Anisotropie magnétique perpendiculaire, interaction Dzyaloshinskii-Moriya d'interface et coefficient d'amortissement dans les systèmes à base de matériau ferromagnétique / métal lourd

Ibtissem Benguettat

▶ **To cite this version:**

Ibtissem Benguettat. Anisotropie magnétique perpendiculaire, interaction Dzyaloshinskii-Moriya d'interface et coefficient d'amortissement dans les systèmes à base de matériau ferromagnétique / métal lourd. Physique [physics]. Université Paris-Nord - Paris XIII; Université d'Oran, 2021. Français. NNT : 2021PA131069 . tel-03884484

HAL Id: tel-03884484
https://theses.hal.science/tel-03884484

Submitted on 5 Dec 2022

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.

N° attribué par la bibliothèque
|__|__|__|__|__|__|__|__|__|__|

Thèse en cotutelle

En vue de l'obtention du diplôme de

Docteur des universités Sorbonne Paris Nord et Oran 1 (Ahmed Ben Bella)

Spécialité : Sciences des Matériaux

Présentée par

Ibtissem Benguettat

Anisotropie magnétique perpendiculaire, interaction Dzyaloshinskii-Moriya d'interface et coefficient d'amortissement dans les systèmes à base de matériau ferromagnétique/métal lourd.

Soutenue le 15 décembre 2021 devant le jury composé de :

Président	KHELIL Abdelbacet	Prof. Université Oran 1 (Algérie)
Rapporteurs		
	HERRERA DIEZ Liza	Chargée de recherche CNRS C2N
	LAYADI Abdelhamid	Prof. Université Sétif 1 (Algérie)
Examinateurs		
	CHERIF S. Mourad	Prof. Université Sorbonne Paris Nord
	Vidal Franck	Prof. Sorbonne Université
Directeurs de thèse		
	BELMEGUENAI Mohamed	MC (HDR) Université Sorbonne Paris Nord
	CHAHED Larbi	Prof. Université Oran 1 (Algérie)
Co-directeur de thèse		
	KAIL Fatiha	Prof. Université Oran 1 (Algérie)

THESE

Université Sorbonne Paris Nord
Laboratoire des Sciences des Procédés et des Matériaux (LSPM)
UPR CNRS 3407, 99 avenue J.-B. Clément, 93430 Villetaneuse, France
Université Oran 1, Laboratoire de Physique des Couches Minces et Matériaux pour l'Electronique,
BP1524, El M'naouar, 31100, Oran, Algérie

À Sid Ahmed Benguettat
que Dieu t'accueille dans son vaste paradis

Remerciements

Voila déjà arrivé aux remerciements, que je me rappelle de tous les moments qui ont rendu ces trois dernière années de ma thèse mémorables. Le parcours a été rempli de moments de joie, de motivation, d'exaspération, de panique, de doute de soi, de soulagement ...Il est venu maintenant le temps pour moi de dire au revoir et de remercier toutes les personnes qui ont de prés ou de loin contribuer au bon déroulement de ma thèse, tant sur l'aspect scientifique que sur l'aspect humain.

Tout d'abord un grand merci aux membres de mon jury. Abdelbacet Khelil, d'avoir présider le jury et mes rapporteurs Liza Herrera Diez et Abdelhamid Layadi d'avoir pris le temps de lire les nombreuses pages de mon manuscrit et pour leurs importantes remarques qui m'ont permis d'envisager mon travail sous un autre angle. Je remercie également Cherif Mourad Salim et Franck Vidal de m'avoir fait l'honneur d'examiner mon travail de thèse.

Je voudrais ensuite remercier mes encadrants Mohamed Belmeguenai, Larbi Chahed et Fatiha Kail. Mes chaleureux remerciements à Mohamed pour m'avoir encadré et si bien accompagné durant ces trois années les plus mémorables de mon parcours académique. Un grand merci et une immense gratitude pour tous ce que j'ai appris grâce à toi et pour m'avoir initié à la recherche dans le domaine de la spintronique qui m'était inconnu jusqu'au début de ma thèse. Merci encore de m'avoir fait l'honneur d'évoluer à tes cotés, de m'avoir guidé quotidiennement dans ce travail et de m'avoir transférer ton savoir-faire dont j'avais grandement besoin. Merci pour ta gentillesse, ton aide, ta disponibilité permanente (surtout durant les mesures) et pour les nombreux conseils que tu m'as prodigués. Enfin, je ne te remercierai jamais assez pour toutes les corrections que tu as apporté à ce manuscrit, pour ta patience et pour toutes tes critiques très constructives, qui m'ont permis d'améliorer la qualité de rédaction. Ce travail de thèse n'aurai jamais pu aboutir sans ton soutien sans faille, de tous mon cœur, un grand merci.

Je remercie monsieur Dominique Vrel, directeur du laboratoire des Sciences des Procédés et des Matériaux (LSPM) pour m'avoir accueilli au sein de son laboratoire pour y effectuer ce travail. Je remercie également l'ensemble du personnel administratif du laboratoire LSPM notamment Nathalie Duros et Ouafa Rahmani pour votre efficacité et gentillesse. Merci Ouafa pour tes encouragements quand mon moral était (très souvent) au plus bas.

Cette thèse est le fruit de nombreuses collaborations de l'équipe PPANAM avec plusieurs laboratoires en France et à l'étranger. Toute ma reconnaissance et mes remerciements s'adressent ainsi à Mihai Gabor, Hélene Béa, Ioannis Panagiotopoulos, Laurence Méchin et leurs équipes, respectivement, pour les échantillons fournis au cours de se travail. Je remercie particulièrement Mihai Gabor pour sa disponibilité en plus pour les mesures de magnétométrie et de diffraction par rayons X.

J'ai eu la chance et l'opportunité depuis la rentrée septembre 2021, de pouvoir enseigner en tant qu'ATER à l'université de Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines (UVSQ). Je remercie pour cela Julien Barjon et Aymeric Chazottes pour la confiance qu'ils m'ont accordé et pour m'avoir donner avec cette première expérience d'enseignement à l'université, l'occasion d'enseigner en cours et TD. J'en profite également pour remercier monsieur

Alain Lusson, directeur du laboratoire GEMaC de m'avoir accueilli au sein de son laboratoire, ainsi que Jean-Michel Chauveau et David Shmool qui ont eu la gentillesse de me remplacer durant la semaine qui a précédé ma soutenance. Vous n'avez pas idée à quel point cette aide m'a été précieuse !

Ces trois dernières années passées au LSPM ont été l'occasion pour moi de faire de nombreuses rencontres inoubliables. Merci à Yves Roussigné d'avoir toujours été disponible lorsque j'avais une question qui me trottait dans la tête, de même que pour les mesures en BLS lorsque je galéré les premiers temps à les réaliser correctement. Tu avais été pour moi "une mine de savoir" ou tu as beaucoup contribué à la compréhension de mon sujet grâce à nos nombreuses discussions. Merci encore pour ta super pédagogie et pour avoir pris le temps de lire les deux premiers chapitres de ce manuscrit ainsi que pour ta présence (et remarques !) lors des nombreuses répétitions qui ont précédé ma soutenance. Enfin, je n'oublierai pas ta bonne humeur permanente (ainsi que toutes les folles histoires que tu nous racontais) qui a largement contribué à mon bien être au laboratoire LSPM, d'ailleurs je me rend compte en écrivant ces quelques lignes que durant toutes ces années, je ne t'ai jamais vu énervé ou de mauvaise humeur ! !

Je remercie Nathalie Lidgi-Guigui d'avoir pris le soin et la gentillesse de prendre de nos nouvelles (les doctorants) lors du premier confinement, dieu sait à quel point il était difficile de rester enfermé seule pendent des semaines dans un studio de 20 m^2. Merci encore pour ton message d'encouragement que j'ai reçu juste avant le début de ma soutenance, ça m'a fait chaud au cœur. Merci à Eloi Haltz d'avoir pris le temps d'assister à l'une de mes nombreuses répétitions et pour toutes tes critiques et remarques qui m'ont permis d'améliorer largement ma présentation. Je remercie également Andrey Stashkevich pour sa disponibilité pour les mesures BLS pendent les week-ends et Selma Barboura pour le joli cadeau de soutenance.

Que serait une thèse sans les nombreux échanges et les longues discussions avec les doctorants dont l'expérience est la plus proche de ce que l'on vit nous-même. Je remercie pour cela Siham Sodki, Ayda Majoul, Hatem Ben Mahmoud, Cristiano Poltronieri, Djoudi Ourdani et Marwa Dhahri pour votre soutien et vos encouragements, vous avez tous contribuer à mon épanouissement. Merci Djoudi pour ta précieuse aide lors de la préparation des slides de la présentation (et des figures 3D), pour toutes les superbes bonnes idées que tu m'as donné ainsi que pour tous le temps que tu as consacré à ta présence lors de mes nombreuses répétitions, ma présentation finale de soutenance n'aurait jamais ce rendu sans toi.

Marwa...ma Marwa ! Tu ne sais pas à quel point je suis heureuse que nos chemins se sont croisés. Merci pour ton amitié indéfectible, pour ta présence et ton soutien au quotidien quand nous étions toutes les deux loin de nos familles... quand mon moral était au plus bas. Je n'oublierai jamais combien tu m'as sauvé quand tu m'as aidé à démanger (en une journée). Merci encore d'avoir pris soin de moi quand j'ai attrapé le COVID. Merci pour ta joie et ta bonne humeur (contagieuse) que tu m'a apporté dans les moments les plus durs. Notre amitié n'est qu'au début et nous avons encore du chemin à faire, promis je te laisserai pas te débarrasser de moi ! ! Je te souhaite beaucoup de réussite pour ta soutenance qui se tiendra très prochainement et je ne doute pas qu'elle sera "mémorable".

Mes derniers remerciements sont adressés à ma famille. Merci à mon oncle Rachid et à ma tante Zohra qui m'ont toujours soutenus dans mon parcours académique, même si vous ne compreniez pas trop ce que je cherchais ! ! Je sais que ces quelques lignes ne

suffisent pas pour vous exprimer toute ma gratitude et ma reconnaissance, vous avez été une épaule sur laquelle je m'appuyai dans les moments les plus durs... vous êtes ma seule famille en France. Merci encore d'avoir toujours été présents pour moi, quand le manque de ma maman se faisait sentir, je trouvais toujours refuge auprès de vos cœurs et le réconfort dont j'avais toujours besoin. Un immense merci à ma tante, car c'est grâce à tes encouragements que j'ai sauté le pas pour venir continuer mes études de master en France, ton perpétuel soutien durant toutes ces dernières années m'a été plus que précieux.

Un grand merci à mes sœurs Wafae, Chaimae et Imene, qui m'ont toujours encouragé à aller de l'avant et à réussir. Je m'estime très chanceuse de vous avoir dans ma vie et vous remercie d'avoir toujours été présentes pour moi quand j'avais besoin d'une oreille attentive pour m'écouter.

Un immense merci à mes parents. Je sais que tous les mots de la terre ne suffiront pas pour vous exprimer toute ma gratitude. Si j'en suis arrivé aujourd'hui à entamer et finir une thèse de doctorat, c'est bien à vous que je dois ce travail. Vos encouragements sont pour moi les piliers de ce que je suis. Je vous donnerai tous mes diplômes, pourvu que je puisse vous rendre ne serait-ce que pour un instant tout le bonheur et l'amour que vous m'avez toujours procuré. Maman, je sais à quel point tu as souffert quand je suis parti finir mes études en France et j'espère à travers ce travail t'avoir honoré pour tous tes sacrifices. Merci encore maman pour ton soutien et pour n'avoir jamais douté de moi. Je dédie entièrement ce travail à toi, ma première supportrice et **ma plus grande force**.

Ces remerciements ne peuvent s'achever sans une pensée pour mon plus grand fan : mon mari. Je te remercie mon cher époux pour ton soutien indéfectible, pour la patience dont tu as fais preuve pendent toute la durée de cette thèse et pour tous le réconfort que tu m'as apporté. Merci de m'avoir épauler jusqu'au bout dans cette aventure et d'avoir toujours été présent pour moi quand j'avais le plus besoin de toi, quand je pensais plus d'une fois ne jamais voir le bout du tunnel...je t'en serai éternellement reconnaissante. Merci encore car grâce à toi notre couple a grandi en même temps que mon projet scientifique, où le premier a servi de socle solide à l'épanouissement du second.

Résumé

L'électronique conventionnelle est basée sur la manipulation de la charge électrique. La spintronique est un domaine émergent qui utilise le spin des électrons comme de degré de liberté supplémentaire pour générer de nouvelles fonctionnalités. Pour cela, les systèmes ultraminces intégrant des empilements de matériau ferromagnétique/métal lourd (FM/HM) à fort couplage spin-orbite (SOC) font actuellement l'objet de recherches intensives en raison de leurs applications potentielles dans ce domaine. Divers nouveaux mécanismes et phénomènes se produisent dans ces structures telles que le pompage de spin, l'anisotropie magnétique perpendiculaire et l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya d'interface (iDMI). Ce travail de thèse est dédié à l'étude expérimentale de ces trois phénomènes dans les empilements à base d'interface FM/HM (où FM = Co, CoFeB et LSMO et HM= Pt, Ta, W, Ir, et Ru...). Une attention particulière a été portée aux effets des épaisseurs des matériaux FM ou HM, du nombre de répétition en multicouhes et du recuit. Le comportement de l'anisotropie magnétique (dans le plan et hors du plan des échantillons), ainsi que les différentes contributions intrinsèques et extrinsèques à l'amortissement ont été cernés à l'aide de la technique de résonnance ferromagnétique. Un intérêt particulier est accordé à l'iDMI, étudiée par la technique de la diffusion Brillouin de la lumière, via la mesure directe de la non-réciprocité de la propagation des ondes de spin. Le caractère interfacial de l'iDMI dans les différents systèmes a été démontré ainsi que la possibilité de moduler (en signe et en intensité) sa constante effective par le choix des différents empilements étudiés. De plus, une iDMI significative a été mesurée en utilisant une couche de couverture à base d'oxyde de métal (PtO_x et TaO_x). Enfin, après avoir déterminé l'épaisseur de saturation de ces trois effets, une corrélation linéaire ou non linéaire entre eux a été mise en évidence dans certains systèmes étudiés. Les résultats obtenus à partir de ce travail contribuent principalement à une compréhension approfondie de ces trois phénomènes d'interface et valident l'importance d'une iDMI modulable pour les futurs dispositifs spintroniques à base de structures chirales tels que les skyrmions et les parois de domaines.

Abstract

Conventional electronics is based on the manipulation of the electrical charge. In contrast spintronics which is an emerging field, uses electron spin as an additional degree of freedom to generate new functionalities. For this purpose, ultrathin systems integrating ferromagnet/heavy metal (FM/HM) stacks with strong spin-orbit coupling (SOC) are currently the subject of intensive research owing to their potential applications in this field. Various new mechanisms and phenomena occur in these structures, such as spin pumping, perpendicular magnetic anisotropy and interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction (iDMI). This work is devoted to the experimental study of these three phenomena in FM/HM interface based stacks (where FM = Co, CoFeB and LSMO and HM= Pt, Ta, W, Ir, and Ru...). Particular attention has been given to effects of FM or HM thicknesses, the number of repeats in multilayers and annealing. The behavior of the magnetic anisotropy (in and out-of-sample's plane), as well as the different intrinsic and extrinsic contributions to the damping have been identified, using ferromagnetic resonance technique. A particular interest is given to the iDMI, studied by Brillouin light scattering technique, via the direct measurement of the non-reciprocity of the spin wave propagation. The interfacial character of the iDMI, in the different systems, as well as the possibility to modulate (it's sign and strength) have been demonstrated by the choice of the different studied stacks. Furthermore, a significant iDMI was achieved, using a metal oxide (PtO_x and TaO_x) capping layer. Finally, after determining the saturation characteristic length scale of these three SOC related effects, a linear or non-linear correlation between them was revealed in some of the studied systems. The obtained results mainly contribute to a deeper understanding of these three interface phenomena and validate the importance of a scalable iDMI for future spintronic devices based on chiral structures such as skyrmions and domain walls.

Table des matières

Introduction **13**

1 Généralités sur le magnétisme, notions de base et magnétisme interfacial **17**

1.1 Concepts du magnétisme . . . 17
1.1.1 Histoire du magnétisme . . . 17
1.1.2 Ordre magnétique . . . 18
1.1.3 Énergies magnétiques dans une couche mince ferromagnétique . . . 22
1.1.3.1 Énergie de Zeeman . . . 22
1.1.3.2 Énergie d'échange . . . 22
1.1.3.3 Énergie dipolaire ou de démagnétisation . . . 24
1.1.3.4 Énergie d'anisotropie . . . 25
1.1.4 La dynamique de l'aimantation . . . 27
1.1.4.1 Équation de Landau-Lifshtiz . . . 27
1.1.4.2 Équation de Landau-Lifshtiz-Gilbert . . . 27
1.1.5 Excitations magnétiques . . . 28
1.1.5.1 Mode uniforme . . . 29
1.1.5.2 Ondes de spins . . . 29
1.1.6 Les Mécanismes de la relaxation de l'aimantation . . . 32
1.1.6.1 Mécanismes intrinsèques . . . 33
1.1.6.2 Mécanismes extrinsèques . . . 33
1.2 La spintronique . . . 34
1.2.1 La magnétorésistance géante (GMR) . . . 34
1.2.2 La magnétorésistance tunnel (TMR) . . . 36
1.2.3 Quelques dispositifs spintroniques . . . 37
1.2.3.1 Têtes de lectures GMR . . . 37
1.2.3.2 Mémoires MRAM . . . 39
1.3 La spinorbitronique . . . 39
1.3.1 Le couplage spin-orbite . . . 40
1.4 Effets d'interfaces dans les couches minces . . . 42
1.4.1 L'anisotropie magnétique perpendiculaire . . . 42
1.4.1.1 PMA induite par l'interface HM/FM . . . 42
1.4.1.2 PMA dans l'interface ferromagnétique/oxyde . . . 42
1.4.1.3 Applications de la PMA pour la spintronique . . . 43
1.4.2 Interaction Dzyaloshinskii-Moriya . . . 45

1.4.2.1 DMI d'interface . . . 46
1.4.2.2 Effets de l'iDMI sur les propriétés magnétiques . . . 49
1.5 Conclusion du chapitre 1 et objectifs de la thèse . . . 54

2 Techniques expérimentales et méthodologie de mesures 56
2.1 Techniques de dépôts . . . 56
2.1.1 Pulvérisation cathodique magnétron . . . 57
2.1.1.1 Principe . . . 57
2.1.2 Ablation laser pulsé (PLD) . . . 59
2.1.2.1 Principe . . . 59
2.2 Techniques de caractérisation par rayons X . . . 60
2.2.1 Diffraction des rayons X . . . 60
2.2.1.1 Principe de fonctionnement . . . 60
2.2.2 Réflectivité des rayons X . . . 61
2.2.2.1 principe de fonctionnement . . . 61
2.3 Technique de mesures statiques de l'aimantation . . . 62
2.3.1 La magnétométrie à échantillon vibrant . . . 63
2.3.1.1 Principe de fonctionnement . . . 63
2.3.2 Cycles d'hystérésis . . . 64
2.4 Techniques expérimentales de la dynamique de l'aimantation . . . 65
2.4.1 La résonance ferromagnétique . . . 67
2.4.1.1 Principe de fonctionnement . . . 67
2.4.1.2 Montage expérimental FMR du LSPM . . . 68
2.4.1.3 Méthodologie de mesure FMR . . . 72
2.4.2 La diffusion Brillouin . . . 76
2.4.2.1 Principe de la diffusion Brillouin . . . 77
2.4.2.2 Dispositif expérimental BLS du LSPM . . . 78
2.4.3 Méthodologie de mesures BLS . . . 81
2.4.4 Comparaison entre FMR et BLS . . . 84
2.5 Le pompage de spin . . . 85
2.5.1 Principe . . . 85
2.5.2 Pompage de spin et amortissement de Gilbert dans les multicouches 87
2.6 Conclusion chapitre . . . 88

3 Étude de l'anisotropie magnétique et du pompage de spin dans les systèmes $La_{2/3}Sr_{1/3}MnO_3/Pt$ 89
3.1 Introduction . . . 89
3.2 Propriétés des couches de $LSMO$ . . . 91
3.2.1 Structure cristallographique . . . 91
3.2.2 Diagramme de phase . . . 92
3.2.3 Film mince de $LSMO$ . . . 92
3.3 Préparation des échantillons . . . 94
3.4 Propriétés structurales . . . 95
3.5 Propriétés statiques . . . 96
3.6 Propriétés dynamiques . . . 97
3.6.1 Spectres FMR . . . 97
3.6.2 Le rapport gyromagnétique . . . 98
3.6.3 Anisotropie magnétique . . . 99
3.6.4 Amortissement magnétique et pompage de spin . . . 103

3.7 Conclusion chapitre . . . 107

4 Étude des phénomènes d'interface reliés au couplage spin-orbite dans les systèmes à base de Co : effet d'empilement et du recuit 108
4.1 Introduction . . . 108
4.2 Interface Pt/Co . . . 109
4.2.1 PMA . . . 110
4.2.2 Amortissement magnétique et pompage de spin . . . 110
4.2.3 iDMI . . . 110
4.3 Traitement thermique . . . 111
4.4 Anisotropie magnétique perpendiculaire et interaction iDMI dans les systèmes ultraminces X/Co/Y non-recuits et recuits . . . 111
4.4.1 Préparation des échantillons . . . 112
4.4.1.1 Choix des empilements . . . 112
4.4.1.2 Dépôt des échantillons . . . 113
4.4.2 Propriétés structurales . . . 113
4.4.3 Propriétés statiques . . . 115
4.4.4 Facteur gyromagnétique . . . 117
4.4.5 Anisotropie magnétique . . . 118
4.4.6 Interaction iDMI . . . 124
4.5 Interaction iDMI, pompage de spin et anisotropie magnétique perpendiculaire dans les multicouches à base de Pt/Co/W . . . 129
4.5.1 Préparation des échantillons . . . 129
4.5.2 Propriétés structurales . . . 130
4.5.3 Propriétés statiques . . . 132
4.5.4 Facteur gyromagnétique . . . 133
4.5.5 Anisotropie magnétique . . . 134
4.5.6 Amortissement de Gilbert . . . 135
4.5.6.1 Interaction iDMI . . . 137
4.6 Conclusion chapitre . . . 139

5 Investigation de la corrélation entre les effets d'interface liés au SOC dans les systèmes à base de CoFeB 141
5.1 Introduction . . . 141
5.2 Préparation des échantillons . . . 143
5.3 Effet de l'épaisseur de CoFeB . . . 144
5.3.1 Propriétés statiques . . . 144
5.3.2 Facteur gyromagnétique . . . 146
5.3.3 Anisotropie magnétique perpendiculaire . . . 147
5.3.4 Pompage de spin et amortissement de Gilbert . . . 148
5.3.5 Interaction iDMI . . . 150
5.4 Effet de la couche intercalaire . . . 153
5.4.1 Propriétés statiques . . . 153
5.5 Propriétés dynamiques . . . 154
5.6 Conclusion chapitre . . . 159

6 Investigation des effets SOC d'interface dans les systèmes à base de matériaux ferromagnétique/oxyde de métal 160
6.1 Introduction . . . 160
6.2 Préparation des échantillons . . . 162
6.3 Effet de l'épaisseur ferromagnétique . . . 164
6.3.1 Propriétés statiques . . . 164
6.3.2 Propriétés dynamiques . . . 165
6.3.2.1 Facteur gyromagnétique . . . 165
6.3.2.2 Anisotropie magnétique . . . 166
6.3.2.3 Amortissement de Gilbert . . . 169
6.3.2.4 Interaction iDMI . . . 171
6.4 Effets de la couche de TaO_x et de la couche intercalaire de Cu . . . 173
6.4.1 Effet du TaO_x . . . 173
6.4.2 Effet de la couche intercalaire de Cu . . . 175
6.5 Effet de la couche de PtO_x . . . 178
6.5.1 Propriétés statiques . . . 179
6.5.2 Propriétés dynamiques . . . 179
6.6 Conclusion chapitre . . . 182

Conclusions et perspectives 183

Introduction

Depuis plusieurs décennies, la recherche sur le magnétisme n'a cessé d'attirer de plus en plus l'intérêt des physiciens, en raison des applications technologiques potentielles qui y sont reliées, faisant du magnétisme une partie intégrante de notre vie. La plupart des technologies modernes reposent partiellement ou même entièrement sur les propriétés uniques des matériaux magnétiques. En passant par les plaques d'induction jusqu'à l'imagerie médicale, ces matériaux magnétiques sont bien tout aussi présents dans les télécommunications, les capteurs, les moteurs et transformateurs électriques ainsi que dans les systèmes informatiques. C'est particulièrement dans ces appareils où les mémoires, éléments de base de leur fonctionnement, sont au cœurs des dernières plus grandes avancés en magnétisme. En effet, les besoins en densité de stockage d'information ont fortement augmenté depuis un peu plus de 60 ans marquant l'apparition des premiers disques durs. De ce fait, pour l'industrie informatique l'enjeu est de taille, puisqu'il s'agit de produire des mémoires de grandes densités de stockage par la miniaturisation des bits d'information et d'augmenter les vitesses de lecture et d'écriture, avec une optimisation continue de la consommation d'énergie électrique.

