacq, S. Auffret, A. Schuhl, M. Chshiev, and B. Dieny,
Oscillatory interlayer exchange coupling in MgO tunnel junctions with perpendicular magnetic anisotropy
Physical Review B **81**, 220407 (2010).

Annexe A - Expressions analytiques des constantes de couplage bilinéaire J et biquadratique J_b

Ces calculs sont le prolongement de ceux figurant dans l'annexe D de la thèse de J. Faure-Vincent [1] et dans l'article de C. Tiusan [15], en y ajoutant un terme de couplage biquadratique J_b .

A - 1 Energie d'un système AAF suivant un axe facile

Nous nous situons dans l'approximation du modèle de Stoner-Wohlfarth, supposant un retournement des aimantations par rotation cohérente, sans formation de domaines magnétiques. Nous considérons le système AAF représenté sur la Figure A-1 (à gauche) ; il est constitué de deux couches magnétiques de Fe caractérisées par leur épaisseur t_1 et t_2 , leur aimantation \mathbf{M}_1 et \mathbf{M}_2 , de norme égale à la valeur de l'aimantation à saturation du Fe M_{Fe} , et leur constante d'anisotropie par unité de volume d'ordre 4, K_1 et K_2 . Les interactions entre ces deux couches sont modélisées par un couplage bilinéaire d'intensité J , négative dans le cas d'un couplage AF, et un couplage biquadratique d'intensité J_b également négative, ce couplage favorisant une configuration à 90° des aimantations des deux couches. Les angles entre les aimantations des deux couches magnétiques et la direction d'application du champ \mathbf{H} sont notés θ_1 et θ_2 , et φ est l'angle formé par un axe facile de référence et la direction du champ (Figure A-1, droite).

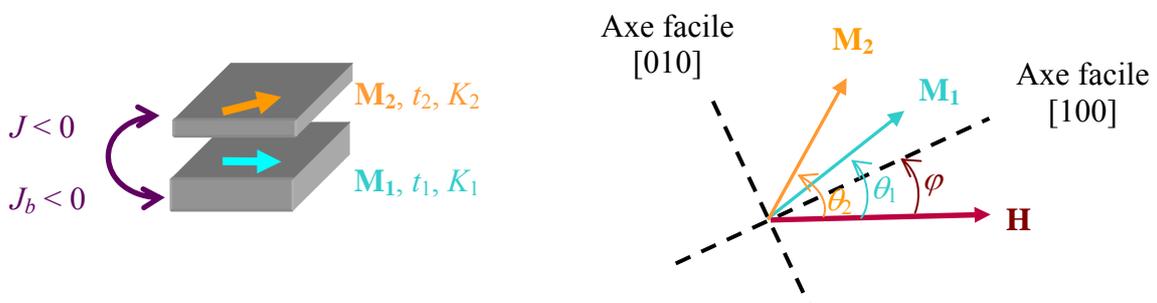


Figure A-1 – Schéma illustrant la signification des angles θ_1 , θ_2 et φ ; K_i : constante d'anisotropie d'ordre 4 de la couche i ; M_i : aimantation de la couche i , avec $\|M_1\| = \|M_2\| = M_{Fe}$, la valeur de l'aimantation à saturation du Fe ; t_i : épaisseur de la couche i ; J : constante de couplage bilinéaire ; J_b : constante de couplage biquadratique.

Dans le modèle de Stoner-Wohlfarth, en se plaçant suivant un axe facile ($\varphi = 0$) l'énergie totale par unité de surface de ce système s'écrit (on prend $\mu_0 = 1$) :

$$E_{totale} = -M_{Fe}H(t_1 \cos \theta_1 + t_2 \cos \theta_2) - J \cos(\theta_1 - \theta_2) - J_b \cos^2(\theta_1 - \theta_2) + \frac{K_1 t_1}{4} \sin^2 2\theta_1 + \frac{K_2 t_2}{4} \sin^2 2\theta_2 \quad (A-1)$$

La minimisation de l'énergie par rapport aux angles θ_1 et θ_2 conduit aux équations suivantes :

$$\begin{cases} \sin(\theta_2 - \theta_1) \cdot (J + 2J_b \cos(\theta_2 - \theta_1)) = HM_{Fe} t_1 \sin \theta_1 + K_1 t_1 \sin 2\theta_1 \cos 2\theta_1 \\ -\sin(\theta_2 - \theta_1) \cdot (J + 2J_b \cos(\theta_2 - \theta_1)) = HM_{Fe} t_2 \sin \theta_2 + K_2 t_2 \sin 2\theta_2 \cos 2\theta_2 \end{cases} \quad (A-2)$$