Dans cette course continue vers l'augmentation de la densité de stockage, la diminution de la taille des domaines (bits d'information) est alors indispensable, or on se heurte rapidement aux difficultés reliées à cette miniaturisation. En effet, dans un disque dur, la diminution des tailles des domaines a pour effet de produire de faibles champs magnétiques, dont la détection de l'information conduira à la réduction de la distance entre la tête de lecture et les disques et par conséquent risquer de détruire les disques en plantant la tête par dessus. De plus, la réduction des tailles de ces domaines réduit fortement leur stabilité thermique, s'exposant ainsi à la perte des informations stockées dans les bits.

Dans ce contexte et avec les progrès réalisés dans la compréhension des phénomènes quantiques, les recherches dans le domaine se sont orientées vers l'exploitation en plus de la charge de l'électron, une propriété purement quantique de celui-ci qui est *"le spin électronique"*, afin de répondre aux besoins perpétuels de l'augmentation de la densité de stockage et de l'accès rapide à l'information. Cette nouvelle discipline *"la spintronique"*, est l'un des domaines les plus effervescent actuellement dans la recherche en magnétisme en raison de nombreuses technologies très prometteuses qui y sont associées, notamment dans l'enregistrement magnétique et le stockage d'information et afin de contourner les limites actuelles qui apparaissent dans l'électronique basée uniquement sur la charge. La découverte indépendamment de la magnétorésistance géante **(giant magnetoresistance, GMR)** par Albert Fert en France [1] et Peter Grünberg en Allemagne [2] a marqué l'acte de naissance de la spintronique en fin des années 1980. Ainsi, les premiers disques

durs utilisant cette propriété furent commercialisés par IBM en fin des années 1990, illustrant rarement un transfert aussi rapide de technologie de la recherche fondamentale à la production de masse. L'effet GMR intégrée dans les têtes de lecture de disques durs a fortement augmenté la densité d'enregistrement des informations sur disques durs. Cette découverte ne fut certainement pas un hasard puisque depuis le début des années 1960, les théories sur le déplacement d'un courant de spin dans les matériaux magnétiques commencent à jaillir. C'est aux cours des décennies suivantes et grâce au développement des nanotechnologies, en particulier la maîtrise des dépôts métalliques et des techniques de vide qui ont permis de fabriquer des empilements de couches propres et bien définies de matériaux de seulement quelques dizaines de nanomètres d'épaisseur, apportant alors l'élan nécessaire à l'exploitation du spin des électrons, dans le transport et le stockage de l'information.

La miniaturisation vers l'échelle manométrique et la possibilité de fabriquer des structures de plus en plus complexes sont à l'origine de nouveaux concepts qui se sont enchainées successivement dans le domaine de la spintronique lui permettant de se développer dans de multiples directions. L'une de ces directions est l'étude des effets liés au couplage spin-orbite (spin orbit coupling, SOC). Cette interaction qui lie le spin de l'électron à son mouvement orbital autour du noyau a déclenché une variété de nouveaux phénomènes et elle est à l'origine de toute une nouvelle branche de la spintronique. En effet, les développements récents des techniques de croissance et l'augmentation dans les capacités des calculs ab initio ont permis la synthèse d'hétérostructures ultra minces, telle que le système à base de matériau ferromagnétique (FM)/métal lourd (heavy metal, HM) ainsi que la prédiction de leurs propriétés électroniques et magnétiques. L'interaction SOC, combinée aux effets de surface et d'interface, liés à la brisure de la symétrie d'inversion spatiale, a engendré des phénomènes fondamentalement nouveaux, tels que l'anisotropie magnétique perpendiculaire (perpendicular magnetic anisotropy, PMA), l'effet Hall de spin [3] et l'interaction de Dzyalonshinskii-Moriya d'interface (interfacial Dzyaloshinskii Moriya interaction, iDMI) [4, 5]. Ce qui pourrait améliorer considérablement les performances des dispositifs spintronique grâce à une modulation appropriée de ce type d'interface.

Parmi les nombreux sujets de recherche de la spintronique, les phénomènes d'anisotropie magnétique et la relaxation de l'aimantation sont probablement les plus importants, puisque la première détermine l'orientation spatiale de l'aimantation et le second, mécanisme d'amortissement de l'aimantation, contrôle la rapidité avec laquelle l'information est écrite. De plus, l'anisotropie magnétique perpendiculaire d'interface est l'un des ingrédients les plus importants des matériaux magnétiques nécessaires à l'obtention de films avec une aimantation spontanée perpendiculaire, utilisés dans l'enregistrement magnétique sur disques durs en raison de leur forte stabilité thermique. Le contrôle de ces phénomènes ouvre la possibilité d'adapter artificiellement le comportement magnétique statique et dynamique pour des utilisations directes dans des dispositifs d'électronique de spin.

Enfin, la combinaison entre une forte interaction spin-orbite et la brisure de symétrie à l'interface entre une couche ultra mince de matériau ferromagnétique et métal lourd, pourrait engendrer des structures singulières appelées *textures chirales de spin.* tels que *les skyrmions*. Ces derniers sont des structures magnétiques de tailles manométriques où les spins sont enroulées en forme de vortex et qui sont engendrées et stabilisées en présence d'une interaction d'échange antisymétrique appelée interaction de Dzyaloshinskii-Moriya

d'interface. Cette interaction modifie ainsi les propriétés statiques et dynamiques de certaines configurations magnétiques et elle est également responsable de la non réciprocité de la propagation des ondes de spin. Ces skyrmions sont des candidats potentiels à la succession des domaines magnétiques dans le stockage de l'information et sont très prometteurs pour la technologie d'enregistrement magnétique très rapide à ultra-haute densité en raison de leurs propriétés uniques, telles que la propagation sous l'application de très faibles densités de courant et la réécriture par des courants polarisés en spin. La présence de brisure de symétrie aux interfaces, qui résulte automatiquement de la structure en multicouches de systèmes utilisant des films de materiaux FM et HM, constitue ainsi l'ingrédient de base de l'amortissement, de la PMA et de l'iDMI et du développement de nouveaux dispositifs exploitant ces effets.

L'objectif de cette thèse s'inscrit alors dans l'investigation approfondie des phénomènes existant aux niveau des interfaces FM/HM en particulier la PMA, l'iDMI et l'amortissement magnétique, ainsi que de leur corrélation. Sachant que ces phénomènes sont fortement dépendent entre autres des matériaux déposés et de leurs épaisseurs, de la qualité des interfaces FM/HM, ainsi que de la température, il est alors nécessaire de les étudier en fonction des épaisseurs des matériaux FM et/ou HM ainsi que du recuit.

Ce manuscrit se compose de 6 chapitres :

— Le chapitre 1 reprendra touts les aspects théoriques de base dans le magnétisme nécessaires pour la compréhension des travaux réalisées au cours de la thèse et présentés dans ce manuscrit. Sans être exhaustive, le couplage spin orbite, la dynamique de l'aimantation et les mécanismes d'amortissement en plus des effets liés au SOC seront ainsi abordés.

— Le chapitre 2 détaillera toutes les techniques expérimentales (de dépôt, de caractérisation structurale et magnétique). Une attention particulière est donnée pour la description détaillée des bancs de mesures de résonance ferromagnétique et de spectroscopie Brillouin disponibles au LSPM et à la méthodologie adoptée pour l'analyse des mesures effectuées.

— Le chapitre 3 présentera l'étude expérimentale des anisotropies magnétiques perpendiculaire et dans le plan des échantillons, ainsi que l'amortissement magnétique induit par pompage de spin par le bais de la résonance ferromagnétique, dans les films minces à base de $LSMO/Pt$.

— Les chapitres 4 et 5 présenterons l'étude de la PMA, de l'amortissement et de l'iDMI dans les structures en films minces à base de Co et $CoFeB$ dans les systèmes FM/matériau non magnétique. Différentes combinaisons de tricouche sont déposées, où le film ferromagnétique est en sandwich entre deux couches minces de matériaux non magnétiques. Des échantillons déposés en multicouches seront également étudiés. Les phénomènes de PMA, d'iDMI et d'amortissement seront étudiés en fonctions de la variation des épaisseurs des matériaux magnétiques et ou/non magnétiques, du nombre de répétitions en multicouhes, ainsi que du recuit. Une corrélation entre ces trois phénomènes est également mise en évidence pour certains systèmes.

— Enfin, le chapitre 6 sera entièrement consacré à l'étude des 3 effets d'interfaces cités précédemment en fonction de la variation des épaisseurs des couches minces des matériaux ferromagnétiques ($CoFeB$ ou Co)/oxyde de métal (TaO_x et PtO_x) recuits. Une attention particulière sera donnée à l'iDMI.

Une conclusion générale reprenant les résultats les plus intéressants en plus de quelques perspectives termineront ce manuscrit.

Chapitre 1

Généralités sur le magnétisme, notions de base et magnétisme interfacial

Ce premier chapitre est dédié à la présentation des notions de base du magnétisme nécessaires à la compréhension du reste du manuscrit. Un bref historique détaillera les découvertes qui sont considérées comme majeures dans le développement de ce domaine. L'origine du magnétisme dans la matière, les différents ordres magnétiques, les énergies magnétiques en compétition dans un film mince ferromagnétique sont aussi introduits. Nous détaillerons ensuite la dynamique rapide de l'aimantation ainsi que le couplage spin-orbite. On finira par introduire les phénomènes magnétiques étudiés principalement au cours de cette thèse, à savoir l'anisotropie magnétique perpendiculaire (PMA) et l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya d'interface(iDMI).

1.1 Concepts du magnétisme

1.1.1 Histoire du magnétisme

Depuis la nuit des temps, le magnétisme n'a cessé de fasciner les esprits. La capacité de la pierre d'aimant à attirer le fer fut longtemps considérée comme un miracle de la nature. Les chinois sont les premiers à avoir exploité cette propriété en inventant l'ancêtre de la boussole "la cuillère de magnétite". Jusqu'au XIVe siècle, et mise à part l'utilisation de la boussole autant qu'instrument de navigation, peu de recherches scientifiques ou de découvertes sont attribuées au magnétisme. C'est à partir du XVIe siècle que le magnétisme fut entièrement étudié par le philosophe allemand William Gilbert, considéré comme le pionnier du magnétisme moderne. Il décrit alors la terre comme un gigantesque aimant, et détaille l'influence de la chaleur sur le magnétisme du fer.

Le développement du magnétisme a connu un tournant historique au début du XIXe siècle lorsque en 1820 le physicien Hans Christian Orsted a démontré dans une expérience devant ses élèves qu'un fil transportant du courant, était capable de faire bouger l'aiguille aimantée d'une boussole, sans pouvoir pour autant expliquer ce phénomène. Au cours de la même année et grâce à cette expérience, Marie-André Ampère confirme la relation entre l'électricité et le magnétisme, marquant alors le début de l'ère de l'électromagnétisme. Les

découvertes et les inventions se sont alors succédées, et plusieurs noms de grands physiciens y se sont associés. Les théories sur l'induction électromagnétique, la description de la magnétostatique, ainsi que des ordres magnétiques et de leur relation avec la température [1] furent bien établies. Plus tard, James Clerk Maxwell rassemble les travaux sur le magnétisme et sur l'électricité en un ensemble de quatre équations portant son nom décrivant alors le comportement du champ électromagnétique et de son interaction avec la matière.

Depuis le début du siècle dernier et avec l'avènement de la mécanique quantique, la compréhension du magnétisme et des phénomènes qui en découlent connaissent un progrès fulgurant, aboutissant à de nombreuses inventions utilisées de nos jours. En 1907, Weiss propose une théorie du magnétisme basée sur un champ moléculaire interne dans la matière magnétique. Il reprend les concepts de Langevin dans les matériaux ferromagnétiques, en supposant qu'ils sont formés de plusieurs régions ou des petits aimants orientés dans le même sens ce qu'on appellera plus tard *"les domaines de Weiss"*. Les travaux de Weiss sont alors considérés comme le point de départ menant aux disciplines modernes sur les notions des domaines magnétiques et des structures de spin. Dans les années qui suivent, Landau, Lifshitz et Bloch ont développé successivement la théorie des domaines magnétiques. En 1931, Werner Heisenberg a introduit la théorie du magnétisme telle que nous connaissons aujourd'hui, s'agissant du mouvement des électrons et de leurs interactions dans les atomes. [2] L'aboutissement de toutes ces recherches et expérimentations a permis enfin en 1940 à W.F.Brown [6], d'établir alors les bases de la théorie du micromagnétisme.

La suite du XXe siècle est principalement marquée par les considérables avancements technologiques en relation avec le magnétisme. Au fil des années, l'amélioration de la densité de stockage magnétique n'a cessé d'augmenter, tout en produisant des dispositifs de plus en plus miniatures avec d'importantes capacités de transfère des données. Les recherches les plus récentes se basent sur l'utilisation des skyrmions de spins pour le stockage des bits d'information en raison de leurs dimensions nanométriques comparées aux domaines magnétiques.

Le magnétisme est appelé à jouer un rôle déterminant dans le domaine des nanotechnologies

1.1.2 Ordre magnétique

Dans les matériaux magnétiques, chaque atome contribue aux propriétés magnétiques totales observées. Cette contribution vient principalement du mouvement des électrons par rapport au noyau où la trajectoire de l'électron est assimilée à une boucle de courant induisant un moment magnétique orbital $\vec{\mu_l}$. De plus, l'électron possède également un moment magnétique intrinsèque de spin $\vec{\mu_S}$. Ainsi dans cette configuration, ces moments magnétiques sont associés au moment cinétique orbital $\vec{l}$ et au moment cinétique de spin $\vec{s}$ respectivement où (voir figure 1.1) :

1. Connue sous la loi de curie, la susceptibilité magnétique est inversement proportionnelle à la température du matériau. Il est possible alors de distinguer le ferromagnétisme, du diamagnétisme et du paramagnétisme

2. Appelé électrodynamique quantique dont une partie fut initiée par Heisenberg entre autres (Pauli, Dirac, et Fermi).

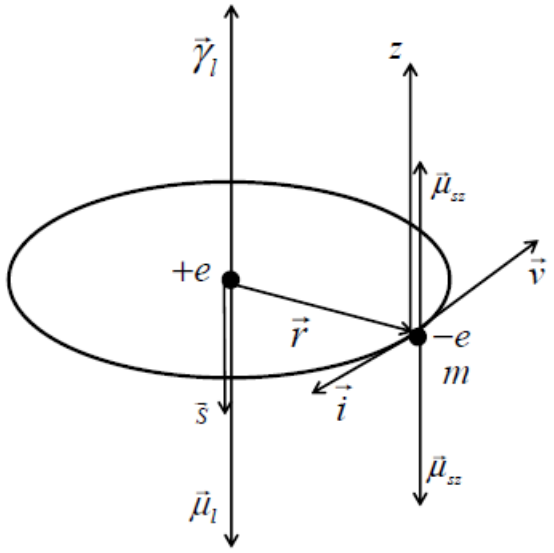

FIGURE 1.1 – Moments magnétiques orbital et de spin pour l'électron dans le modèle de l'atome de Bohr [7].

- $\vec{\mu_l} = -\frac{\mu_B}{\hbar}\vec{l}$, où μ_B est le magnétron de Bohr.
- $\vec{\mu_s} = -\mathrm{g}\frac{\mu_B}{\hbar}\vec{s}$, où g est le facteur de Landé, $g \approx 2.002$ pour l'électron.

Dans le cas du couplage spin-orbite (plus détaillé dans la section 1.3.1), le moment cinétique total $\vec{T} = \vec{L} + \vec{S}$ est alors perçu comme la somme des moments totaux orbitaux ($\vec{L} = \sum_i \vec{l_i}$) et de spin ($\vec{S} = \sum_i \vec{s_i}$) et est relié au moment magnétique totale par :

$$\vec{\mu_T} = -g\frac{\mu_B}{\hbar}\vec{T}, \qquad g = \frac{3}{2} + \frac{S(S+1) - L(L+1)}{2T(T+1)} \tag{1.1}$$

Finalement, l'aimantation totale du matériau (à l'échelle macroscopique) est alors définie en fonction de la densité volumique de ces moments magnétiques totaux par :

$$\vec{M} = \frac{\sum_T \vec{\mu_T}}{V} \tag{1.2}$$

Cette grandeur est exprimée en A/m. Si le matériau est soumis à un champ magnétique externe $\vec{H}$, les moments magnétiques vont interagir avec lui et l'aimantation totale dépendra de ce champ et de la température du matériau (agitation thermique). On définit alors la susceptibilité magnétique χ comme la capacité d'un matériau à s'aimanter en présence d'une excitation magnétique externe (grandeur sans unité) [8] :

$$\chi_m = \frac{M}{H} \tag{1.3}$$

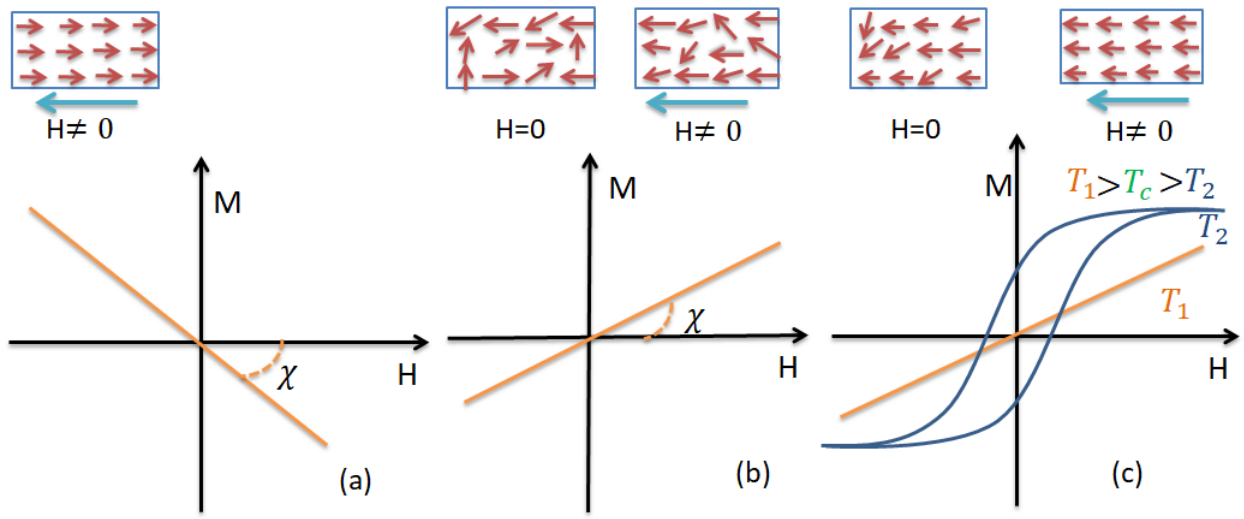

FIGURE 1.2 – Représentation schématique de l'aimantation et des courbes de M(H) pour un matériau soumis à un champ magnétique externe, (a) diamagnétique, (b) paramagnétique, (c) ferromagnétique.

Suivant la valeur de cette susceptibilité, on définira alors les matériaux :

— Diamagnétiques : la susceptibilité χ est très faible et négative, autour de 10^{-5} et est indépendante de la température [8]. Elle est déterminée à partir de la pente de la courbe M(H) [3](figure 1.2). Ces matériaux ont tendance à générer, en présence d'un champ magnétique externe, un champ magnétique opposé au premier. Si le champ n'est plus appliqué l'aimantation est perdue. L'origine de ce phénomène est quantique et est attribué à la modification du mouvement orbital des électrons autours du noyau atomique [8].

— Paramagnétiques : la susceptibilité χ est positive, autour de 10^{-3} à 10^{-5} [8]. En l'absence de champ magnétique externe, chaque atome possède un moment magnétique mais qui ne sont toutefois pas tous orientés dans le même sens. En appliquant un champ magnétique externe, les moments magnétiques s'orientent parallèlement, mais l'aimantation globale dépend fortement de l'agitation thermique. En effet d'après la loi de Curie, la susceptibilité magnétique est aussi inversement proportionnelle à la température du milieu, l'aimantation est alors d'autant plus faible que la température est élevée [8] :

$$\chi_m = \frac{C}{T} \tag{1.4}$$

où C est la constante de Curie et T la température de mesure.

— Ferromagnétiques : Dans cette configuration les atomes possèdent chacun un moment magnétique et interagissent entre proches voisins par l'interaction d'échange. Ceci permet d'atteindre un ordre local (alignement des moments magnétiques) en

3. pour les matériaux diamagnétiques et paramagnétiques la réponse de l'aimantation est linéaire en fonction du champs appliqué.

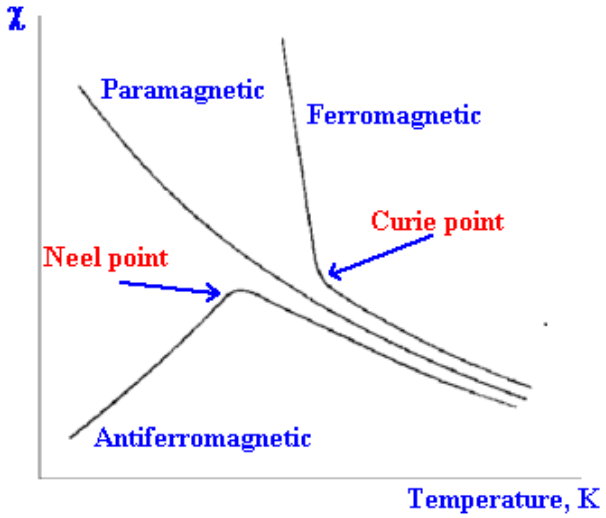

FIGURE 1.3 – [9] Variation de la susceptibilité magnétique en fonction de la température, pour les matériaux ferromagnétiques, paramagnétiques, et antiferromagnétiques.

absence de champ magnétique externe. Les matériaux ferromagnétiques ont alors une forte susceptibilité magnétique pouvant atteindre 10^4 [8] et une aimantation totale alignée dans le sens du champ magnétique externe appliqué.

L'aimantation est toutefois dépendante de la température. En effet, selon la loi de Curie-Weiss, en dessous de T_C l'aimantation spontanée apparait et le matériau est ferromagnétique (figure 1.3) [4]. Pour des températures supérieures à la température de Curie, l'agitation thermique l'emporte et le matériau devient paramagnétique (température T_1 sur la figure 1.2) [8] :

$$\chi_m = \frac{C}{T - T_C} \tag{1.5}$$

En appliquant un champ magnétique externe, la réponse du matériau est non linéaire (température T_2 sur la figure 1.2), caractéristique de l'ordre ferromagnétique (expliqué en détail dans le chapitre suivant).

Il existe également d'autres ordres magnétiques spontanés en plus du ferromagnétisme, tels que l'antiferromagnétisme et le ferrimagnétisme. Pour l'antiferromagnétisme, il s'agit d'un état où les moments magnétiques sont alignés antiparallèlement engendrant une aimantation globale nulle. La susceptibilité magnétique est aussi dépendante de l'agitation thermique, dans ce cas, il s'agit de la température de Néel [5] (T_N) au-dessus de laquelle le matériau devient paramagnétique (figure 1.3). Dans les matériaux ferrimagnétiques, les moments magnétiques sont également alignés antiparallèlement mais d'amplitude différente, résultant à une faible aimantation spontanée globale.

4. Le Cobalt (Co), le fer(Fe), et le nickel (Ni) ainsi que leurs alliages sont connus pour avoir une grande température de Curie.

5. Louis Neel : prix nobel de physique en 1970, attribué en raison de ses nombreux travaux en magnétisme, parmi lesquels l'explication des phénomènes antiferromatiques et ferrimagnétiques observés dans certains matériaux magnétiques à structures complexes.

Tous ces ordres magnétiques font des matériaux magnétiques des candidats potentiels pour différentes applications technologiques, en fonction de leurs propriétés, particulièrement pour le stockage de l'information.

1.1.3 Énergies magnétiques dans une couche mince ferromagnétique

Dans cette partie, nous allons décrire les différents termes qui contribuent à l'énergie totale d'un film mince ferromagnétique (exprimés sous forme de densité d'énergie). Nous commencerons par décrire la réponse du matériau à l'application d'un champ magnétique externe (énergie de Zeeman), nous parlerons aussi des différents types d'énergie d'échange (directe et indirecte) et de l'énergie démagnétisante (énergie dipolaire) puis nous finirons par présenter les divers termes contribuant à l'énergie d'anisotropie magnétique :

$$E_{totale} = E_{Zeeman} + E_{échange} + E_{dipolaire} + E_{anisotropie} \tag{1.6}$$

1.1.3.1 Énergie de Zeeman

Lorsqu'on applique un champ magnétique externe $\vec{H}$ à une couche ferromagnétique mince d'aimantation globale $\vec{M}$, celle-ci interagit avec le champ appliqué, donnant lieu à l'interaction de Zeeman. L'aimantation globale a tendance alors à suivre la direction du champ magnétique appliqué. L'expression de la densité d'énergie est donnée par l'équation 1.7 :

$$E_{Zeeman} = -\vec{M}.\vec{H} \tag{1.7}$$

Dans cette expression, on considère que le champ magnétique appliqué $\vec{H}$ est uniforme.

1.1.3.2 Énergie d'échange

Comme cela a été présenté dans la section précédente (1.1.2), les matériaux ferromagnétiques possèdent une aimantation spontanée non nulle en absence de champ magnétique externe. Cette configuration est le résultat directe de l'énergie d'échange entre spins et est responsable alors de l'alignement parallèle ou anti-parallèle de ceux-ci donnant lieu à un matériau ferromagnétique ou antiferromagnétique, respectivement. L'échange peut être de plusieurs types :

- L'échange direct symétrique : c'est une interaction d'origine purement quantique à courte portée. Son effet repose sur l'interaction coulombienne à courte portée (premiers proches voisins) et sur le principe de Pauli qui stipule qu'un système formé de fermions doit avoir une fonction d'onde antisymétrique. Dans notre cas, il s'agit de la répulsion coulombienne entre électrons et de leurs états de spin *"up"* ou *"down"*. Ainsi pour un système à plusieurs électrons, cette interaction est définie par :

$$\vec{H}_{échange} = -\sum_{ij} J_{ij}\vec{S}_i\vec{S}_j \tag{1.8}$$

  Avec J_{ij} l'intégrale d'échange. Si $J_{ij} < 0$, l'interaction favorise l'alignement anti-parallèles des spins voisins (matériau antiferromagnétique), et si $J_{ij} > 0$ l'énergie est minimale pour un alignement parallèle (matériau ferromagnétique). Sachant que c'est une interaction à courte portée, l'intégrale d'échange dépend fortement de la distance interatomique (recouvrement des orbitales).

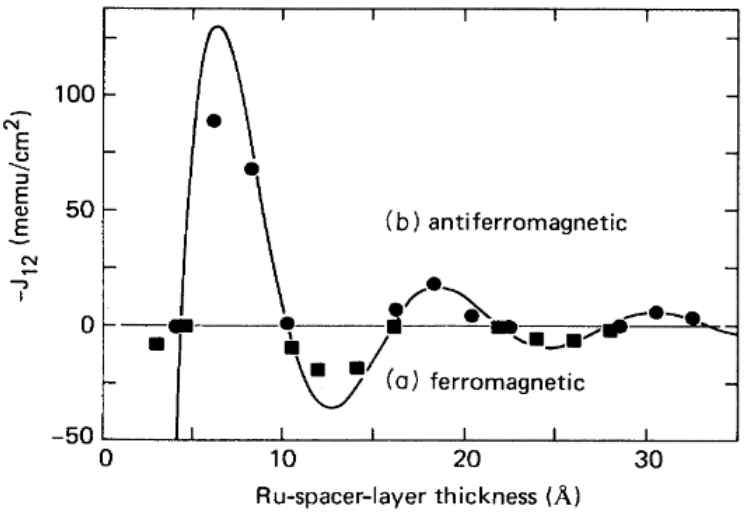

FIGURE 1.4 – [18] Intensité de l'interaction d'échange du couplage RKKY dans la structure à base de NiCo/Ru/NiCo. Pour J_{12} positif, le couplage est (a) ferromagnétique, tandis que pour J_{12} négatif le couplage est (b) antiferromagnétique.

- Le superéchange : dans cette interaction deux cations interagissent entre eux à travers un anion non magnétique (généralement de l'oxygène). Le couplage peut être soit ferro- ou antiferromagnétique. Les règles dites Anderson-Goodenough-Kanamori [6] permettent de déterminer lequel des deux types de couplage est présent. Modèle initialement proposé par Kramers en 1934, Anderson améliore celui-ci en 1950 [10], puis un ensemble de règles semi-empiriques ont été développées par Goodenough [11, 12] et Kanamori [13], dans les années 50.

- L'échange indirect (RKKY) : ce type d'interaction intervient à plus grande échelle par rapport à l'échange direct (peu ou pas de recouvrement des orbitales). C'est une interaction d'échange indirecte entre les moments magnétiques par le biais d'électrons de conduction. Du nom de Ruderman-Kittel [14]-Kasuya [15]-Yosida [16](RKKY), ce phénomène a été utilisé pour expliquer le couplage ferromagnétique, antiferromagnétrique d'une multicouche formée de deux couches minces ferromagnétiques (FM) séparées par un métal non magnétique (NM), FM/NM/FM.

  Dans un matériau non magnétique, les électrons de conduction sont polarisés en spin au voisinage d'une impureté magnétique. Cette polarisation et par conséquent le couplage aux impuretés magnétiques voisines, décroit de manière oscillatoire à mesure que l'on s'éloigne de l'impureté magnétique (avec l'épaisseur de ce matériau non magnétique) avec une période de $2k_f$, k_f est le vecteur d'onde des électrons de conduction au niveau de Fermi [17].

6. Ces règles sont basées sur les nombres d'électrons qui occupent les orbitales atomiques en recouvrement et sur le modèle localisé de la théorie de la liaison de valence.

En considérant des multicouches $FM_1/NM/FM_2$, les électrons de conduction de la couche NM sont polarisés au contact des couches magnétiques et les directions d'aimantation des couches ferromagnétiques sont alors couplées entre elles par l'intermédiaire de ces électrons selon l'épaisseur de la couche non magnétique. Le couplage est déterminé selon l'expression :

$$J_{ij} = \frac{J_0}{d_{NM}^2} \sin^2(2k_f d_{NM} + \phi) \tag{1.9}$$

où J_0 représente l'amplitude, d_{NM} est l'épaisseur de la couche non magnétique et ϕ le déphasage. Le couplage est alors ferromagnétique dans le cas ou la polarisation est la même pour les deux interfaces FM_1/NM et NM/FM_2, sinon le couplage est antiferromagnétique dans le cas de polarisation opposée (voir figure1.4).

Un autre type d'échange existe également dans le cas de films minces magnétiques, cet échange de type antisymétrique dépend du produit vectoriel entre spins contrairement à l'échange symétrique direct et sera présenté dans la suite de ce chapitre (voir 1.4.2).

1.1.3.3 Énergie dipolaire ou de démagnétisation

L'énergie dipolaire ou démagnétisante est l'énergie qui résulte de l'interaction entre les moments magnétiques. Contrairement à l'interaction d'échange, l'interaction dipolaire est à très longue portée. Elle est proportionnelle au cube de la distance inter-atomique. Elle trouve son origine dans chaque moment magnétique du système qui ressent un champ démagnétisant $\vec{H}_{dém}$ induit par tous le reste des autres moments magnétiques. Ce champ démagnétisant s'oppose localement à l'aimantation et peut être associé à l'aimantation $\vec{M}$ par l'expression de l'énergie démagnétisante (sous forme d'énergie de type Zeeman) :

$$E_{démagntisant} = -\frac{1}{2}\vec{M}.\vec{H}_{dém} \tag{1.10}$$

En général, le champ démagnétisant est difficile à calculer, il est exprimé en fonction de tenseur de coefficients démagnétisants $\hat{N}$ qui dépend de la forme de l'échantillon ; on parle alors d'anisotropie de forme équivalente à l'interaction dipolaire :

$$\vec{H}_{dém} = -4\pi\hat{N}.\hat{M} \tag{1.11}$$

Dans le cas d'un échantillon de forme ellipsoïde uniformément aimanté, le tenseur s'écrit :

$$\hat{N} = \begin{bmatrix} N_x & 0 & 0 \\ 0 & N_y & 0 \\ 0 & 0 & N_z \end{bmatrix} \tag{1.12}$$

avec la somme des coefficients est toujours égale à $N_x + N_y + N_z = 1$.

L'énergie est alors égale à :

$$E_{démagntisant} = 2\pi M_s^2(N_x m_x^2 + N_y m_y^2 + N_z m_z^2) \tag{1.13}$$

Avec m_x,m_y, m_z les composantes normalisées de l'aimantation.

Dans le cas d'une couche mince, l'épaisseur du film est très inférieure aux dimensions dans le plan de l'échantillon, et le champ démagnétisant induit des charges magnétiques sur la surface du film devenant très grand. Pour diminuer le champ démagnétisant, l'anisotropie de forme favorisera l'alignement de l'aimantation dans le plan de la surface.

Dans ce cas $N_x = N_y = 0$ et $N_z = 1$, l'énergie dipolaire s'écrit :

$$E_{démagntisant} = 2\pi M_z^2 \tag{1.14}$$

Avec $\vec{H}_{dém}$ est perpendiculaire au plan de l'échantillon.

1.1.3.4 Énergie d'anisotropie

Dans les matériaux ferromagnétiques, l'aimantation a tendance à s'orienter suivant une direction préférentielle appelée *direction facile d'aimantation* donnant lieu alors à l'existence d'une anisotropie magnétique. Il existe plusieurs types d'anisotropie magnétique selon leurs origines : magnétocristalline, magnétostrictive, de forme, de surface...etc

Dans la suite de cette partie nous allons principalement détailler l'anisotropie magnétocristalline et de surface en raison de leur principale contribution à l'anisotropie magnétique étudiée au cours de cette thèse.

- Anisotropie magntocristalline :

  Cette anisotropie est le résultat directe de la structure cristalline. En effet, elle trouve son origine du couplage spin-orbite pour lequel le spin des électrons ainsi que leurs moments orbitaux sont liés au réseau cristallin du solide. Les moments magnétiques ne sont donc pas libres de s'orienter dans le réseau cristallin et suivront uniquement certains axes cristallographiques qui ont tendance à minimiser l'interaction spin-orbite. L'aimantation du matériau aura alors des directions préférentielles (axes faciles d'aimantation).

  L'expression de l'anisotropie magntocristalline dépend alors de la symétrie du réseau cristallin, avec des cas de symétrie cubique [19], de symétrie quadratique et hexagonale [8]...etc. Dans le cas le plus simple, pour un seul axe de symétrie, l'anisotropie magnétocristalline est uniaxiale et s'écrit :

  $$E_{ani} = -\frac{K_u}{M_s^2}(\vec{M}.\vec{u})^2 \tag{1.15}$$

  où K_u est la constante d'anisotropie uniaxiale et $\vec{u}$ est le vecteur unitaire définissant l'axe facile d'aimantation. Si le signe de la constante est positive alors l'énergie est minimale quand l'aimantation est dirigée selon l'axe facile d'aimantation, sinon dans le cas contraire (constante négative), l'aimantation se trouve alors dans la direction perpendiculaire à l'axe de facile aimantation.

Nous allons, dans ce qui suit, décrire l'anisotropie magnétique pour les couches minces magnétiques.

- Anisotropie de surface :

  Dans le cas des films minces ferromagnétiques, où les dimensions latérales sont nettement supérieures à l'épaisseur du film, les interactions des atomes au niveau de la surface ne sont plus négligeables, d'où la nécessité d'ajouter leur contribution

dans l'anisotropie magnétique totale. Ainsi pour un film mince ferromagnétique, l'énergie d'anisotropie peut s'écrire :

$$E_{MA} = K_{eff} \sin^2 \theta \tag{1.16}$$

où θ est l'angle entre l'aimantation et la normale au plan du film. Le terme en K_{eff} rassemble ainsi les constantes d'anisotropie volumique K_v (exprimée en J/m^3), et d'interface (de surface) K_s (exprimée en J/m^2) :

$$K_{eff} = K_v + \frac{K_s}{d} \tag{1.17}$$

où d est l'épaisseur des films minces. Le terme du volume K_v contient parfois les contributions de l'anisotropie de forme ainsi que celles de l'anisotropie magnétocristalline.

Dans ses films minces où le terme en K_s est important (compense l'anisotropie de forme), la direction de l'aimantation perpendiculaire au plan de la couche est alors favorisée et on parlera d'anisotropie perpendiculaire (PMA : perpendiculaire magnetic anisotropy)(voir figure 1.5). La PMA sera détaillée dans la suite de ce chapitre (voir section 1.4.1). A noter qu'elle fut prédite par Neel en 1954 [20], dont la première mise en évidence fut observée sur des films de NiFe/Cu(111) en 1968 [21] .

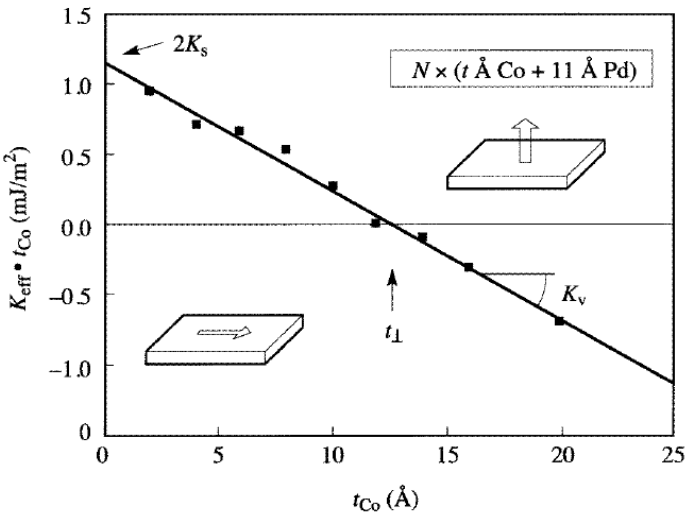

FIGURE 1.5 – [22, 23] Dépendance de l'anisotropie magnétique en fonction des épaisseurs des couches de Co pour les structures en Co/Pd. La pente donne la contribution volumique K_v tandis que l'intersection avec l'axe vertical est égale à $2K_s$. La direction de l'aimantation est perpendiculaire au plan de l'échantillon à partir d'une épaisseur critique de $Co \preceq 12$Å. A noter que habituellement l'intersection avec l'axe vertical donne K_s, mais puisque c'est une structure en multicouche les deux interfaces avec le Co sont les mêmes d'où le facteur 2.

- Anisotropie magnéto-élastique :

  Afin de décrire entièrement l'anisotropie dans un système magnétique, une contribution magnéto-élastique peut être rajoutée dans le cas par exemple où le film mince magnétique est soumis à une déformation mécanique [24]. Il s'agit d'un couplage entre les propriétés mécaniques et magnétiques qui a pour conséquence d'altérer les distances entre les atomes (et leurs interactions) et ainsi d'influer sur la direction d'aimantation rendant cette anisotropie non négligeable. L'énergie d'anisotropie magnéto-élastique pour un matériau soumis à une contrainte σ et s'exerçant suivant une direction faisant un angle φ avec la direction de l'aimantation s'écrit [7] :

$$E_{me} = -\frac{3}{2}\lambda\sigma\cos^2\varphi \tag{1.18}$$

  où λ est le coefficient de magnétostriction du film.

1.1.4 La dynamique de l'aimantation

Dans la partie qui suit, nous allons étudier les equations qui décrivent la dynamique de l'aimantation dans les couches minces ferromagnétiques .

1.1.4.1 Équation de Landau-Lifshtiz

Dans un souci de décrire l'évolution spatio-temporelle de l'aimantation des matériaux ferromagnétiques sous l'effet d'un champ magnétique effectif $\vec{H}_{eff}$, les physiciens Lev Landau et Evgueni Lifshitz ont proposé initialement en 1935 un modèle représenté par l'équation [25] :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma\vec{M}\times\vec{H}_{eff} \tag{1.19}$$

où $\gamma = g\frac{e}{2m_e}$ est le rapport gyromagnétique, g est le facteur de Landé, e et m_e sont la charge et la masse de l'électron, respectivement. Dans cette expression, le champ effectif $\vec{H}_{eff}$ comprend les champs magnétique appliqué $\vec{H}$, d'anisotropie, démagnétisant et d'échange. Dans l'approximation macrospin, ce champ effectif est relié à la densité d'énergie totale E du système par la relation :

$$\vec{H}_{eff} = -\frac{\partial E}{\partial\vec{M}} \tag{1.20}$$

L'équation (1.19) décrit alors le mouvement de précession de l'aimantation sans dissipation d'énergie autours de la direction du champ effectif avec une fréquence de $\frac{\gamma H_{eff}}{2\pi}$. Ce mouvement sera alors permanent comme le montre la figure 1.6(a). A noter que cette équation est valable seulement si l'aimantation est uniforme.

1.1.4.2 Équation de Landau-Lifshtiz-Gilbert

En réalité l'énergie est dissipée, le mouvement de l'aimantation est amorti et $\vec{M}$ fini par s'aligner avec le champ $\vec{H}_{eff}$ (figure 1.6 (b)). La dissipation accompagnant ce mouvement fut ensuite introduite par Gilbert en utilisant une approche lagrangienne [26] et en supposant que l'amortissement est proportionnel à la dérivée temporelle de l'aimantation.