La détermination des expressions analytiques des champs de saturation H_S et de plateau H_P nécessite quelques manipulations préalables au passage aux limites $\{\theta_1 \rightarrow 0^-; \theta_2 \rightarrow 0^+\}$ pour H_S et $\{\theta_1 \rightarrow 0^-; \theta_2 \rightarrow \pi^-\}$ pour H_P ; tout d'abord, on réorganise les termes dans (A-2) :

$$\begin{cases} \frac{\sin \theta_1}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{J + 2J_b \cos(\theta_2 - \theta_1)}{t_1(HM_{Fe} + 2K_1 \cos \theta_1 \cos 2\theta_1)} \\ -\frac{\sin \theta_2}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{J + 2J_b \cos(\theta_2 - \theta_1)}{t_2(HM_{Fe} + 2K_2 \cos \theta_2 \cos 2\theta_2)} \end{cases} \quad (A-3)$$

A - 2 Champ de saturation suivant l'axe facile H_S

Pour obtenir l'expression de H_S , on ajoute membre à membre les deux équations du système (A-3), ce qui donne :

$$\frac{\sin \theta_1 - \sin \theta_2}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{J + 2J_b \cos(\theta_2 - \theta_1)}{t_1(HM_{Fe} + 2K_1 \cos \theta_1 \cos 2\theta_1)} + \frac{J + 2J_b \cos(\theta_2 - \theta_1)}{t_2(HM_{Fe} + 2K_2 \cos \theta_2 \cos 2\theta_2)} \quad (A-4)$$

On a de plus la relation suivante :

$$\frac{\sin \theta_1 - \sin \theta_2}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{2 \cos\left(\frac{\theta_1 + \theta_2}{2}\right) \sin\left(\frac{\theta_1 - \theta_2}{2}\right)}{2 \cos\left(\frac{\theta_2 - \theta_1}{2}\right) \sin\left(\frac{\theta_2 - \theta_1}{2}\right)} = \frac{\cos\left(\frac{\theta_1 + \theta_2}{2}\right)}{\cos\left(\frac{\theta_2 - \theta_1}{2}\right)} \quad (A-5)$$

Le champ de saturation suivant l'axe facile, noté H_S , correspond à l'alignement parallèle des aimantations des deux couches magnétiques suivant un axe de facile aimantation,

autrement dit pour : $\{\theta_1 \rightarrow 0^-; \theta_2 \rightarrow 0^+\}$. Le passage à ces limites dans les équations (A-4) et (A-5) conduit à :

$$-1 = \frac{J + 2J_b}{t_1} \cdot \frac{1}{M_{Fe}H_S + 2K_1} + \frac{J + 2J_b}{t_2} \cdot \frac{1}{M_{Fe}H_S + 2K_2} \quad (\text{A-6})$$

Il s'agit d'une équation du second degré dont la résolution donne, pour $J < 0$ (cette solution est la seule solution ayant un sens physique ; en toute rigueur il en existe une seconde, avec un signe moins devant la racine) :

$$H_S + \frac{K_2 + K_1}{M_{Fe}} = -\frac{(J + 2J_b)}{2M_{Fe}} \left(\frac{1}{t_2} + \frac{1}{t_1} \right) \left[1 + \sqrt{1 + \frac{4t_1t_2(t_1 - t_2)(K_2 - K_1)}{(t_1 + t_2)^2 (J + 2J_b)} + \frac{4t_1^2t_2^2 (K_2 - K_1)^2}{(t_1 + t_2)^2 (J + 2J_b)^2}} \right] \quad (\text{A-7})$$

A - 3 Champ de plateau suivant l'axe facile H_P

Pour obtenir l'expression de H_P , on soustrait membre à membre les deux équations du système (A-3), on obtient ainsi l'équation (A-8) :

$$\frac{\sin \theta_1 + \sin \theta_2}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{J + 2J_b \cos(\theta_2 - \theta_1)}{t_1(HM_{Fe} + 2K_1 \cos \theta_1 \cos 2\theta_1)} - \frac{J + 2J_b \cos(\theta_2 - \theta_1)}{t_2(HM_{Fe} + 2K_2 \cos \theta_2 \cos 2\theta_2)} \quad (\text{A-8})$$