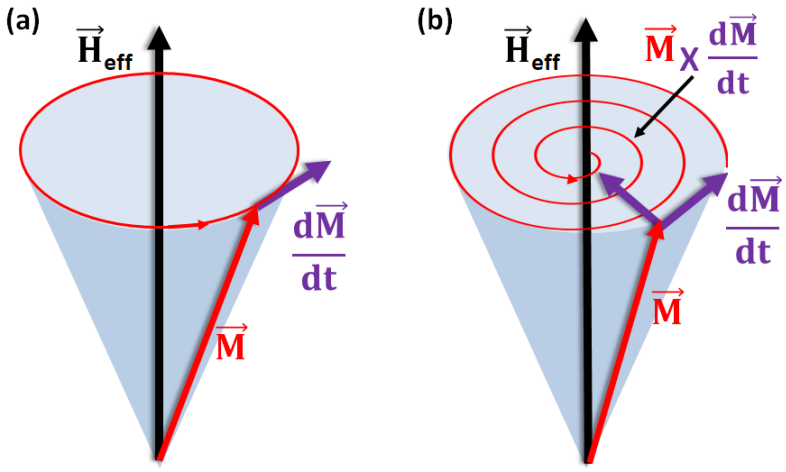

FIGURE 1.6 – Illustration de l'équation LLG, (a) mouvement processionnel de $\vec{M}$ sans dissipation d'énergie, (b) mouvement en spirale traduisant la relaxation de l'aimantation, alignant $\vec{M}$ dans la direction de $\vec{H}_{eff}$.

Un terme supplémentaire est alors ajouté dans l'équation 1.19 en définissant α comme "la constante d'amortissement de Gilbert" [26] :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma\vec{M} \times \vec{H}_{eff} + \frac{\alpha}{M_s}\vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt} \tag{1.21}$$

Cette nouvelle équation est appelée équation de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) et elle est le plus souvent utilisée afin de modéliser le mouvement processionnel amorti de l'aimantation autour d'un champ effectif (voir figure 1.6(b)). C'est une équation différentielle non linéaire de second ordre qui est généralement résolue numériquement [27, 28] ; les solutions analytiques n'existent que pour les cas simples où l'aimantation est uniforme.

Il existe également d'autres versions de cette équation en prenant en compte des phénomènes supplémentaires comme l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert-Slonczewski avec un terme traduisant le transfert de spin [29], ou l'équation de Landau-Lifshitz-Bloch en ajoutant la dépendance en température du moment magnétique [30].

1.1.5 Excitations magnétiques

Dans un couche mince ferromagnétique perturbée par une excitation extérieure, l'aimantation globale du matériau aura tendance à engager un mouvement de précession en spirale autour de la direction du champ effectif $\vec{H}_{eff}$ et finit par s'aligner avec celui-ci. Il existe deux types de mouvement de précessions collectives de spin. L'investigation de ces excitations magnétiques permet de remonter à certaines informations essentielles telles que le comportement de l'anisotropie magnétique, ou de manière générale, des effets d'interfaces dans les structures en multicouches minces. Dans le cas de cette thèse, les deux types d'excitations ont été investiguées de manière complémentaire.

1.1.5.1 Mode uniforme

Lorsque les spins précessent en phase avec la même fréquence, ce type de mouvement est désigné comme le mode uniforme (figure1.8 (a)). C'est le mode étudié avec la technique de la résonance ferromagnétique (Ferromagnetic resonnance, FMR) (section 2.4.1). Dans une couche mince ferromagnétique de quelques nanomètres d'épaisseur, le mode uniforme peut être excité grâce à l'application d'un champ radio fréquence (h_{rf}). La fréquence de ce mode uniforme, déterminée par $\vec{H}_{eff}$, est obtenue à partir de l'expression de la densité d'énergie magnétique totale (E) du système. Dans un repère de coordonnées où la direction de l'aimantation $\vec{M}$ et la normale à la couche sont définies par l'angle θ_M, tandis que l'angle entre la projection de $\vec{M}$ dans le plan de la couche et un des axes de ce plan est représenté par ϕ_M. La fréquence du mode uniforme s'exprime alors en fonction des dérivées de l'énergie E par rapport à θ_M et à ϕ_M (figure 1.7) :

$$F_r^2 = \left(\frac{\gamma}{2\pi}\right)^2 \frac{1}{M_s^2 \sin^2\theta_M}\left[\frac{\partial^2 E}{\partial {\theta_M}^2}\frac{\partial^2 E}{\partial {\phi_M}^2} - \left(\frac{\partial^2 E}{\partial\theta_M \partial\phi_M}\right)^2\right] \tag{1.22}$$

où $\frac{\gamma}{2\pi} = g \times 1.397 \times 10^6 Hz/Oe$ est le facteur gyromagnétique relié au facteur de Landé g. Cette équation est évaluée à l'équilibre de l'aimantation où les valeurs de θ_M et ϕ_M minimisent l'énergie E totale du système.

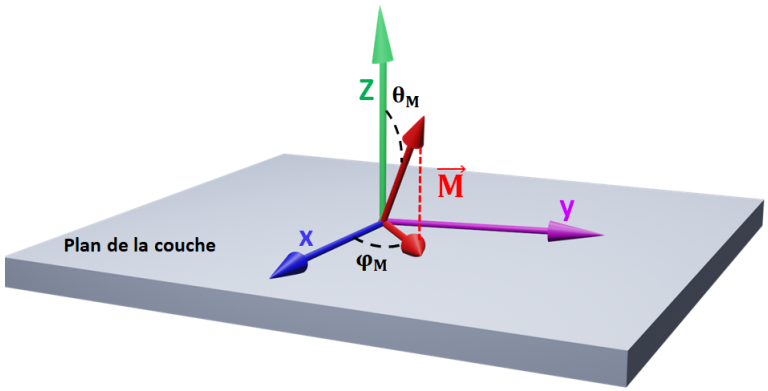

FIGURE 1.7 – Schéma du système des coordonnées utilisé pour l'expression de la fréquence de la résonance ainsi que de l'aimantation et sa projection .

1.1.5.2 Ondes de spins

Dans le cas où les excitations non uniformes existent, c'est à dire où les spins voisins précessent (autour de la direction d'équilibre) avec la même fréquence mais avec des phases différentes, une propagation de l'excitation magnétique a lieu et est appelée : **onde de spin** (de longueur d'onde λ) (figure1.8 (b)). Ce type d'excitation est caractérisée par une direction d'aimantation $\vec{M}$ dépendante de la position et du temps. Le concept d'onde de spin a été introduit pour la première fois par Bloch [31] en 1930. Les quanta des ondes de spin sont appelés **magnons**.

Lorsque λ est petite, les ondes de spins sont régies par l'interaction d'échange qui tend à uniformiser la direction de l'aimantation sur quelques distances atomiques. Dans le cas où λ est suffisamment grande, il s'agit du cas de l'interaction dipolaire à longue portée. Les ondes de spin sont par conséquent classées en deux types : les modes d'échange et les modes dipolaires.

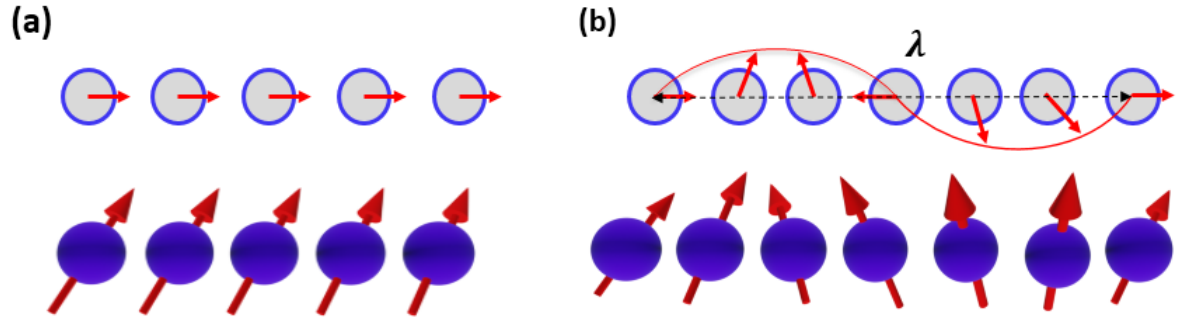

FIGURE 1.8 – Schéma représentant (a) le mode uniforme et (b) ondes de spin dans une couche ferromagnétique. Première ligne, vue d'en haut, deuxième ligne, vue de face.

La propagation des ondes de spin est une solution propre de l'équation LLG (équation 1.21). La relation de dispersion pour ces excitations lie la pulsation de l'onde ($\omega = 2\pi f$) à son vecteur d'onde ($k_{SW} = \frac{2\pi}{\lambda}$). Afin de déterminer cette relation de dispersion, l'équation LLG doit être résolue avec les équations de Maxwell dans l'approximation magnétostatique. En effet, elles peuvent être traitées dans le cadre des ondes électromagnétiques car elles représentent des oscillations de l'aimantation locale.

Dans une géométrie de couche mince magnétique, différentes configurations de propagation d'onde de spin peuvent exister. Ces modes magnéto-statiques sont déterminés par rapport à l'angle entre l'aimantation et la composante planaire du vecteur d'onde et par rapport à l'orientation de l'aimantation de la couche mince :

- Ondes magnéto-statiques de volume (magneto-static forward volume waves, MSFVW), l'aimantation est hors du plan et l'onde se propage dans le plan (figure 1.9 (a)) .
- Ondes magnéto-statiques de volume rétrogrades (magneto-static backward volume waves, MSBVW), où l'aimantation et le vecteur d'onde sont colinéaires (figure 1.9 (b)).
- Ondes magnéto-statiques de surface (magneto-static surface waves, MSSW), où l'aimantation et le vecteur d'onde sont dans le plan de la couche et sont perpendiculaires entre eux (figure 1.9 (c)). Le calcul de ces modes magnéto-statiques fut réalisé par R. W. Damon et J. R. Eshbach en 1961 [32] qu'on appelle également, modes Damon-Eshbach (DE). Dans l'approximation dipolaire et en négligeant l'anisotropie, la relation de dispersions de ces modes s'exprime [33] :

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = H(H + 4\pi M_s) + (2\pi M_s)^2(1 - e^{-2k_{II}d}) \tag{1.23}$$

où k_{II} est la composante planaire du vecteur d'onde et d est l'épaisseur de la couche.

Dans le but d'étudier les ondes de spin afin d'investiguer l'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya d'interface (iDMI), seuls les modes DE sont privilégiés dans les études expérimentales avec la diffusion Brillouin de la lumière (BLS) (voir section 2.4.2).

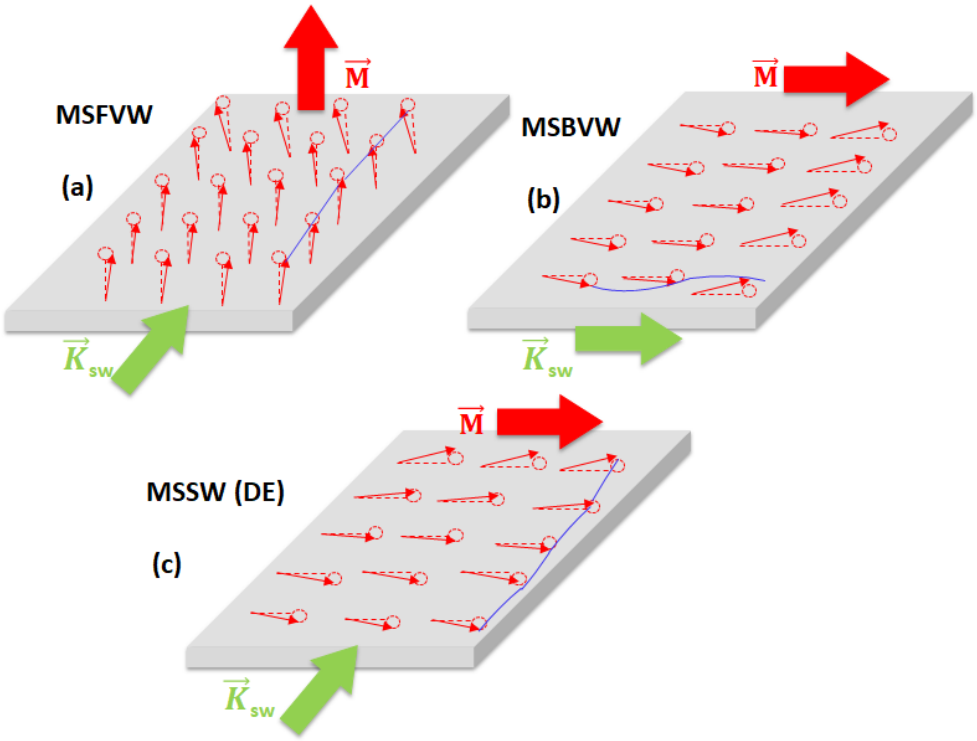

FIGURE 1.9 – Schéma des modes de propagation d'onde de spin :(a) MSFVW, l'aimantation est hors du plan et le vecteur d'onde est dans le plan, (b) MSBVW, l'aimantation et le vecteur d'onde sont colinéaires, (c) MSSW ou de DE, l'aimantation et le vecteur d'onde sont dans le plan mais sont perpendiculaires entre eux.

En effet, pour les trois modes magnéto-statiques, seuls les modes DE présentent une non réciprocité de la propagation d'onde de spin, due à la présence de l'iDMI. Une estimation de l'influence de l'iDMI sur les ondes de spin a été introduite par Soucaille [34] démontrant que pour les deux modes de volume, la contribution de l'iDMI est nulle, tandis que pour les modes DE, les calculs ont démontré que la différence d'énergie entre deux ondes se propageant dans deux directions opposées est proportionnelle à la constante d'iDMI, (voir sections 1.4.2 et 2.4.2).

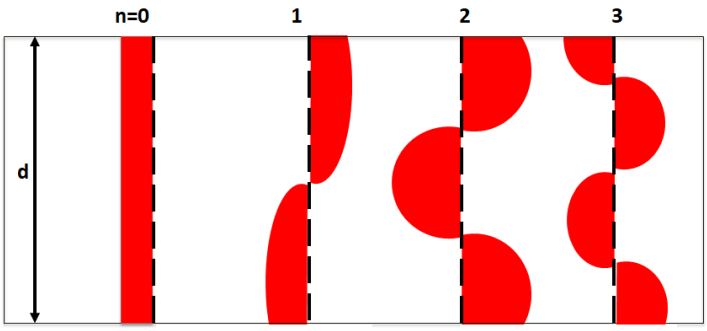

FIGURE 1.10 – Schéma des modes PSSW pour différents ordres.

En plus des modes DE, il existe une autre famille de mode apparaissant dans les couches minces, appelés modes stationnaires (perpendicular standing spin waves, PSSW) résultant de la superposition d'ondes de spin perpendiculaires au plan du film et se propageant dans deux directions opposées [35] (figure 1.10). Ces modes possèdent un vecteur

d'onde $K_\perp = \frac{n\pi}{d}$ (où n est un nombre entier traduisant le nombre de quantification) et dépendent de l'interaction d'échange. L'étude des ondes de spin permet également, en plus d'évaluer l'iDMI, d'accéder à la mesure de l'anisotropie magnétique, du couplage intercouche... Une présentation détaillée de la méthode de mesures pour les bancs FMR et BLS sera dressée dans le chapitre suivant.

1.1.6 Les Mécanismes de la relaxation de l'aimantation

Dans un matériau ferromagnétique, il existe de nombreux termes d'énergie liés au comportement de l'aimantation et qui définissent l'énergie magnétique totale.
Comme décrit dans la section 1.1.3 précédente, ces termes décrivent notamment l'état de l'aimantation, ainsi que le champ effectif $\vec{H}_{eff}$ qui contrôle la dynamique de l'aimantation. L'équation LLG (1.21) décrit également la dynamique de l'aimantation ainsi que la dissipation (amortissement) de l'énergie totale provenant de l'excitation magnétique, qui est représentée par le terme sans dimension d'amortissement de Gilbert α .

Les mécanismes physiques qui donnent lieu à la relaxation de l'aimantation pour atteindre la direction de $\vec{H}_{eff}$, sont généralement subdivisés en contributions «intrinsèques» et «extrinsèques». La première se rapportant à la physique du système matériel (couche ferromagnétique), provenant de la relaxation spin-réseau, qui transfère l'énergie directement au réseau. La seconde se rapportant à des contributions supplémentaires associées par exemple, à des défauts et des inhomogénéités dans l'échantillon. Cette contribution résulte du processus de relaxation spin-spin qui redistribue l'énergie entre les différents modes magnétiques (uniforme et non uniformes).

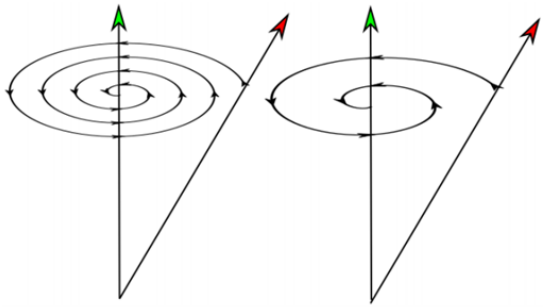

FIGURE 1.11 – [36] Schéma de l'amortissement précessionnel avec différentes valeurs d'amortissement. Sur la gauche, un amortissement faible qui prend plus de temps (plus de cycles de précession) pour atteindre la position d'équilibre de l'aimantation le long de la direction de $\vec{H}_{eff}$, par rapport au cas d'un amortissement plus élevé, à droite.

Sachant que l'amortissement magnétique reflète le temps nécessaire à la relaxation de l'aimantation (figure 1.11), il est alors important de l'étudier dans les systèmes en multicouches (ou nanostructurés) destinés à des applications pour la spintronique, comme par exemple le retournement avec couple de transfert de spin où le courant de retournement est directement proportionnel à l'amortissement [29, 37]. Ainsi, une faible constante d'amortissement est nécessaire pour un faible courant de retournement. Il est à noté que la détermination de chaque mécanisme contribuant à l'amortissement est l'un des problèmes les plus fondamentaux du magnétisme, où plusieurs études se sont relayées au cours des dernières années en exploitant différentes techniques, telles que la FMR [38], l'effet Kerr magnéto-optique [39] ou plus récemment la BLS [40]. Dans la suite, nous détaillerons chaque contribution séparément.

1.1.6.1 Mécanismes intrinsèques

Les effets intrinsèques peuvent induire un amortissement, même pour des échantillons cristallographiquement parfaits. La contribution de ces effets est directement dérivée de l'équation LLG (equation 1.21), c'est à dire l'amortissement de Gilbert α.

Il existe plusieurs mécanismes responsables de l'amortissement de Gilbert [36] :

- En général, pour un matériau ferromagnétique, le mécanisme intrinsèque d'amortissement peut être lié à l'interaction spin-orbite, dissipant l'énergie vers le réseau. Kambersky a apporté d'importantes contributions théoriques [41, 42], expliquant le processus d'amortissement intrinsèque dans les matériaux métalliques massifs, où son modèle était basé sur la modification de la surface de Fermi par rapport à la direction de l'aimantation. Ces modifications qui donnent lieu à l'amortissement ont été attribuées à la somme de deux contributions : l'une est une somme de petites contributions provenant de l'essentiel de la surface de Fermi, et l'autre est une somme de plus grandes contributions provenant de régions particulières de la surface de Fermi [43].
- La relaxation intrinsèque peut également être expliquée en terme de collision entre un magnon et un éléctron itinérant de la bande majoritaire, créant ainsi un électron dans une bande minoritaire afin de conserver le spin total. Le processus de diffusion incohérente constitue l'origine de la relaxation de l'aimantation.

1.1.6.2 Mécanismes extrinsèques

L'amortissement extrinsèque provient des inhomogénéités de l'échantillon. Ces inhomogénéités contiennent les différentes contributions d'anisotropie magnétocristalline, les variations des anisotropies de surface, les défauts locaux, les écarts d'épaisseur de l'échantillon, la magnétostriction associée à des contraintes variables dues aux imperfections du substrat, la variation locale de l'aimantation et d'autres possibilités dépendantes par exemple du processus de préparation des échantillons. L'aimantation a tendance à précesser presque uniformément lorsque la densité des inhomogénéités est faible, cependant lorsque la densité des inhomogénéités dans un système ferromagnétique est plus élevée, la précession de l'aimantation se produit dans un certain nombre de modes résonnants locaux [36]. Les mécanismes extrinsèques, peuvent être alors subdivisés en trois contributions (on se limite à celles observées dans nos échantillons) :

- Processus de diffusion à deux magnons : ce processus fait référence à l'interaction (dégénérescence) entre le mode de résonance uniforme ($K_{sw} = 0$) et les modes de résonance non uniformes (modes de magnons, $K_{sw} \neq 0$). En effet,les inhomogénéités du système, affectent la précession de l'aimantation et excitent des modes magnons supplémentaires. Il convient de noter que lorsque la diffusion à deux magnons se produit, l'énergie est transférée du mode uniforme aux modes non uniformes [44]. C'est à dire l'implication de magnons dégénérés ayant la même énergie que le mode uniforme. Cela fournit des canaux supplémentaires pour la dissipation de l'énergie vers le réseau cristallin, ce qui génère une augmentation de l'amortissement. La contribution de la diffusion à deux magnons conduit à l'élargissement du pic de résonance en FMR [44, 45], et sera présentée en détail dans le chapitre suivant (voir section 2.4.1).

- La mosaicité : ce mécanisme est dû aux faibles fluctuations des paramètres de l'échantillon en couche mince sur une grande échelle. Ces fluctuations qui constituent , l'épaisseur, les champs internes ou l'orientation des cristallites au sein d'un même échantillon, ont pour conséquence des champs de résonances FMR légèrement différents d'une région de l'échantillon à une autre. Une augmentation de la largeur de raie FMR est également observée, en raison de la superposition de chaque raie FMR locale.
- Autres mécanismes : une contribution indépendante de la fréquence et de la direction de $\vec{H}_{eff}$ est également à prendre en compte dans le cas des mécanismes d'amortissement extrinsèques. Ces mécanismes ne prennent pas en considération les mécanismes de relaxation cités précédemment.

1.2 La spintronique

Dans l'électronique classique, les dispositifs associés se basent sur la propriété essentielle de l'électron *"sa charge électronique"* afin de transporter l'information. Mais, l'électron possède également *"un spin"* (section 1.1.2), propriété quantique intrinsèque, représentant l'électron alors comme un minuscule aimant capable de s'orienter selon deux directions différentes **"spin up"** ou **"spin down"**. L'exploitation de cette propriété supplémentaire offre des possibilités d'applications nouvelles, particulièrement dans le stockage et le transport de l'information. Une nouvelle discipline émerge "la spintronique" et devient alors l'objet de recherche de nombreux scientifiques dans le monde, aboutissant déjà à de multiples applications technologiques.

Dans la suite de cette section, nous présenterons les technologies et phénomènes les plus connus dans le domaine de la spintronique. Nous commencerons par décrire la magnétorésistance géante en raison de son effet déclencheur dans le développement de la spintronique.

1.2.1 La magnétorésistance géante (GMR)

La magnétorésistance géante (Giant Magnetorestance, **GMR**) est un effet purement quantique qui fut découvert indépendamment en 1988 par A.Fert [1] et P.Grünberg [2] et qui ont obtenu postérieurement le prix Nobel de la physique, pour ces travaux fondamentaux dans l'émergence du domaine de la spintronique.

Cet effet peut apparaitre dans les structures de films minces appelées *vanne de spin* composées d'un empilement de deux couches ferromagnétiques séparées par une couche d'un matériau non-magnétique, annotées par FM1/NM/FM2 [46]. La GMR se manifeste par une diminution significative (généralement de 10 à 80%) de la résistance électrique en présence d'un champ magnétique (d'où l'appellation de magnétorésistance géante). Elle est exploitée commercialement depuis des décennies dans les têtes de lecture des disques durs [47].

D'après la figure 1.12, deux configurations sont possibles pour ce système. Les directions d'aimantation des couches FM1 et FM2 sont soit parallèles, résultant en une faible résistance où antiparallèles, donnant lieu à une forte résistance.

Dans un matériau ferromagnétique, la densité d'état au niveau de Fermi est différente selon le spin des électrons, on parlera alors de *spins majoritaires* ou de *spins minoritaires*.

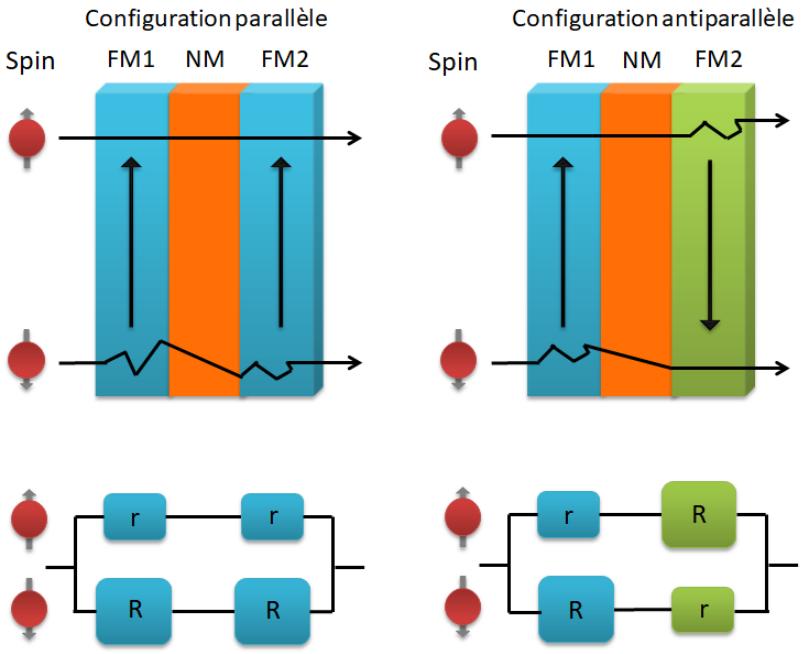

FIGURE 1.12 – Principe de l'effet GMR pour une vanne de spin pour les deux configurations possibles : couches ferromagnétiques aimantées parallèlement ou antiparallèlement.

Un écart pour la conductance des électrons dans chaque état de spin est alors observé, impliquant la polarisation en spin pour tout courant circulant dans ce type de matériau. L'effet de magnétorésistance tire profit de cette propriété afin de contrôler la résistance électrique par le biais du spin des électrons [17]. En effet, lorsqu'un électron réussi a traverser la première couche ferromagnétique (FM1)(aimantée dans la même direction de sa polarisation en spin), celui-ci voit sa polarisation conservée le temps de passage dans la couche NM [7] (appelé temps de relaxation), ainsi arrivé à l'interface NM/FM2, l'électron doit impérativement avoir une polarisation de spin dans le même sens que l'aimantation de la couche FM2 ou bien la capacité de retourner son spin afin de la traverser. Si cette condition est vérifiée l'électron passe résultant dans une faible résistance, sinon le passage de l'électron à travers cette couche est entravé résultant en une accumulation de spin donnant lieu à une forte résistance.

A partir des schémas électriques équivalents de la figure 1.12, la résistance des configurations à aimantations parallèles ou antiparallèles sont ensuite établies afin de déterminer le taux de la GMR :

$$R_p = \frac{2rR}{(r+R)} \qquad R_{ap} = \frac{(r+R)}{2} \tag{1.24}$$

$$MR_{\%} = \frac{R_{ap} - R_p}{R_p} \tag{1.25}$$

7. Grande vitesse des électrons au niveau de Fermi

1.2.2 La magnétorésistance tunnel (TMR)

Un autre phénomène distinctif de la spintronique, est la magnétorésistance à effet tunnel (Tunnel Magnetic Resistance, **TMR**,). Effet également d'origine quantique, sa première mise en évidence fut réalisée par Julliere en 1975 pour des structures de Fe/GeO/Co à T=4K pour une $TMR_{\%}$ de 14% [48]. L'effet fut ensuite observé pour la première fois à température ambiante en 1994 par Miyasaki et al. [49] en séparant deux couches ferromagnétiques par un couche d'oxyde d'aluminium AlOx, aboutissant à une $TMR_{\%}$ de 18%. En 2001, Mathon et al. [50] ont théoriquement prédit des taux $TMR_{\%}$ jusqu'à 1000% en remplaçant la couche d'aluminium par une couche de MgO monocristallin. Ainsi en 2008, S. Ikeda et al. ont observé des taux de $TMR_{\%}$ allant jusqu'à 600% pour des structures de CoFeB/MgO/CoFeB à température ambiante [51].

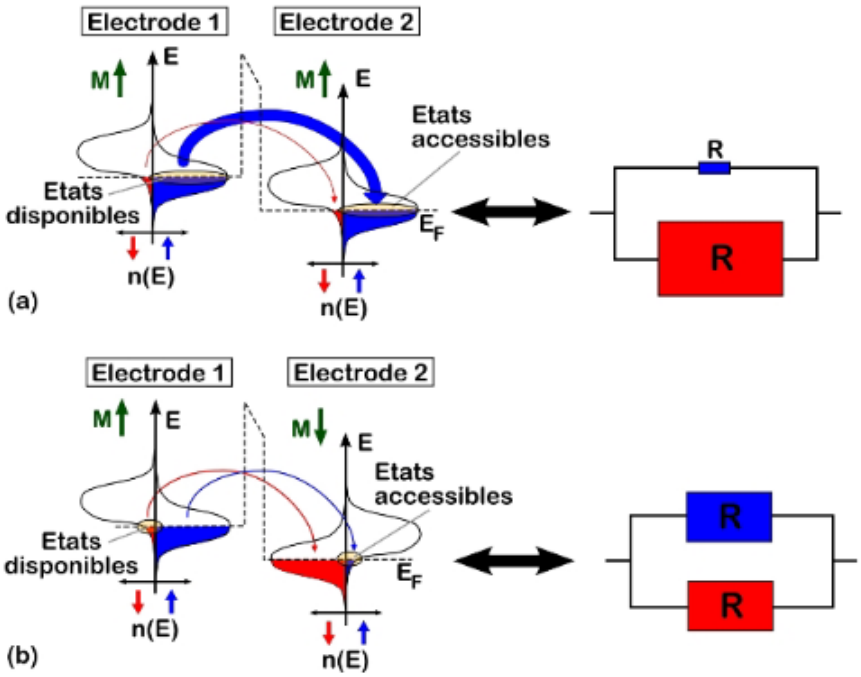

FIGURE 1.13 – [52] Schéma du principe de la magnétorésistance à effet tunnel pour une jonction MTJ avec deux deux électrodes identiques pour le cas (a) parallèle ou (b) antiparallèle.

L'effet TMR est observé dans les structures types appelées "Tunneling Magnetic Junction, **MTJ**" composées de deux couches ferromagnétiques séparées par une couche de matériau isolant FM1/I/FM2. La première couche ferromagnétique est appelée "électrode émettrice" et la deuxième "électrode réceptrice". Cet effet se base sur le phénomène quantique de l'effet tunnel, c'est à dire la capacité des électrons polarisés en spin à passer la barrière tunnel (couche isolante) dans le but d'atteindre l'électrode réceptrice. A noter que cet effet n'aurait jamais pu être observé sans le développement des techniques de dépôts de couches minces, où la couche isolante doit être de quelques nanomètre (monocouches atomiques) afin d'assurer le passage des électrons à travers la barrière. La magnétorésistance tunnel est définie en considérant les densités d'états électroniques au niveau de Fermi pour les électrodes émettrice et réceptrice et cela pour chaque polarité de spin.

En effet, dans le cas où les densités d'états au niveau de Fermi sont les mêmes dans les électrodes émettrices et réceptrices et pour une même polarité de spin (canal d'électrons de spin up dans le cas de la figure 1.13), un grand nombre d'électrons pourront alors atteindre l'électrode réceptrice, résultant en un fort courant tunnel pour ce canal (faible pour l'autre), et par conséquent une faible résistance. Dans le cas anti-parallèle, les densités d'états sont différentes pour une même polarité de spins dans les deux électrodes et pour les mêmes canaux , ce qui implique un faible courant tunnel , et par conséquent une résistance globalement supérieure à l'état parallèle.

L'écart relatif de la TMR est alors calculé d'après le modèle de Juliere à travers les résistances électriques pour les deux cas cités précédemment :

$$TMR = \frac{R_{ap} - R_p}{R_p} = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2} \tag{1.26}$$

où P_1 et P_2 sont la polarisation en spin (taux) pour l'électrode émettrice et réceptrice définis à partir des densités d'états électroniques de spin :

$$P = \frac{D_\uparrow(E_f) - D_\downarrow(E_f)}{D_\uparrow(E_f) + D_\downarrow(E_f)} \tag{1.27}$$

où $D_\uparrow(E_f)$ et $D_\downarrow(E_f)$ sont les densités d'états au niveau de Fermi pour les spins up et spins down, respectivement.

A noter que ce modèle qui prend en compte uniquement les électrodes (la polarisation), fut ensuite amélioré par le modèle de Slonczewski [53], qui étudie l'ensemble du système (électrodes ferromagnétique + barrière isolante) tout en considérant la hauteur et l'épaisseur de la barrière tunnel.

1.2.3 Quelques dispositifs spintroniques

Dans cette partie, nous allons décrire quelques dispositifs spintroniques qui fonctionnent sur le principe de la GMR ou de la TMR.

1.2.3.1 Têtes de lectures GMR

C'est indéniablement le dispositif le plus connu résultant du développement de la spintronique. Dans les disque dur, en 1997 IBM a réussi à ajouter une tête de lecture à base d'effet GMR (capteur GMR) tout en gardant la tête inductive pour l'écriture [38]. Depuis, les têtes de lecture/écriture n'ont cessé de se développer. Jusqu'en 2005, toutes les têtes de lectures commercialisées contenaient un dispositif GMR. Il fut ensuite remplacer graduellement par un dispositif TMR [54, 55] qui a permis d'augmenter la densité de stockage jusqu'à 100% (figure 1.14).

Les capteurs GMR dans les disques durs sont un assemblage de vannes de spins. Dans une structure type, celle-ci est composée de deux couches ferromagnétiques (NiFe) séparées par une couche d'espacement (Cu) (figure 1.15) [56]. Pour l'une des couches ferromagnétiques la direction d'aimantation est fixe (pinned layer sur la figure 1.15) tandis que pour la deuxième (free layer sur la figure 1.15), il est possible de changer la direction de son aimantation en appliquant un champ magnétique.

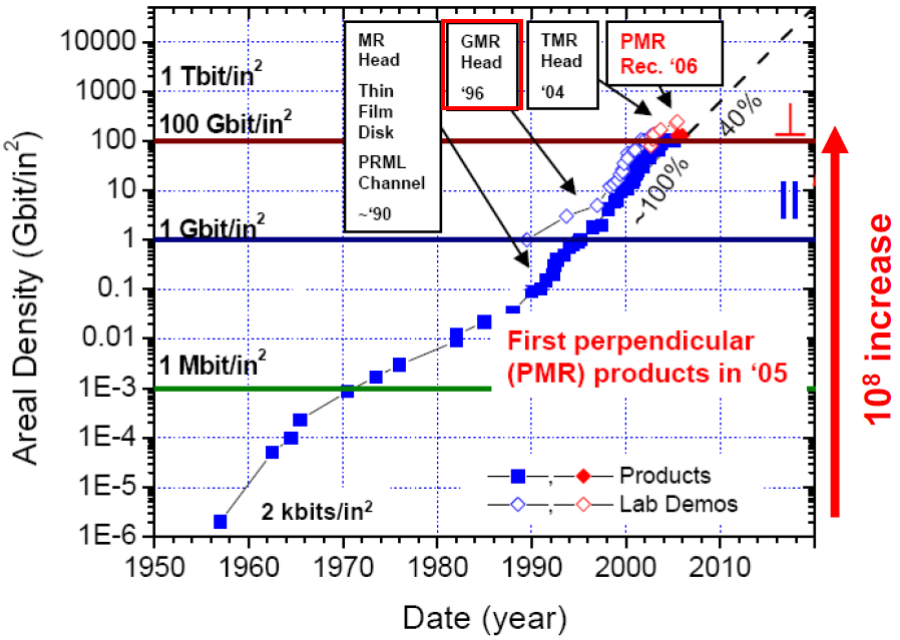

FIGURE 1.14 – Augmentation de la densité de stockage dans les disques durs par rapport aux technologies des têtes de lecture/écriture sur les 50 dernières années. Le pouce (in) qui est égale à 25.4 mm est souvent utilisé dans les mesures des longueurs pour les pièces électroniques.

C'est ce principe qui permet de contrôler la magnétorésistance géante et ainsi de lire les bits, bit "1" lorsque les directions d'aimantations des couches ferromagnétiques sont parallèles (faible résistance), sinon bit "0" pour les directions opposées d'aimantation (figure 1.15).

D'un point de vue technologique l'avantage d'utilisation des capteurs GMR est la possibilité d'écrire des bits de plus en plus petits impliquant l'augmentation des capacité de stockage dans les disques durs (figure 1.14).

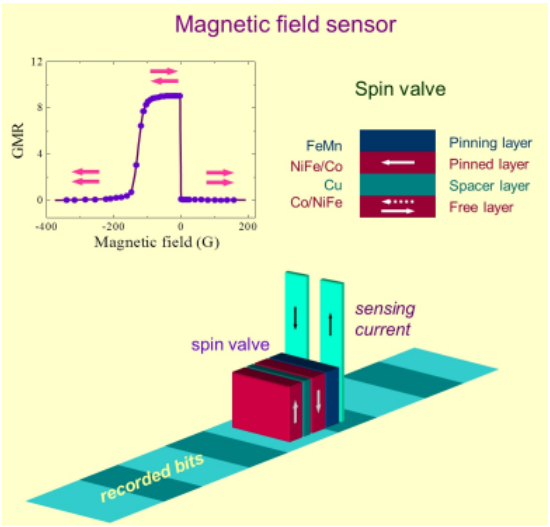

FIGURE 1.15 – [57] Représentation d'un capteur GMR dans les têtes de lectures des disque durs. La forte sensibilité de ce type de capteur a permis d'augmenter considérablement les densité de stockages dans les disques durs.

1.2.3.2 Mémoires MRAM

la mémoire MRAM (Magnetic Random Access Memory) est l'une des technologies les plus prometteuses dans le domaine du stockage de l'information et des mémoires ultra-denses et ultra-rapides. C'est une mémoire non volatile, à faible consommation énergétique et à un accès aléatoire rapide dont son unité de base est la jonction MTJ (voir section 1.2.2). Dans un tel dispositif la lecture se fait en mesurant la résistance électrique (effet TMR). Tout comme pour les capteurs GMR (section 1.2.3.1), la jonction MTJ a une couche ferromagnétique à aimantation fixe et la deuxième à aimantation réversible. L'écriture en revanche se fait par plusieurs méthodes [58]. Dans les premières structures MRAM, un assemblage de cellules (jonctions MTJ) est placé sur des fils conducteurs appelés "ligne de mots" et "ligne de bits" (figure 1.16). Lorsqu'un courant électrique parcourt ces lignes, un champ magnétique est généré dans chaque ligne qui sont orthogonaux entre eux à l'entrée de chaque cellule. Le champ magnétique résultant est alors capable de forcer la direction de l'aimantation de la couche libre et ainsi d'inscrire les bits "0" ou "1". Cependant, cette méthode nécessite énormément de puissance (forts courants) et fut rapidement abandonnée pour une méthode moins couteuse [58, 59] qui est d'injecter dans la MTJ un courant électrique polarisé en spin et qui peut induire un retournement de l'aimantation par transfert de spin (spin transfer torque, STT) [60]. Les STT-MRAM sont ainsi aujourd'hui parmi les mémoires magnétiques les plus étudiées par les spécialistes du domaine en raison de leurs potentielles commercialisations. A noter que la première MRAM de 4 Mbits fut lancée par Freescale en 2006 [61] et rattrapé en 2016 par Everspin en commercialisant la première STT-MRAM à anisotropie perpendiculaire pour 256 Mbits [58].

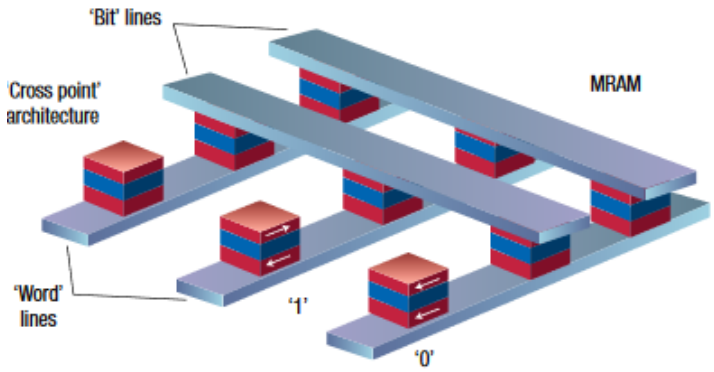

FIGURE 1.16 – [59] Mémoire magnétique à accès aléatoire MRAM. Architecture de type "cros-point" de plusieurs jonctions magnétiques à effet tunnel reliées entre elles par des fils conducteurs.

1.3 La spinorbitronique

Dans les sections qui suivent, nous allons décrire les effets d'interface étudiés au cours de cette thèse. Nous commencerons par définir le phénomène qui est à l'origine de ces effets "le couplage spin-orbite", et nous terminerons par présenter les quelques applications technologiques en lien avec ces phénomènes d'interfaces.

1.3.1 Le couplage spin-orbite

Le couplage spin-orbite est un effet relativiste qui se produit lors du déplacement des électrons dans leurs orbites, le champ électrique positif du noyau est transformé en un champ magnétique et se couple au spin des électrons. Cette contribution à l'Hamiltonien est approximée en termes de couplage entre le spin et le mouvement orbital des électrons :

$$H_{SOC} = \frac{g_e}{2}\frac{q}{m_e^2 c^2}\frac{1}{r}\frac{\partial v(r)}{\partial r}\vec{s}\,\vec{l} \tag{1.28}$$

où c la célérité, r le rayon atomique, $v(r)$ est le potentiel de Coulomb du noyau, $\vec{l}$ et $\vec{s}$ sont les moment angulaire orbital et de spin pour un électron dans un atome donné.

A partir de cette expression, on comprend que l'intensité de ce couplage dépend fortement de $\frac{\partial v(r)}{\partial r}$, qui augmente à mesure que le numéro atomique Z augmente. On parle alors de métaux lourds tels que le Pt, Ir, W, Ta, Pd...

D'un autre coté, dans les couches minces ferromagnétiques, les atomes sur les surfaces sont au cœur des phénomènes engendrés. En déposant des multicouches ultra minces, les effets d'interfaces prennent de l'ampleur, et peuvent ainsi modifier les propriétés quantiques et magnétiques de chaque coté des matériaux déposés, donnant lieux à des phénomènes fascinants dont l'investigation de la contribution de chaque interface s'avère cruciale.

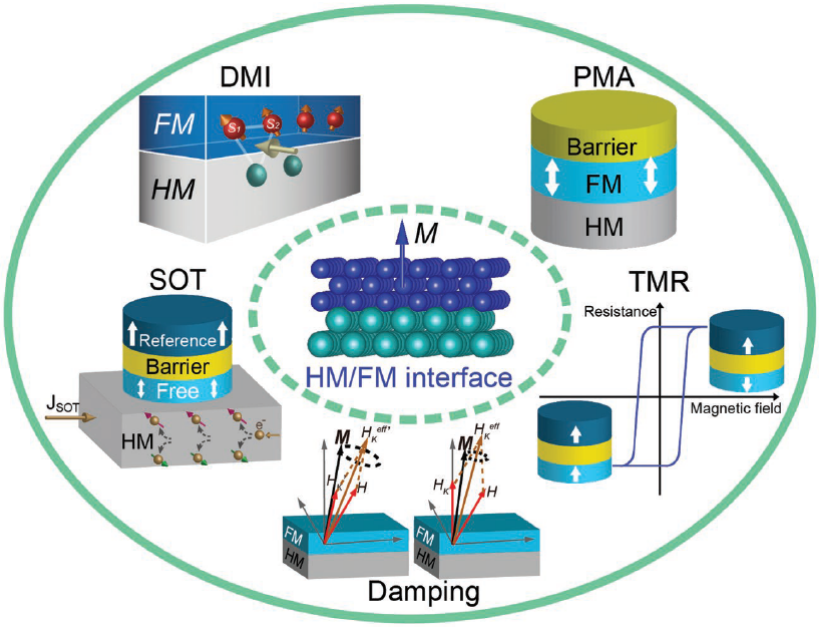

FIGURE 1.17 – [62] Schéma de l'interface HM/FM et des effets observés associées à des dispositifs spintroniques.

Récemment, il a été constaté que l'interface métal lourd/ matériau ferromagnétique ; heavy metal **(HM)**/ferommagnetic **(FM)**, joue un rôle essentiel dans les dispositifs spintroniques. Les performances de tels dispositifs peuvent être considérablement améliorées par une modulation appropriée de cette interface [62]. Ainsi la combinaison d'un matériau ferromagnétique avec un matériau à large couplage (SOC), est à l'origine de plusieurs effets tels que l'anisotropie magnétique perpendiculaire [22], l'amortissement [45], l'effet Hall de spin [3]. Il a été aussi constaté, dans le cas de brisures de symétrie à l'interface

HM/FM, que le SOC déclenche un certain nombre de phénomènes tels que les couples de spin-orbite (Spin Orbit Torque, SOT) [63, 38], l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya, DMI (interaction antisymétrique d'échange) [4, 5] donnant lieu à des textures exotiques de spin [64] et la possibilité de contrôler le mouvement des parois de domaines...