Que l'on combine à la relation :

$$\frac{\sin \theta_1 + \sin \theta_2}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{2 \cos\left(\frac{\theta_1 - \theta_2}{2}\right) \sin\left(\frac{\theta_1 + \theta_2}{2}\right)}{2 \cos\left(\frac{\theta_2 - \theta_1}{2}\right) \sin\left(\frac{\theta_2 - \theta_1}{2}\right)} = \frac{\sin\left(\frac{\theta_1 + \theta_2}{2}\right)}{\sin\left(\frac{\theta_2 - \theta_1}{2}\right)} \quad (\text{A-9})$$

Le champ de plateau suivant l'axe facile, noté H_P , correspond à l'alignement antiparallèle des aimantations des deux couches magnétiques suivant un axe de facile aimantation, autrement dit à $\{\theta_1 \rightarrow 0^-; \theta_2 \rightarrow \pi^-\}$. Le passage à ces limites dans les relations (A-8) et (A-9) conduit à l'équation suivante, dont le champ H_P est solution :

$$1 = \frac{J - 2J_b}{t_1} \cdot \frac{1}{M_{Fe}H_P + 2K_1} - \frac{J - 2J_b}{t_2} \cdot \frac{1}{M_{Fe}H_P - 2K_2} \quad (\text{A-10})$$

Cette équation correspond à nouveau à une équation du second degré dont la résolution donne comme unique solution physique, pour $J < 0$:

$$H_P - \frac{K_2 - K_1}{M_{Fe}} = -\frac{(J - 2J_b)}{2M_{Fe}} \left(\frac{1}{t_2} - \frac{1}{t_1} \right) \left[1 + \sqrt{1 - \frac{4t_1t_2(t_1 + t_2)(K_1 + K_2)}{(t_1 - t_2)^2 (J - 2J_b)} + \frac{4t_1^2t_2^2 (K_1 + K_2)^2}{(t_1 - t_2)^2 (J - 2J_b)^2}} \right] \quad (\text{A-11})$$

A - 4 Expressions de J et J_b

Les expressions de ces deux constantes de couplage peuvent être déterminées à partir des équations (A-6) et (A-10). Ces deux équations peuvent être réécrites, en factorisant par K_1 et K_2 .

$$\begin{cases} -1 = \frac{J+2J_b}{2K_1t_1} \cdot \frac{1}{\frac{M_{Fe}H_S}{2K_1} + 1} + \frac{J+2J_b}{2K_2t_2} \cdot \frac{1}{\frac{M_{Fe}H_S}{2K_2} + 1} \\ 1 = \frac{J-2J_b}{2K_1t_1} \cdot \frac{1}{\frac{M_{Fe}H_P}{2K_1} + 1} - \frac{J-2J_b}{2K_2t_2} \cdot \frac{1}{\frac{M_{Fe}H_P}{2K_2} - 1} \end{cases} \quad (\text{A-12})$$

On peut alors faire apparaître les champs d'anisotropie des couches 1 et 2, $H_{a1(a2)} = 2 \cdot K_{1(2)} / M_{Fe}$:

$$\begin{cases} -1 = \frac{J+2J_b}{2} \cdot \left(\frac{1}{K_1t_1} \cdot \frac{1}{\frac{H_S}{H_{a1}} + 1} + \frac{1}{K_2t_2} \cdot \frac{1}{\frac{H_S}{H_{a2}} + 1} \right) \\ 1 = \frac{J-2J_b}{2} \cdot \left(\frac{1}{K_1t_1} \cdot \frac{1}{\frac{H_P}{H_{a1}} + 1} - \frac{1}{K_2t_2} \cdot \frac{1}{\frac{H_P}{H_{a2}} - 1} \right) \end{cases} \quad (\text{A-13})$$

A partir de là, une simplification peut être effectuée, puisqu'expérimentalement on vérifie $K_1 \approx K_2$ et $t_1 \gg t_2$: le premier terme est alors négligeable devant le second (voir ci-dessus), et finalement, on obtient :

$$\begin{cases} -1 = \frac{J+2J_b}{2} \cdot \frac{1}{K_2t_2} \cdot \frac{1}{\frac{H_S}{H_{a2}} + 1} \\ 1 = -\frac{J-2J_b}{2} \cdot \frac{1}{K_2t_2} \cdot \frac{1}{\frac{H_P}{H_{a2}} - 1} \end{cases} \quad (\text{A-14})$$

Ce qui devient, en réarrangeant un peu les différents termes :

$$\begin{cases} H_S + \frac{2K_2}{M_{Fe}} = -\frac{1}{t_2 M_{Fe}} (J + 2J_b) \\ H_P - \frac{2K_2}{M_{Fe}} = -\frac{1}{t_2 M_{Fe}} (J - 2J_b) \end{cases} \quad (\text{A-15})$$

Il ne nous reste à présent qu'à relier ces expressions aux champs mesurés expérimentalement h_S et h_P .