Ce nouveau domaine de recherche, appelé "*la spin-orbitronique*" [65, 63, 66], est un prolongement logique de la spintronique en présentant d'énormes promesses tant sur le plan scientifique que technologique. A court terme, l'énorme efficacité des SOT ouvre la perspective de technologies de mémoire et de stockage de données à très faible consommation d'énergie, ce qui est vital lorsque la consommation d'énergie pour l'information est si importante (qui continue toujours de croître). Les textures exotiques en spin telles que les skyrmions offrent également d'autres perspectives intéressantes dans le futur proche [64].

A l'heure actuelle, on sait peu de choses sur les matériaux optimaux à déposer afin que les performances des dispositifs soient correctes. Pour cela, une étude approfondie des structures en multicouches, de leurs interfaces ainsi que des propriétés magnétiques engendrées est primordiale. C'est une merveilleuse opportunité pour la recherche qui portera ses fruits très prochainement.

L'intérêt de cette thèse est d'étudier certains des phénomènes magnétiques d'interface observés dans le cas des multicouches ultraminces. Nous nous intéresserons alors à l'anisotropie magnétique perpendiculaire, au pompage de spin et à l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya d'interface. L'étude de ces trois effets s'inscrit dans la recherche fondamentale pour des applications industrielles dans l'électronique de spin et éventuellement dans la spin-orbitonique.

1.4 Effets d'interfaces dans les couches minces

1.4.1 L'anisotropie magnétique perpendiculaire

Comme cela a été présenté dans la section 1.1.3.4, l'anisotropie de surface qui a tendance à aligner l'aimantation perpendiculairement au plan de la couche mince, est en constante compétition avec l'énergie démagnétisante qui favorise la direction d'aimantation dans le plan d'une couche mince. Cependant, comme la contribution de la surface K_s augmente lorsque l'épaisseur de la couche mince diminue, l'obtention d'une couche mince à aimantation spontanée perpendiculaire est limitée aux couches de très faibles épaisseurs, de l'ordre de quelques plans atomiques seulement. On parlera alors d'anisotropie magnétique perpendiculaire (PMA, Perpendicualr Magnetic Anisotropy).

1.4.1.1 PMA induite par l'interface HM/FM

Pour les multicouches, cette anisotropie fut observée pour la première fois en 1985 par Carcia et al. [67] dans les systèmes de Co/Pd. Les structures à base de Co ont ensuite été intensivement étudiées : Co/Pt [68], Co/Au [69], Co/Ru [70] et Co/Ir [23], dont l'origine fut attribuée à l'anisotropie du moment angulaire orbital interfacial [71] induit par ces systèmes à faible symétries. La présence de métaux lourds non magnétiques dans ces systèmes aux interfaces modifie le moment angulaire orbital interfacial du matériau ferromagnétique et renforce son interaction spin-orbite, favorisant ainsi la direction de l'aimantation perpendiculaire au plan des couches.

1.4.1.2 PMA dans l'interface ferromagnétique/oxyde

Récemment, il a été constaté que la PMA pouvait aussi, à l'instar des interfaces HM/FM, être induite dans les interfaces de type FM/ oxyde de métal (MO_x), où M peut être de l'Al, Ta , Mg, Hf... avec différents matériaux ferromagnétiques tel que Co, CoFe, CoFeB [72, 73]. L'origine de cette PMA est attribuée à l'hybridation entre les orbitales sp-oxygène et l'orbitale dz^2 dans le matériau ferromagnétique (Co ou Fe) à travers l'interface [72, 74]. La présence des oxydes métalliques à l'interface rend cette anisotropie magnétique très sensible au degré d'oxydation (sur-oxydé ou sous-oxydé), pour lequel il est possible d'induire une forte PMA lorsque la quantité des liaisons FM-O est optimale [73, 72].

Ce type d'interface a été intensivement étudiée, particulièrement suite à l'observation de forts taux TMR de 600% dans les MTJs à base de $CoFeB/MgO$ [51]. Ainsi dans le but d'applications dans les mémoires MRAMs, une large rétention de mémoire est indispensable, c'est à dire chercher et trouver les matériaux et interfaces optimales pour l'obtention d'une forte PMA. Cette thèse s'inscrit dans cette thématique où l'étude de la PMA dans les multicouches de types FM/MO_x et HM/FM ont été établis.

Il a été également découvert que la PMA à l'interface peut être contrôlée en appliquant un champ électrique normal à l'interface [75, 76]. L'accumulation de porteurs créé à l'interface magnétique métal/non-métal par application d'un champ électrique, modifie alors le potentiel chimique, ce qui entraîne un changement dans la densité d'occupation des états pour les spins up et les spins down modifiant ainsi l'aimantation à l'interface. Les études concernant l'effet d'un tel champ sur la PMA, sont principalement réalisées dans le but de l'élaboration de MTJ où le retournement de l'aimantation est plus rapide et à faible consommation énergétique.

1.4.1.3 Applications de la PMA pour la spintronique

En général, les matériaux à anisotropie perpendiculaire sont énormément demandés pour le stockage de l'information et sont depuis quelques années utilisés dans les supports d'enregistrement informatiques [77, 78]. En effet depuis l'invention du premier disque dur, la technologie concernant le stockage d'information n'a cessée de se développer.

Dans les matériaux à aimantation planaire (anisotropie de forme dominante), l'information est traditionnellement enregistrée de manière longitudinale (figure 1.19), sur des bandes magnétiques constituées de plusieurs grains (de différentes directions d'aimantation) (figure 1.18). Chaque bit couvre une bande magnétique. Dans un besoin d'augmenter la capacité de stockage, il est essentiel de réduire la taille des bits. Ceci offrirait alors la possibilité d'augmenter considérablement la densité de stockage. Or, dans une telle configuration la densité de stockage est limitée à environ 100 Gbit/inch^2 [79]. Cette limitation est due à la limite du super-paramagnétisme, un effet thermique où l'aimantation (devenant thermiquement instable) peut s'inverser spontanément lorsque la taille des bits est inférieure à une certaine limite [80], risquant alors de perdre les données, donnant à un comportement volatile de la mémoire.

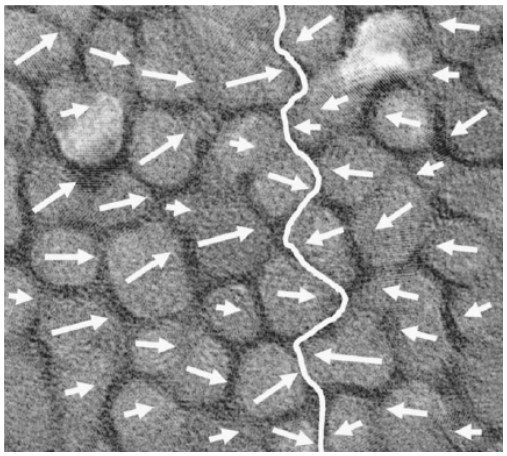

FIGURE 1.18 – [77] Illustration représentant des grains, le caractère aléatoire des orientations des axes faciles d'aimantation et de la paroi entre deux bandes magnétiques.

En effet, pour passer d'une direction d'aimantation à une autre, il faut fournir de l'énergie [8] pour surmonter la barrière énergétique, appelée "énergie de barrière" (E_b). Cette énergie, où $E_b = KV$, s'exprime en termes d'anisotropie par densité de volume (K) et volume de grain (V). En réduisant la taille d'un grain (son volume), l'énergie barrière devient plus faible et l'énergie thermique k_BT (où k_B est la constante de Boltzmann et T, la température) commence à entrer en compétition avec E_b en rendant l'aimantation thermiquement excitée. Il faut ainsi maintenir l'énergie E_b supérieure à l'énergie thermique pour exploiter efficacement l'aimantation. Nous définissons alors la capacité de rétention de l'information (ou facteur de stabilité thermique) Δ, par le rapport de E_b sur l'énergie thermique $\Delta = \frac{E_b}{k_BT}$[81, 82].

Typiquement, $\Delta > 60 - 80$ est nécessaire pour garantir une conservation fiable des données pendant une dizaine d'années dans une STT-MRAM à aimantation perpendiculaire [81]. A noter que E_b s'exprime en fonction du champ d'anisotropie (dans le plan ou

8. En enregistrement magnétique, cette énergie peut être fournie par l'application d'un champ magnétique externe à l'aide de la tête d'écriture.

perpendiculaire au plan) dont les expressions sont données en détails par Barla et al. [82]. Ces formules montrent notamment une augmentation de Δ dans le cas d'une forte anisotropie perpendiculaire. De ce fait, l'enregistrement perpendiculaire devient la solution la plus adéquate. Le remplacement des matériaux à anisotropie magnétique planaire par les matériaux à PMA a ainsi permis d'augmenter considérablement la densité de stockage dans les disques durs par exemple tout en offrant une meilleur stabilité thermique (figure 1.19). La figure 1.20 montre la tendance d'utilisation des deux types d'enregistrement indiquant la prédominance de l'enregistrement perpendiculaire depuis 2008.

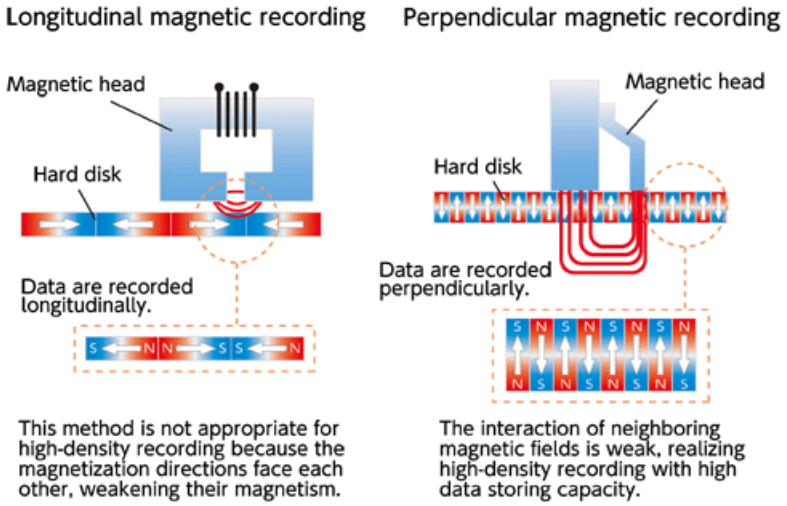

FIGURE 1.19 – [83] Comparaison entre l'enregistrement longitudinal et perpendiculaire. La PMA a offert la possibilité d'augmenter les capacités de stockage dans les disque durs.

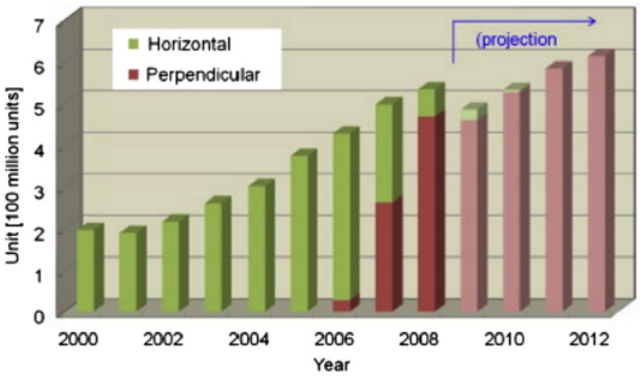

FIGURE 1.20 – [78] Illustration du passage de l'enregistrement magnétique longitudinal à l'enregistrement perpendiculaire des disques durs dans le monde.

Suite à la première mise en œuvre réussie par Toshiba d'un disque dur à aimantation perpendiculaire [79], la recherche sur les médias à PMA s'est intensifiée et a suscité une grande attention de la part des chercheurs du monde entier. Cette attention vient dans le but d'exploiter les matériaux PMA dans les composants de l'électronique de spin en général, où il est possible de moduler cette anisotropie en fonction la structure des dispositifs en couches minces, des matériaux utilisés, ainsi que de leurs interfaces.

Il a été par exemple, démontré dans les MTJs à anisotropie perpendiculaire (perpendicular MTJ, p-MTJ) l'apport de la PMA sur la réduction de la densité de courant pour un retournement de l'aimantation avec STT (par à une MTJ à anisotropie planaire). En effet, plusieurs critères garantissent le fonctionnement correct et fiable de la STT-MRAM (figure 1.21), parmi lesquels, un faible courant d'écriture, c'est-à-dire le courant nécessaire pour retourner l'aimantation de la couche libre. Un courant d'écriture plus faible garantit une faible consommation d'énergie. Le courant d'écriture est directement proportionnel à la taille du transistor de source de la cellule MRAM [78]. Par conséquent, un courant plus faible est très important pour réduire la taille du transistor afin qu'il correspond mieux à la cellule MRAM, ce qui permet d'augmenter la densité de stockage de celle-ci. Ainsi dans une STT-MRAM et pour la couche magnétique libre d'aimantation perpendiculaire (p-MTJ), le courant critique de retournement I_{C0} s'exprime [82] :

$$I_{C0\perp} = \alpha \frac{\gamma \mu_0 e}{\mu_B P} M_s V_F H_{K\perp} \tag{1.29}$$

où P est la polarisation de spin, α est l'amortissement de Gilbert, e la charge de l'électron, V_F est le volume de la couche magnétique libre et $H_{K\perp}$ le champ d'anisotropie perpendiculaire. Ainsi, pour réduire le courant critique, il faut augmenter l'efficacité du transfert de spin, qui est directement liée à la polarisation du courant [78]. De plus, il faut réduire l'aimantation à saturation et l'amortissement de Gilbert, raison pour laquelle plusieurs matériaux PMA ont été étudiés. Nous verrons par exemple dans le chapitre 3 que le $La_{2/3}Sr_{1/3}MnO_3$ pourrait être un bon candidat pour ce type d'application, grâce à son faible α et M_s en comparaison à différents matériaux FM.

FIGURE 1.21 – [81] Trois propriétés doivent être satisfaites simultanément pour un bon fonctionnement de la STT-MRAM. Dans cet exemple, il est nécessaire d'avoir une TMR $> 200\%$ pour une lecture fiable, un courant de retournement (I_c) inférieur à celui fourni par un petit transistor (I_T) pour une petite taille de cellule MRAM et un facteur de stabilité thermique $\Delta > 80$ pour atteindre un objectif de conservation stable des données.

1.4.2 Interaction Dzyaloshinskii-Moriya

L'interaction Dzyaloshinskii-Moriya (DMI) est une interaction antisymétrique qui permet au spin d'avoir une structure chirale. La DMI a été proposée pour la première fois par I. Dzyaloshinskii en 1958 [4], née de l'observation d'un ferromagnétisme faible dans des cristaux αFe_2O_3, typiquement antiferromagnétiques. Dzyaloshinskii a fourni la preuve

que l'interaction était due aux interactions relativistes du réseau de spin et du dipôle magnétique [4]. En 1960, T. Moriya a expliqué la DMI théoriquement avec le modèle d'interaction de superéchange [5]. En raison de leurs contributions fondamentales dans ce domaine, l'échange antisymétrique est alors appelé interaction Dzyaloshinskii-Moriya (DMI). La forme hamiltonienne simple de la DMI est représentée par :

$$E_{DMI} = -\vec{D}.[\vec{S}_1 \times \vec{S}_2] \tag{1.30}$$

où $\vec{D}$ est le vecteur décrivant l'orientation de l'interaction (la chiralité) et l'intensité DMI et dépend de la symétrie de la maille cristalline. S'il y a une asymétrie entre deux spins, la DMI prend une valeur non nulle ; cependant, pour le cas symétrique, la DMI est nulle. Par conséquent, la DMI émerge dans des systèmes à faible symétrie (inversion brisée).

L'interaction DMI dans les matériaux magnétiques *"massifs"* fut ensuite intensivement étudiée dans les cristaux à faibles symétries, particulièrement pour les structures B20 telles que le MnSi [84], $Fe_{0.5}Ge_{0.5}Si$ [85] ... où la DMI induit des structures d'aimantation exotiques appelées : skyrmions (figure1.22) [85, 84].

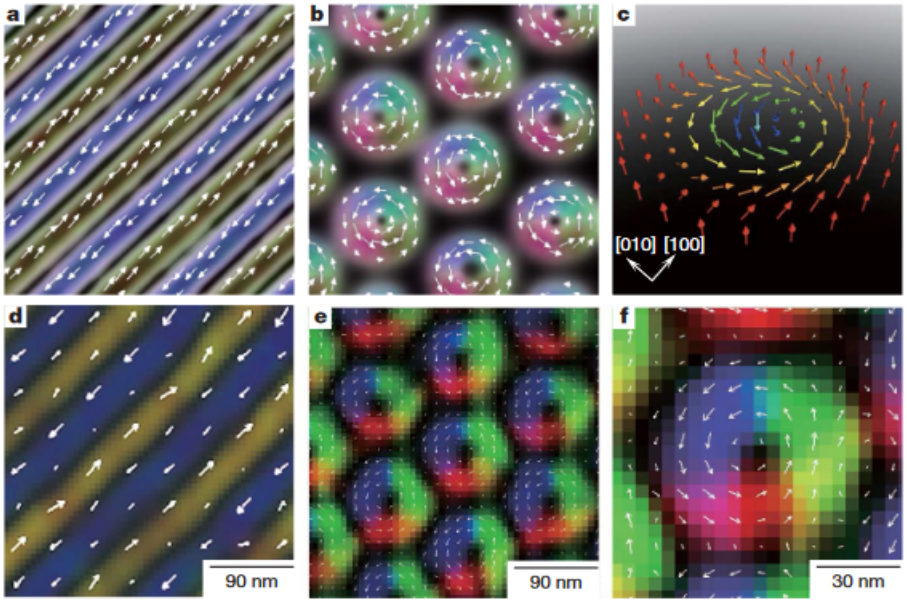

FIGURE 1.22 – [85] Textures topologiques du spin dans $Fe_{0.5}Ge_{0.5}Si$. Structures (a) hélicoïdales et (b) Skyrmions, prédites par calculs Monte-Carlo, (c) schéma de la configuration du spin dans un skyrmion. (d-f), Images de la texture du spin observées expérimentalement dans l'espace réel, (d) structure hélicoïdale, (e) structure du cristal de Skyrmion et (f) sa vue agrandie. Les flèches blanches représentent la direction de l'aimantation en chaque point .

1.4.2.1 DMI d'interface

Dans un système de multicouches ultra-minces, la DMI peut être engendrée par le biais de la brisure de symétrie à l'interface d'un film magnétique en contact avec un matériau non magnétique [86]. Dans de tels cas, la DMI est communément comprise comme un effet interfacial, souvent appelée DMI interfacial (iDMI).

1.4.2.1.1 iDMI par couplage spin-orbite

L'iDMI peut émergée dans le cas d'une interface d'un matériau ferromagnétique avec un métal lourd à fort SOC. Elle fut prédite par Crépieux et al. [87] et Fert [88] et fut par la suite confirmée par l'observation de spirales magnétiques chirales pour une monocouche de Mn déposée sur W(110) [89]. Décrite par le modèle de Fert et Levy [90], elle se présente sous la forme :

$$H_{iDMI} = -\vec{D}_{12}.[\vec{S}_1 \times \vec{S}_2] \tag{1.31}$$

L'iDMI est une interaction d'échange anti-symétrique qui favorise une orientation non colinéaire des spins voisins autours du vecteur DMI.

Dans ce modèle, Fert et Levy ont considéré que la DMI provient du SOC des impuretés [90]. En effet, un électron de conduction qui est polarisé par un ion magnétique S_1 à une position R_1 se propage vers un site d'impureté R_0 dont l'interaction spin-orbite conduit à une rotation du spin de l'électron de conduction de façon que le spin de l'électron de conduction n'est pas parallèle (ou antiparallèle) à S_1. Lorsque l'électron de conduction continue à se propager vers un autre site R_2 et interagit avec l'ion magnétique S_2 , l'interaction effective entre S_1 et S_2 n'est plus symétrique par rapport à l'échange de S_1 et S_2 [91]. On peut s'imaginer alors, que les deux atomes issus de la couche FM avec un atome du métal lourd interagissent entre eux en formant un triangle pour lequel le vecteur $\vec{D}_{12}$ est dans le plan de la couche mince et est perpendiculaire au vecteur $\vec{S}_1$ et $\vec{S}_2$ comme présenté sur la figure 1.23.

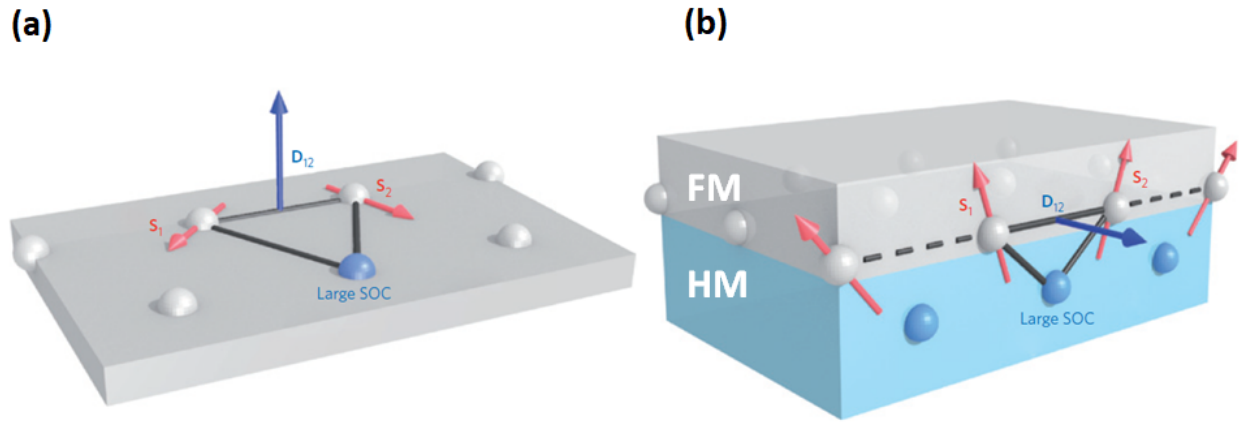

FIGURE 1.23 – [64] (a) Géométrie triangulaire qui donne lieu à une iDMI entre les deux spins voisins d'un atome non magnétique avec une grande interaction spin-orbite, (b) représentation de l'iDMI dans une structure en couches minces à l'interface entre un matériau ferromagnétique et métal lourd

L'iDMI est responsable de l'apparition des structures chirales magnétiques à l'interface HM/FM, et affecte de manière significative les propriétés énergétiques, statiques et dynamiques de ces structures [65, 38, 92]. Elle présente un grand intérêt dans les applications pour l'électronique de spin que nous aborderons plus tard. C'est pourquoi les études concernant cette interaction se sont accentuées ces dernières années, d'où une compréhension approfondie de celle-ci est nécessaire. Il est possible alors de contrôler l'iDMI (intensité et signe) par la modulation des interfaces et d'augmenter son effet en déposant deux matériaux de natures différentes prenant en sandwich une couche mince ferromagnétique [93].

Sachant que l'ordre de dépôts des couches minces induit des chiralités différentes pour les mêmes matériaux, il est alors primordial de choisir des matériaux à chiralité complémentaire pour augmenter l'iDMI [94]. A titre d'exemple, dans un système symétrique tel que Pt/Co/Pt, les signes des iDMI sont différents. En effet, l'iDMI de l'interface Pt/Co et de l'interface Co/Pt sont opposés et s'annulent donc mutuellement, produisant une iDMI totale très faible.

Jusqu'à présent la présence de l'iDMI a été observée expérimentalement et calculée numériquement dans une multitudes de systèmes de type : FM/HM [95, 96, 97], HM/FM/HM [98, 99, 100, 101]. Ces études et bien d'autres, ont démontré également la grande sensibilité de l'iDMI à l'épaisseur de la couche ferromagnétique [102], à la rugosité au niveau de l'interface avec le métal lourd [103, 104], au type de métal lourd en contacte avec le matériau FM ainsi que de l'ordre d'empilement [102, 105], et plus récemment à l'effet des contraintes sur l'augmentation de l'iDMI dans des structures de Co/Pt [106, 107]. A noter que Belabess et al. [100], ont également démontré qu'en plus de l'effet SOC et de la brisure de symétrie à l'interface FM/HM, le signe et l'amplitude de l'iDMI sont directement corrélés au degré d'hybridation des orbitales 3d-5d autour de l'énergie de Fermi, qui peut être contrôlée via la règle de Hund.

1.4.2.1.2 iDMI par effet Rashba

Il a été également démontré, la possibilité d'augmenter considérablement l'iDMI en recouvrant les heterostructures HM/FM avec une couche mince d'oxyde métallique MO_x [108, 109, 104]. En effet, il est bien connu que les oxydes massifs tels que l'hématite αFe_2O_3, peuvent présenter des structures de spin chirales qui proviennent de la DMI, il n'est donc pas surprenant d'observer cette interaction dans les interfaces en présence de l'oxygène.

Yang et al. [94] ont étudié la source d'énergie SOC pour l'iDMI dans les structure à base de MgO/Co/Pt. Ils ont notamment démontré que la source d'énergie SOC pour l'iDMI à l'interface Co/Pt est située dans la couche interfaciale de Pt [96], en accord avec le mécanisme de Fert-Levy pour l'iDMI aux interfaces métalliques, tandis qu'a l'interface MgO/Co, les source d'énergie SOC sont localisées dans la couche interfaciale de Co, indiquant un mécanisme totalement différent.

Ce mécanisme peut être dû à l'effet SOC de Rashba (RSOC) [110]. Il a été récemment proposé comme effet pouvant induire une iDMI à l'interface entre un matériau ferromagnétique et un oxyde [111, 94]. Cette contribution supplémentaire à l'iDMI peut être exprimée en fonction de [111] :

$$D = 2k_R A \qquad\qquad k_R = \frac{2\alpha_R m_e}{\hbar^2} \tag{1.32}$$

où A est la raideur de l'échange, α_R est le coefficient de Rashba qui détermine k_R, et m_e est la masse de l'électron.

Le RSOC offre non seulement la possibilité d'augmenter l'effet de l'iDMI via la couche d'oxyde supplémentaire, mais également de la contrôler via l'application d'une tension électrique [112]. En effet, en raison de la courte épaisseur de peau des métaux, le champ électrique affecte principalement l'interface FM/MO_x [113]. Ce réglage de l'iDMI avec champ électrique est primordial pour les applications en spintronique à faible puissance [66], non seulement pour les skyrmions (leurs nucléation et leurs mouvement) [113], mais également pour d'autres dispositifs basés par exemple sur les parois de domaines.

À noter que l'effet RSOC est aussi responsable de l'apparition d'une iDMI significative à l'interface d'un matériau ferromagnétique avec le graphène [114].

Une corrélation de l'iDMI avec un moment dipolaire électrique à l'interface FM/MO_x par calculs de la théorie fonctionnelle de la densité (Density Functional Theory, DFT), a aussi été établie [115]. Ce moment dipolaire électrique est le résultat de l'hybridation des orbitales 3d du matériau ferromagnétique et des orbitales p de l'oxygène. Ainsi, il serait de même possible de contrôler le signe et l'amplitude de l'iDMI en changeant le recouvrement en oxygène.

Sachant que les études expérimentales approfondies de l'iDMI pour ces interfaces manquent encore, une partie de cette thèse est consacrée à cette étude en fonction du degré de l'oxydation de l'interface FM/MO_x et sera détaillée dans le chapitre 6.

1.4.2.2 Effets de l'iDMI sur les propriétés magnétiques

Dans les multicouches minces présentant une iDMI suffisamment grande, plusieurs phénomènes peuvent apparaitre et sont particulièrement intéressants selon l'application souhaitée pour la spintronique.

1.4.2.2.1 L'iDMI pour les parois de domaines magnétiques

Pour réduire son énergie totale, un matériau ferromagnétique, a tendance à se diviser spontanément en différentes zones d'aimantation uniforme, chaque zone où l'aimantation a une direction identique est appelée *"domaine magnétique"*. La variation de la direction d'aimantation dans ces zones n'étant pas brusque, elle varie progressivement d'un domaine à l'autre (moins couteux en énergie) et la zone de transition qui sépare deux domaines est ainsi appelée *"paroi de domaine magnétique"* [24].

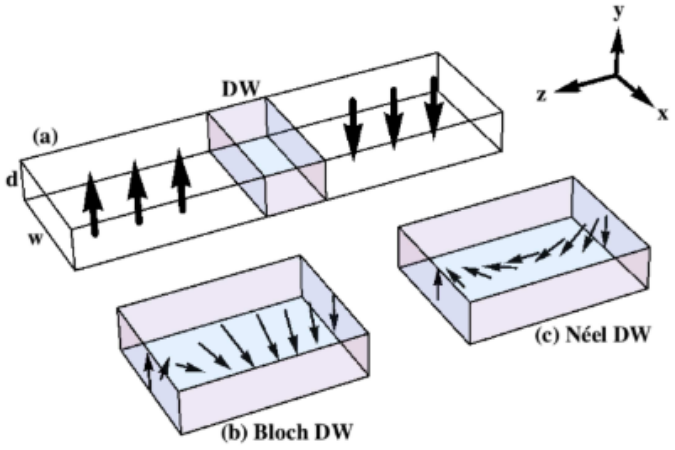

FIGURE 1.24 – [116] (a) Schéma d'un nanoruban rectangulaire, de largeur w et d'épaisseur d. Les flèches indiquent la direction de l'aimantation. La paroi de domaine peut être de type (b) Bloch ou (c) Néel. Dans la paroi de Bloch, l'aimantation tourne perpendiculairement à l'axe longitudinal du fil, dans le plan X-Y. Dans la paroi de Néel, l'aimantation tourne le long de l'axe longitudinal du fil, dans le plan-z.

Deux cas particuliers de parois de domaines existent, en plus des configurations intermédiaires : les parois de Bloch pour lesquelles l'aimantation tourne autour d'un axe

défini perpendiculairement au plan de la paroi, où bien les parois de Neel où l'aimantation tourne autours d'un axe dans le plan de la paroi (figure 1.24).

Dans une structure en multicouches, pour une iDMI suffisamment grande, celle-ci induit des textures chirales pour les parois de domaine aux interfaces. Les parois de domaine de type Néel sont privilégiées [95] et ont été vérifiées expérimentalement par microscopie électronique à faible énergie polarisée en spin [117] et par microscopie de Lorentz [118]. La stabilisation de ce type de parois permet alors un retournement plus rapide des spins augmentant ainsi la vitesse des parois de domaine allant jusqu'à à 300 m/s [119] (figure 1.25). La vitesse des parois à saturation est alors proportionnelle à l'amplitude de l' iDMI à l'interface (D_s) [119] :

$$v_{max} = \frac{\pi}{2}\gamma\frac{D_s}{M_s t} \tag{1.33}$$

où t est l'épaisseur de la couche ferromagnétique, M_s est l'aimantation à saturation, et γ est le rapport gyromagnétique.

La possibilité de contrôler la vitesse des parois par le biais de l'ajustement de l'interaction iDMI (et de son champ effectif associé) a ouvert un nouveau champ de recherche, où les parois de domaines magnétiques ont été étudiées de manière intensive au cours des dernières années, à la fois expérimentalement [119, 120, 121] et théoriquement [122, 123]. Cet intérêt est dû au fait que les parois de domaine sont considérées comme des candidates prometteuses pour les applications technologiques telles que les portes logiques [124], et supports de bits d'information dans une mémoire de type racetrack [125] avec transfert ultra-rapide des données.

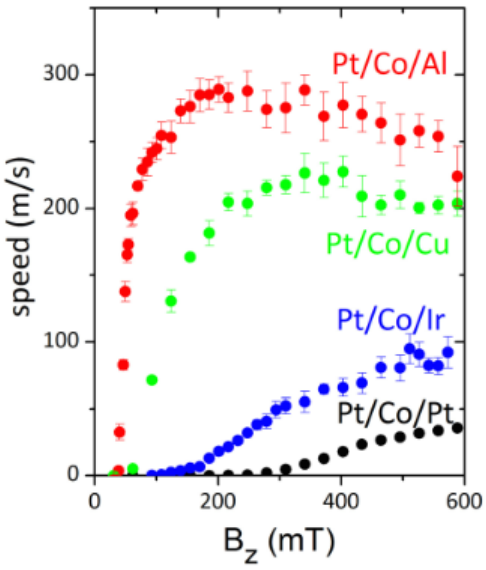

FIGURE 1.25 – [119] Vitesse de la paroi de domaines en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan, mesurée pour Pt/Co/Pt, Pt/Co/Ir, Pt/Co/Cu et Pt/Co/Al. La vitesse de saturation augmente à mesure que l'iDMI augmente.

Mémoires Racetrack

Ce type de mémoire fut proposé en 2008 par S.Parkin et se base sur le mouvement des parois de domaines pour le stockage de l'information [125]. Cette mémoire est composée

de naonorubans ferromagnétiques disposés verticalement (figure1.26). En appliquant une impulsion électrique, les parois de domaines se déplacent devant un élément de lecture ou d'écriture. L'avantage de cette mémoire réside alors dans le fait que c'est les données qui se déplacent et que les éléments de lecture/écriture sont fixes, aucun composant mécanique n'est nécessaire, contrairement aux disques durs commercialisés de nos jours. Ceci permettrait alors d'atteindre des vitesses de traitement plus rapides par rapport aux mémoires concurrentes en contrôlant la vitesse des parois de domaines. Il est possible aussi d'obtenir des densités de stockage plus grandes en augmentant le nombre des nanodomaines. Ainsi, en fonction du nombre et de la vitesse de ces parois de domaine, le temps d'accès moyen de cette mémoire serait de 10 à 50 ns, contre 5 ms pour un disque dur et peut-être quelques 10 ns pour les MRAM.

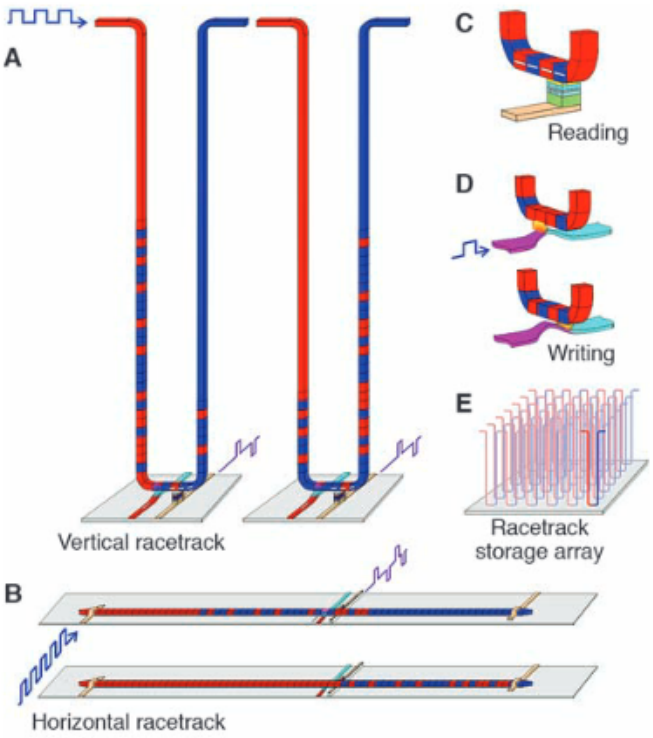

FIGURE 1.26 – [125] Mémoire de type "racetrack" sous forme de nanoruban ferromagnétique où l'information est stockée dans les domaines magnétiques. Les parois de domaines se déplacent par impulsion électrique devant un élément de lecture ou d'écriture. (A) déplacement de parois, (B) une configuration horizontale utilisant un nanoruban parallèle au plan du substrat, (C) lecture, (D) écriture, (E) les réseaux de racetrack sont construits sur une puce pour permettre un stockage à haute densité.

1.4.2.2.2 L'iDMI pour les ondes de spin

L'interaction iDMI induit la non réciprocité de la propagation des ondes de spins qui est proportionnelle à l'amplitude de l'interaction iDMI [126]. Cette effet permet de mesurer directement l'iDMI dans les multicouches par spectroscopie Brillouin, en relevant les fréquences de deux ondes de spin se propageant dans deux directions opposées. La technique BLS ainsi que les mesures de l'iDMI seront détaillé dans le chapitre suivant.

1.4.2.2.3 L'iDMI pour les structures de spins

L'une des conséquences les plus connues de la présence de l'iDMI dans les matériaux magnétiques sont les structures en spin telles que les skyrmions. Un skyrmion magnétique est un arrangement chiral de spin (dizaines de nanomètres) souvent décrit comme un vortex [64, 92, 127, 128]. Cette appellation est un hommage au physicien britannique Tony Skyrme qui a établi la théorie de l'existence de telles configurations depuis 1960 [129]. Pour un skyrmion, la rotation des spins est déterminée par le vecteur ($\vec{D_{12}}$) introduit précédemment. Les skyrmions de type Néel (figure 1.27 (a)) sont engendrés en présence d'une iDMI d'interface, autrement la configuration est de type Bloch pour la DMI de volume (figure 1.27 (b)).

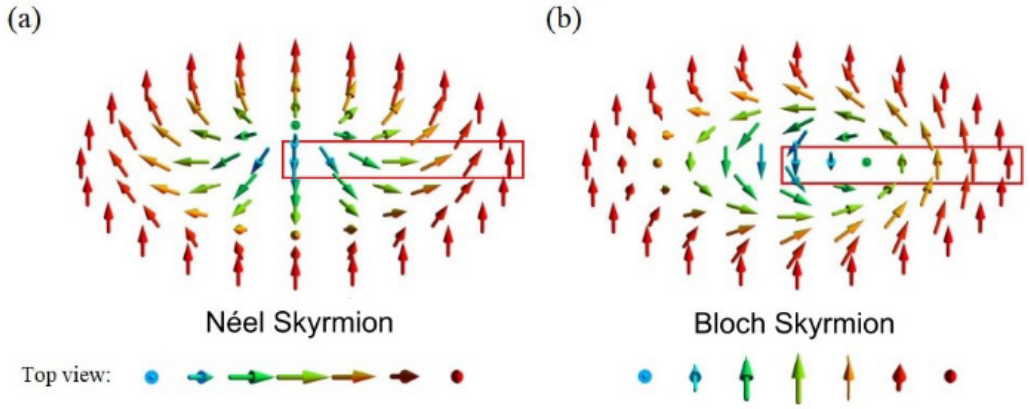

FIGURE 1.27 – [130] Deux types de textures de skyrmions de spin. (a) type Néel, (b) type Bloch.

Les skyrmions ont été observés que depuis quelques années. Ils ont été d'abord mis en évidence dans les structures cristallines de type B20 telles que MnSi [131], FeGe [132] et $Fe_{1-x}Co_xSi$ [85] où l'interaction DMI due à l'absence de centre d'inversion, stabilise des skyrmions de type Bloch. Les skyrmions furent ensuite observés dans les structures de films ultra-minces épitaxiés de type HM/FM, HM/FM/HM [133, 134]. L'iDMI dans ce cas stabilise des syrmions de type Neel. Toutefois, dans ces systèmes, les skyrmions ne sont stabilisés qu'à très basses températures (<30K) avec des champs magnétiques élevés. Dans un soucis d'application pour la spintronique, il est alors nécessaire de stabiliser des skyrmions à températures ambiantes et avec de faibles champs magnétiques appliqués pour une possible industrialisation.

Ainsi, des structures de type HM/FM/MO_x s'avèrent les plus intéressantes en raison de l'observation de skyrmions à température ambiante et à plus faible champs magnétiques par rapport aux structures citées précédemment. Il a été alors possible d'observer des skyrmions pour différentes combinaisons de tricouches, notamment dans les structures de type Ta/CoFeB/TaOx [135], Pt/CoFeB/MgO [136], et Pt/Co/MgO [137]. La figure 1.28 montre des skyrmions observés à température ambiante pour un empilement de Ta(10 nm)/CoFeAl(1,8 nm)/MgO(2 nm). Leurs tailles moyenne de 100 nm, montre clairement les dimensions manométriques de ces objets.

L'intérêt porté par les chercheurs sur les skyrmions trouve son origine dans la possibilité de remplacer les domaines magnétiques dans les mémoires racetracke par les skyrmions

[138]. En effet comparés au domaines magnétiques, les skyrmions sont de dimensions très inférieures, et peuvent être déplacés avec un moindre coût énergétique. Par conséquent, il est possible d'augmenter massivement la densité de stockage en considérant un skyrmion comme base d'un bit informatique. Les dimensions des skyrmions, la capacité de les stabiliser, de les déplacer ainsi que de contrôler leurs vitesses deviennent alors nécessaires et sont les problématiques de plusieurs projets de recherches. La première étude a démontré des vitesses de skyrmions de $\sim$ 10 m/s dans les structures de Ta/CoFeB/TaOx tandis que les plus récentes démontrent des vitesses atteignant $\sim$ 100 m/s dans les structures de type Pt/CoFeB/MgO [136]. Cependant, cette technologie se heurte en plus des problèmes cités précédemment au soucis de distinguer entre les bits "0" et "1" afin de lire/écrire et de transporter l'information. En effet, il a été démontré l'impossibilité de garder des distances inter-skyrmions stables et/constantes, ce qui conduit à ne pas avoir une distance contrôlée entre les bits, provoquant alors des erreurs [139].

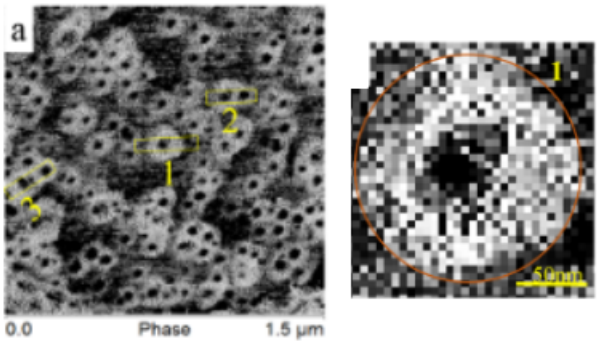

FIGURE 1.28 – [140] (à gauche) Image obtenue par microscopie à force magnétique (MFM) d'un film mince Ta(10 nm)/CoFeAl(1.8 nm)/MgO(2 nm) mettant en évidence des skyrmions magnétiques à température ambiante et à champ magnétique nul. (à droite) Vue agrandie d'un skyrmion individuel.

L'une des solutions serait d'utiliser des skyrmions de formes différentes pour représenter les deux bits d'information. A l'heure où cette thèse est rédigée, une équipe d'un laboratoire suisse a réussi pour la première fois à réaliser un système complexe de multicouches [9] [141] dans lequel deux phases de skyrmions différentes coexistent à température ambiante : des skyrmions incomplets de petits diamètres existant uniquement dans les couches ferromagnétiques supérieure et inférieure et des skyrmions tubulaires de plus grand diamètres traversant l'échantillon entier (figure 1.29). Le plus grand Skyrmion génère également un champ magnétique plus fort par rapport au second permettant de clairement les distinguer. Ainsi, dans les futurs dispositifs ceci permettra de faciliter la distinction entre les bits "0" et "1", dans le but de favoriser un fonctionnement efficace de ses mémoires.

9. système hybride de plusieurs superposition de matériaux ferromagnétique/ferrimagnétique/ferromagnétique

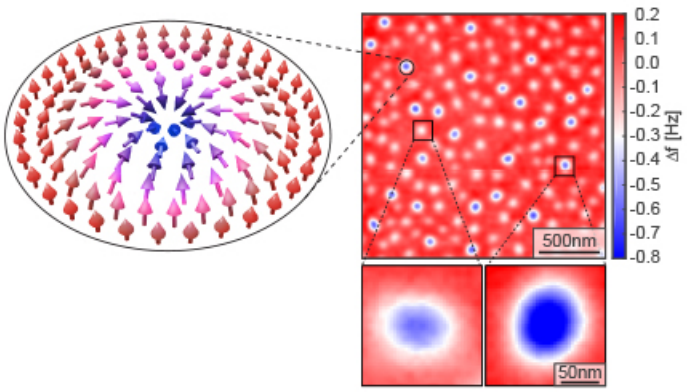

FIGURE 1.29 – [141] A droite, images de microscope à force magnétique (MFM). Ces images montrent l'existence des deux types de skyrmions, distingués sur la base de leurs intensités. A gauche, schéma représentant l'un des skyrmions.

1.5 Conclusion du chapitre 1 et objectifs de la thèse

Ce chapitre a mis l'accent sur toutes les notions de base en magnétisme des couches minces afin de comprendre la suite de ce manuscrit. Il a notamment mis en évidence le rôle clé de l'iDMI dans le développement de la spinorbitronique et des futurs dispositifs associés. Pour cette technologie l'association de la PMA et de l'iDMI sont les ingrédients essentiels.