A - 5 Expressions de J et J_b en fonction des champs h_S et h_P :

Dans la limite de l'absence de couplage, obtenue en faisant tendre J et J_b vers 0 dans les deux expressions du système (A-15), les champs H_S et H_P tendent vers des valeurs correspondant aux champs coercitifs de la couche 2 dans le modèle de Stoner-Wohlfarth (Figure A-2) :

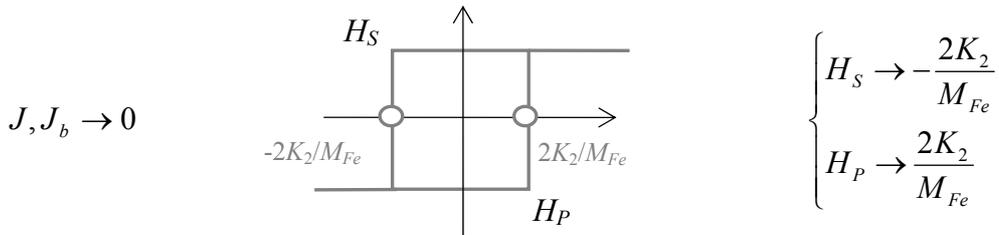


Figure A-2 – Représentation schématique des champs de plateau et de saturation dans la limite de couplages bilinéaire et biquadratique nuls.

Or, expérimentalement, selon l'axe facile, le retournement de la couche 2 ne se produit pas par une rotation cohérente des moments comme le suppose le modèle de Stoner-Wohlfarth, mais par nucléation et propagation de domaines : ce retournement se produit donc à des champs très inférieurs aux champs coercitifs $\pm 2K_2/M_{Fe}$. Autrement dit, en présence de couplage, les champs de retournement de la couche douce que l'on relève expérimentalement ne peuvent pas être directement identifiés à H_S et H_P . En revanche, les champs expérimentaux peuvent être reliés aux champs H_S et H_P , grâce aux relations (A-16) (Figure A-3) :

$$\begin{aligned} h_S &= H_S + \frac{2K_2}{M_{Fe}} \\ h_P &= H_P - \frac{2K_2}{M_{Fe}} \end{aligned} \quad (\text{A-16})$$

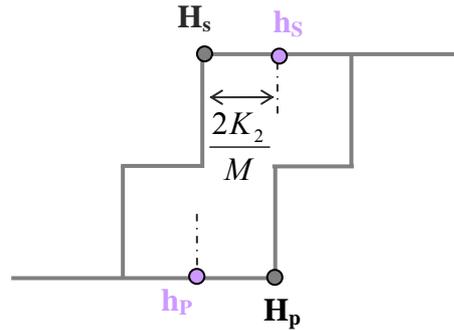


Figure A-3 – Représentation schématique de la relation entre H_s , H_p et h_s , h_p .

Par identification de (A-16) et (A-15), on obtient les expressions des champs h_s et h_p en fonction de J et J_b :

$$\begin{cases} h_s = -\frac{1}{t_2 M_{Fe}} (J + 2J_b) \\ h_p = -\frac{1}{t_2 M_{Fe}} (J - 2J_b) \end{cases} \quad (\text{A-17})$$

Finalement, les expressions des constantes J et J_b sont obtenues (A-18), et schématiquement représentées sur la Figure A-4.

$$\begin{aligned} J &= -M_{Fe} t_2 \cdot \frac{h_s + h_p}{2} \\ J_b &= -\frac{M_{Fe} t_2}{2} \cdot \frac{h_s - h_p}{2} \end{aligned} \quad (\text{A-18})$$

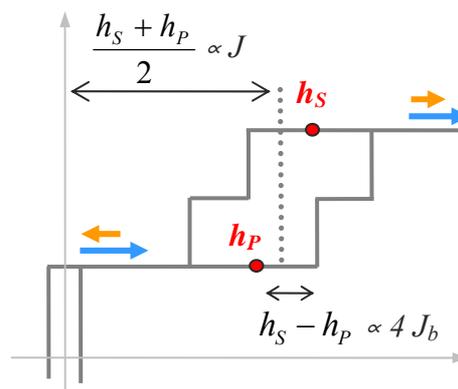


Figure A-4 – Rôles de J et J_b : décalage du cycle mineur de la couche 2 pour J , décalage des champs h_s et h_p pour J_b .

Transport polarisé en spin à travers une barrière de MgO(001) : magnétorésistance et couplage magnétique

Les jonctions tunnel magnétiques épitaxiées Fe/MgO/Fe(001) présentent des comportements remarquables dans la limite des faibles ou des fortes épaisseurs de MgO. Ainsi, dans le premier cas, une interaction antiferromagnétique entre les deux couches de fer est observée ; dans le second, des effets de filtrage en symétrie conduisent à l'obtention de fortes valeurs de magnétorésistance. Les expériences réalisées au cours de cette thèse visent à étudier et mettre en relation ces deux régimes de propriétés extrêmes.

Des analyses en tension et en température nous permettent d'étudier les conséquences d'une modulation de la structure cristalline des électrodes et/ou de l'interface sur le transport polarisé en spin. Dans ce cadre, nous nous intéressons à trois systèmes : des jonctions hybrides Fe/MgO(001)/CoFeB, où l'électrode de CoFeB est déposée par pulvérisation cathodique puis cristallisée *in situ*, des jonctions Fe/MgO/Fe à texture (001), ainsi que des jonctions Fe/MgO/Fe monocristallines présentant une rugosité artificielle à l'interface barrière/électrode. Le couplage antiferromagnétique dans des systèmes Fe/MgO/Fe(001) à barrière fine est étudié grâce à des mesures de magnétométrie sur la gamme de température [5 K ; 500 K]. Nous considérons aussi l'effet de modifications structurales et/ou chimiques de l'interface par le biais de l'introduction d'une rugosité contrôlée ou d'un contaminant.

Les résultats les plus originaux de cette thèse sont obtenus grâce à l'introduction d'une rugosité artificielle à l'interface Fe/MgO ; contre toute attente, ce désordre contrôlé peut en effet augmenter l'effet de magnétorésistance ou l'intensité du couplage antiferromagnétique.

Mots-clés : jonction tunnel magnétique, magnétorésistance, couplage antiferromagnétique, symétrie électronique, CoFeB, épitaxie par jets moléculaires, pulvérisation cathodique, diffraction RHEED, mesures en température

Spin-polarized transport across a MgO(001) barrier: magnetoresistance and magnetic coupling

Epitaxial magnetic tunnel junctions Fe/MgO/Fe(001) exhibit noteworthy behaviors for both small and large MgO thicknesses. In the first case, a strong antiferromagnetic interaction between Fe layers is observed, whereas symmetry filtering effects occur for large barriers, leading to high TMR values. The aim of the experiments performed during this thesis is to study and link these two behaviors.

We consider the effect of a modulation of electrodes and/or interfaces crystalline structure on spin-polarized transport, by means of temperature and voltage analyses. In this framework, we focus on three systems: Fe/MgO(001)/CoFeB hybrid junctions, where the CoFeB electrode is grown by sputtering and *in situ* recrystallized, textured Fe/MgO/Fe(001) junctions, and finally single crystalline (001)Fe/MgO/Fe junctions with an artificial roughness at the electrode/barrier interface. The antiferromagnetic coupling in epitaxial Fe/MgO/Fe(001) systems with a thin MgO barrier is studied by magnetometry measurements in the [5 K; 500 K] range. We also consider the effect of structural and/or chemical changes resulting from a controlled roughness or a contamination on the coupling.

The most interesting results of this thesis are obtained with the introduction of an artificial roughness at the Fe/MgO interface. Unexpectedly, this controlled disorder can improve the magnetoresistance effect or the coupling intensity. In both cases, this result is attributed to a Fe-O hybridization, which emphasizes the role of oxygen in MgO based magnetic tunnel junctions for both behaviors associated with extremely thin or thick barriers.

Keywords: magnetic tunnel junction, magnetoresistance, antiferromagnetic coupling, electronic symmetry, CoFeB, molecular beam epitaxy, sputtering, RHEED diffraction, temperature measurements