Les composants électroniques standards sont basés sur la manipulation de charge électrique. La spintronique est un domaine émergeant qui utilise le spin des électrons comme degré de liberté supplémentaire pour générer de nouvelles fonctionnalités et pourrait être donc utilisé comme vecteur d'information. Ainsi, les dispositifs spintroniques transporteraient ou manipuleraient des informations via un courant polarisé en spin. Diverses applications sont en cours d'investigation, comme les spin-LED, les spin-transistors, les mémoires racetrack, ainsi que les mémoires magnétiques à accès aléatoire qui sont déjà commercialisées. Les mémoires racetrack se basent sur les skyrmions, représentent l'une des voies les plus intéressantes pour les mémoires ultra-rapides et ultras-denses, cependant beaucoup de progrès sont encore attendus afin de fabriquer les premiers prototypes procédant aux premières commercialisations.

D'autres part, les progrès récents dans les procédés de fabrication de films minces, ont conduit à la possibilité de faire croître de multicouches ultraminces (quelques nanomètres à 1 ou 2 plans atomiques) avec des interfaces de haute qualité renforçant l'importance de la spintronique et conduisant à la réalisation de nouveaux composants ainsi qu'à l'amélioration des performances de certains composants tels que les disques durs avec l'invention des capteurs GMR.

Ainsi la physique des interfaces, et particulièrement le magnétisme aux niveau des multicouches ultra-minces, n'ont cessés de prendre de l'ampleur depuis des décennies, dans le but de développer la recherche fondamentale et par conséquent les dispositifs spintroniques, où tout un champ de recherche reste encore à explorer.

Savoir moduler les interfaces, en développant de nouveaux matériaux, en variant les épaisseurs des matériaux magnétiques/non magnétiques déposés, en modifiant l'ordre d'empilement dans les heterostructures magnétiques, ainsi que de la température de re-

cuit relèvent d'une importance majeur pour les phénomènes observés aux niveaux de ces interfaces et ouvre la voie à la possibilité de contrôler leurs amplitude et leurs signe en modulant ces interfaces.

Cependant, il est encore nécessaire de mieux comprendre ces effets d'interface notamment l'iDMI, la PMA et le pompage de spin (chapitre 2), où des zones d'ombre subsistent encore. Ainsi, il reste difficile de prédire clairement quels matériaux, quelles combinaisons de matériaux, quels empilement, ainsi quelles épaisseurs des films FM et NM sont les plus efficaces pour augmenter l'effet de l' iDMI et de la PMA. De même, est-il plus efficace de recuire les échantillons ? Pour quelle température ? Quel est l'effet de l'oxygéne sur l'iDMI ? l'interface FM/MO_x contribue t-elle largement à l'iDMI comme pour l'interface HM/FM ? Pourrait-on s'en passer de cette interface dans l'avenir, puisque les MTJ à base de FM/I/FM démontrent déjà un bon taux TMR ? Comment pourrait-on augmenter l'efficacité du pompage de spin ? Quel matériau en dehors du Pt permet d'obtenir une grande PMA et un bon taux de pompage de spin ? Une structure en multicouches périodique est-elle également efficace pour augmenter ces effets d'interfaces ? Quelle est la corrélation entre ces trois effets ? Enfin est-il possible de contrôler ces effets par le biais des interfaces, où nous parlerons même d'ingénierie d'interface ?

L'objectif de cette thèse est d'étudier l'iDMI, l'anisotropie magnétique et le pompage de spin dans les systèmes FM/NM et leur corrélation. Une attention particulière est donnée aux effets des épaisseurs des matériaux FM et NM, du recuit, de l'ordre d'empilement et de la concentration en oxygène.

Nous espérons ainsi contribuer très modestement au développement de la spintronique, répondre à quelques unes des questions posées ci-dessus et pourquoi pas à l'avancement de la spin-orbitronique.

Chapitre 2

Techniques expérimentales et méthodologie de mesures

Ce chapitre est consacré à la description des techniques principales utilisées pour la caractérisation des échantillons et l'étude des différents effets d'interface mentionnés dans le chapitre 1. Dans un premier temps, nous décrirons brièvement les techniques de dépôt en couches minces et de caractérisation structurale. Puis dans un second temps, nous détaillerons les techniques de mesure des propriétés statiques et dynamiques de l'aimantation. Une attention particulière sera consacrée à la résonance ferromagnétique (ferromagnetic resonnance, FMR) et à la diffusion Brillouin de la lumière (Brillouin light scattering, BLS) qui sont au cœur de cette thèse. La description des échantillons sera présentée au fur et à mesure dans les chapitres suivants.

2.1 Techniques de dépôts

La croissance d'un film mince magnétique de haute qualité nécessite un contrôle précis de la vitesse de dépôt, de l'épaisseur du film à déposer et, dans de nombreux cas, une composition exacte des deux ou plusieurs matériaux dans un seul film. La maîtrise d'une telle précision est l'aboutissement de décennies de développement dans de nombreuses branches de la science et des technologies liées à la croissance des couches minces.

Il existe plusieurs techniques de dépôt en couches minces et sont principalement divisées en deux grandes catégories, à savoir le dépôt physique en phase vapeur *"physical vapor deposition, PVD"* et le dépôt chimique en phase vapeur *"chemical vapor deposition, CVD"*. Pour la croissance de films minces magnétiques ainsi que des métaux et de leurs alliages, les techniques PVD ont démontré une grande efficacité dont des applications à l'échelle industrielle[142]. La figure 2.1 montre quelques une de ces techniques, qui sont classées en fonction de l'intervalle de pression de vide. Il s'agit de l'évaporation thermique, du dépôt par pulvérisation cathodique et de l'épitaxie par jets moléculaires (Molecular Beam Epitaxy, MBE). La plage de pression du vide pour chaque méthode de dépôt détermine les mécanismes de transport des matériaux pendant la croissance du film, et par conséquent détermine également la vitesse et la qualité de dépôt.

Les échantillons étudiés au cours de cette thèse, ont été déposés en collaboration, par plusieurs chercheurs de différents laboratoires. Ces échantillons ont été élaborés par pulvérisation cathodique magnétron et ablation laser pulsé.

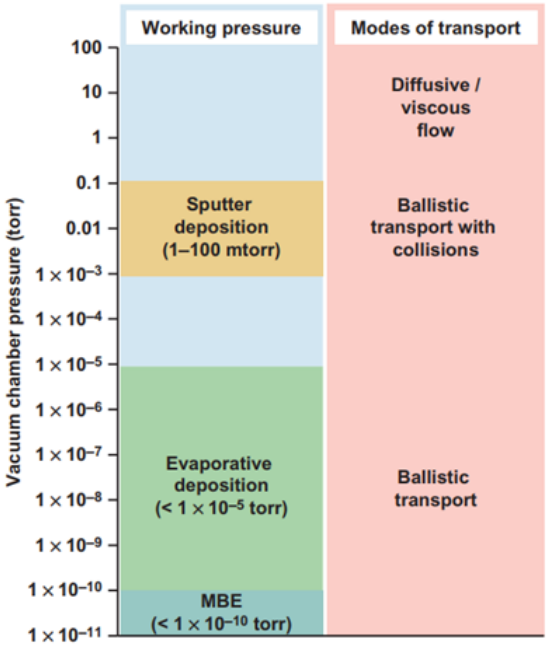

FIGURE 2.1 – [143] Diagramme montrant la classification des méthodes de dépôt pour la croissance de films minces magnétiques en fonction de la plage de pression et des modes de transport des matériaux impliqués.

Dans la suite, ont s'intéressera uniquement à ces deux techniques que nous présenterons.

2.1.1 Pulvérisation cathodique magnétron

Les multicouches déposées par cette technique ont été élaborées via les collaborations avec :

- Le centre de supraconductivité, spintronique et sciences de surfaces de l'université de Cluj-Napoca en Roumanie, Dr. Mihai Gabor et son équipe.
- Laboratoire Spintec, université de Grenoble-Alpes, Dr. Hélène Béa et son équipe.
- Département de sciences des matériaux et d'ingénierie, Université de Ioannina en Grèce, Prof. Ioannis Panagiotopoulos et son équipe.
- Université de Caen-Normandie, Groupe de Recherche en Informatique, Image et Instrumentation de Caen (GREYC), Dr laurence Méchin et son équipe.

2.1.1.1 Principe

La méthode de dépôt par pulvérisation cathodique est une technique très répandue de nos jours, elle fait partie des techniques de dépôt de têtes de lecture magnétiques dans l'industrie des disques durs [143]. Comparée aux autres techniques, elle présente l'avantage de la rapidité du dépôt qui peut se mesurer en $Å/s$ et qui permet de contrôler facilement l'épaisseur des couches minces à déposer en ajustant le temps de dépôt, avec une meilleur uniformité de l'épaisseur des films déposés. Elle permet également la possibilité de déposer différents matériaux sur de larges surfaces (métaux et leurs alliages, matériaux

diélectriques...) avec une reproduction précise de la composition et de la stœchiométrie, et sous un bon vide de l'ordre de 1-100 mtorr (figure 2.1). La pulvérisation cathodique est un phénomène dans lequel des atomes sont arrachés d'une cathode et déposés sur une anode à l'aide d'un plasma froid composé d'électrons, d'ions et de neutrons (figure 2.2).

Dans ce type d'installation, le matériau à déposer (matériau cible)[1] est introduit dans une enceinte maintenue sous vide, et installé sur une cathode maintenue à une tension négative de quelques kV. En face de la cible (à quelques centimètres), un substrat est déposé sur l'anode qui est maintenue à un potentiel nul. En introduisant un gaz neutre dans l'enceinte (l'argon), le champ électrique créé entre les deux électrodes provoque son ionisation et apparait sous forme d'un nuage luminescent. Les ions Ar^+ sont alors attirés par la cathode et entrent en collisions avec les atomes de la cible qui sont pulvérisés et déposés sur le substrat. A noter que le plasma est activé en fournissant une source de tension en courant continu (direct current, DC) ou radiofréquence (RF)[2] à travers la cathode et l'anode.

Afin d'augmenter la vitesse de dépôt, c'est à dire entretenir le plasma, un magnétron (ensemble d'aimants permanents, par exemple, NdFeB) est installé à la cathode. Ceci permet de superposer au champ électrique, un champ magnétique perpendiculaire à celui-ci. Les trajectoires des électrons secondaires (éjectés de la cathode) s'enroulent alors autours des lignes de champ magnétique et sont confinés à proximité de la cible ce qui augmente le taux d'ionisation du gaz et donc accroît le rendement du dépôt. Cette technique permet également de travailler avec des gaz sous plus faibles pressions accordant une meilleure pureté des dépôts.

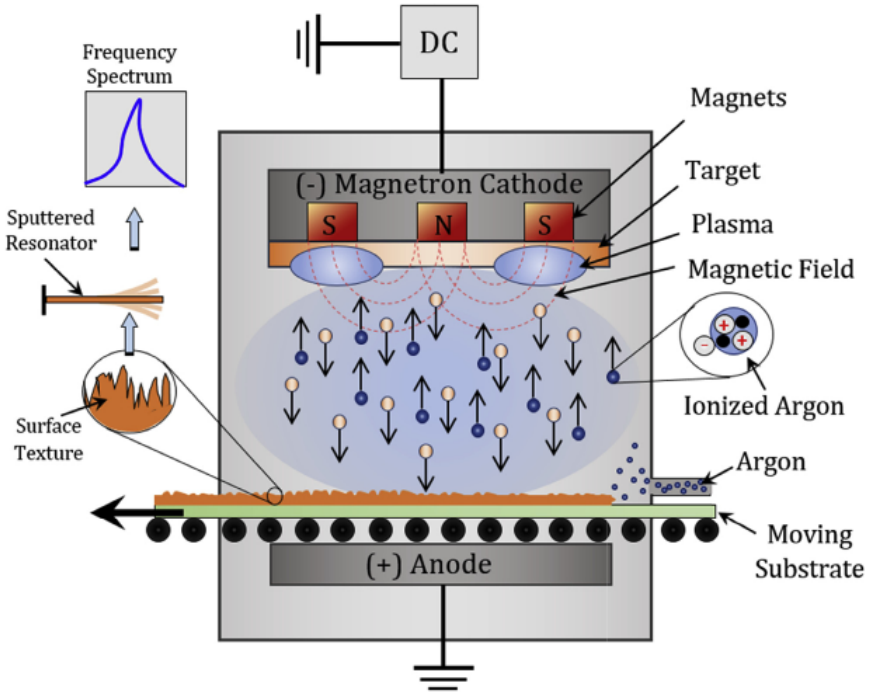

FIGURE 2.2 – [144] Schéma de principe d'un bâti de dépôt de pulvérisation cathodique magnétron par DC. Les ions Ar^+ sont représentés en bleu tandis que les atomes pulvérisés sont en orange.

1. Généralement une plaque de quelques millimètres d'épaisseur
2. Privilégiée pour pulvériser les matériaux diélectriques

2.1.2 Ablation laser pulsé (PLD)

Les couches-minces déposées par cette technique (Pulsed Laser Deposition, PLD) ont été élaborées via la collaboration avec l'université de Caen-Normandie, GREYC, Dr laurence Méchin et son équipe.

2.1.2.1 Principe

Cette technique fait partie également de la famille de dépôt en couches minces par PVD. Elle fut développée depuis les années 60 avec l'idée d'utiliser l'énergie photonique pour évaporer un matériau solide pour le dépôt en couches minces [145] (figure 2.3). Elle permet de déposer des matériaux aux propriétés remarquables tels que les supraconducteurs.

Un faisceau laser pulsé et de grande énergie (quelques centaines d'eV) est focalisé à travers plusieurs lentilles sur une cible qui peut être solide ou liquide. Le laser frappe la cible et les particules à haute énergie cinétique sont éjectées de la cible sous forme d'atomes, de molécules et d'ions formant alors un plasma avec une forme caractéristique appelée "Plume" (insert figure 2.3). Ce plasma plume se dilate rapidement en s'éloignant de la surface de la cible. Un substrat est placé en face de celle-ci, et les espèces de la plume se condensent sur sa surface. Il s'en suit donc la nucléation et la croissance d'un film homogène. L'avantage de cette technique réside dans le fait que la stœchiométrie de la cible est conservée durant le dépôt (l'ablation vaporise tous les éléments de manières identiques).

Apriori relativement simple à réaliser, le dépôt dépend néanmoins de plusieurs paramètres qu'il faut savoir contrôler, comme la puissance du laser et sa fréquence d'impulsion, sous ou sans une atmosphère gazeuse, la nature du substrat et sa température, la distance cible-substrat....etc.

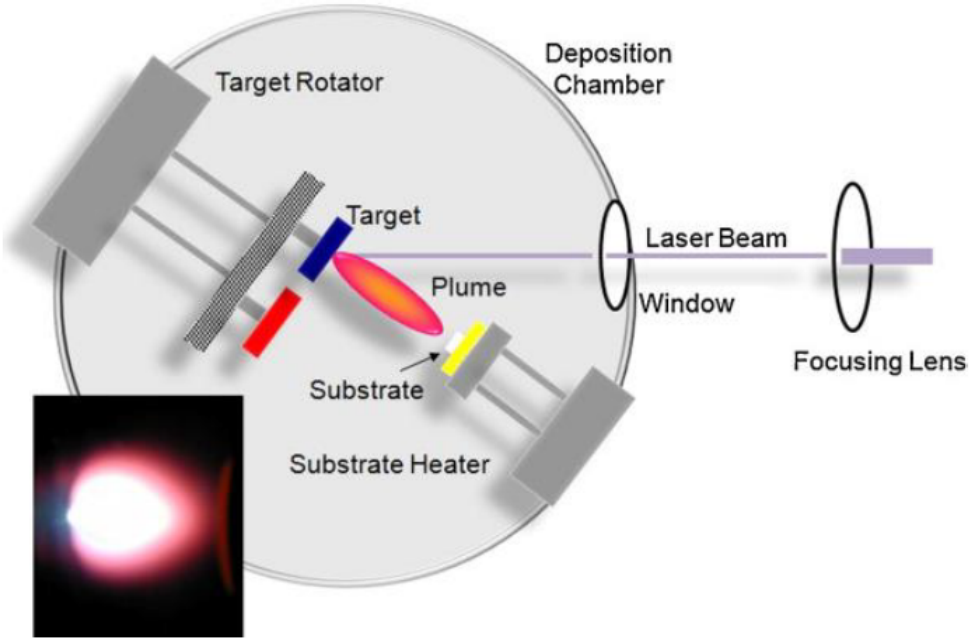

FIGURE 2.3 – [146] Schéma représentant le dispositif de dépôt en couches minces par PLD. L'insert montre le plasma en forme de plume.

Comme pour toute technique de dépôt, il est important de contrôler le mode de croissance des films en temps réel. La diffraction d'électrons à haute énergie par réflexion (reflection high energy electron diffraction, RHEED) est une technique *in situ* en PLD et MBE, qui est utilisée pour la surveillance en temps réel du processus de croissance des films. Dans cette technique, un faisceau d'électrons à haute énergie est dirigé vers la surface de l'échantillon en incidence rasante ($< 5°$). Le faisceau ne traverse que quelques couches atomiques d'épaisseur et les électrons sont alors diffractés par le réseau cristallin de la surface en formant des figures de diffractions fluorescentes sur un écran monté à l'opposé du canon à électrons.

Pendant la croissance du film, le signal RHEED montre un comportement oscillatoire directement lié au taux de croissance (figure 2.4). Une surface plane et lisse avant la croissance donne le signal maximal. Les oscillations sont le résultat des changements périodiques de la rugosité de la surface en croissance. Chaque maximum indique la croissance d'une monocouche complète (figure 2.4).

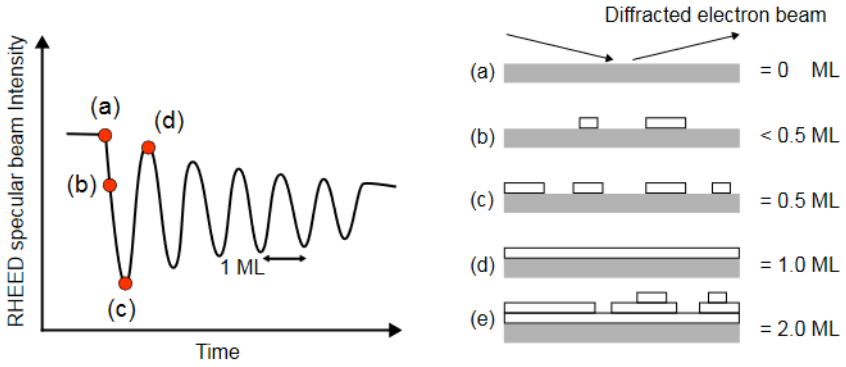

FIGURE 2.4 – [147] Diagramme des oscillations de RHEED. (a) avant la croissance, (c) minimum d'intensité RHEED correspondant à la moitié du recouvrement d'une monocouche,(d) croissance complète d'une seule monocouche.

2.2 Techniques de caractérisation par rayons X

Dans cette section, les techniques utilisées pour caractériser la qualité et la structure des multicouches sont présentées.

2.2.1 Diffraction des rayons X

La caractérisation structurale utilisant cette technique fut réalisée via notre collaboration avec : le centre de supraconductivité, spintronique et sciences de surfaces de l'université de Cluj-Napoca en Roumanie, Dr. Mihai Gabor et son équipe.

2.2.1.1 Principe de fonctionnement

La caractérisation structurale des échantillons par diffraction des rayons X (X-ray diffraction, XRD) est une technique très souvent utilisée pour déterminer la structure cristallographique des matériaux, les contraintes, et les relations d'épitaxie entre le film et le substrat. Elle permet de caractériser des matériaux qu'ils soient sous formes massifs, dépôt, ou en poudre.

Cette technique utilise un rayonnement électromagnétique où l'énergie varie entre quelques centaines d'eV à des dizaines de MeV et dont la longueur d'onde est de l'ordre de grandeur des distances interatomiques (quelques dizaines d'angström). Le faisceau de rayons X qui rencontre un cristal est diffracté par son réseau (atomes), et des interférences constructives et destructives sont alors produites (interférences entre les faisceaux diffractés). Dans le cas des interférences constructives "Pics de diffraction", les rayons X sont diffractés par la famille des plan d'indice de Miller (hkl) selon la loi de Bragg :

$$2d_{hkl}\sin\theta = n\lambda \tag{2.1}$$

où d_{hkl} est la distance entre les plans atomiques "distance interréticulaire", θ est l'angle d'incidence des rayons X par rapport au plan cristallographiques, λ est la longueur d'onde des rayons X, n est l'ordre de diffraction. Afin de satisfaire cette loi, il est possible de faire varier l'angle d'incidence θ et de diffraction 2θ, un diffractomètre permet alors de faire tourner l'échantillon dans les 3 dimensions de l'espace donnant lieu à des scannes ($\theta/2\theta$) (figure 2.5). Le signal est collecté sous forme d'un diffractogramme qui présente des pics à des angles bien spécifiques de diffraction. Chacun de ces pics est une véritable signature de l'arrangement des atomes à l'intérieur du cristal.

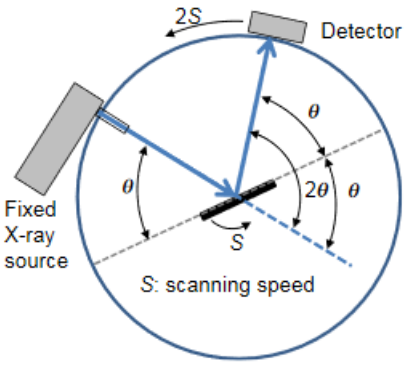

FIGURE 2.5 – [148] Configuration d'un diffractomètre $\theta/2\theta$.

2.2.2 Réflectivité des rayons X

La caractérisation par réflectivité rayon X (X ray reflectivity, XRR) fut réalisée via notre collaboration avec le département de science des matériaux et d'ingénierie, université de Ioannina en Grèce, Prof. I. Panagiotopoulos et son équipe.

2.2.2.1 principe de fonctionnement

La XRR est un outil utilisé pour la caractérisation des surfaces, et des couches minces (même en multicouches) afin d'obtenir des informations sur les épaisseurs (mesurables entre 1 et 200 nm), la densité et la rugosité des surfaces.

Lorsque les rayons X sont appliqués sur la surface plane d'un matériau à des angles d'incidence rasants, la réflexion totale se produit à un angle en dessous d'un angle critique noté θ_c, extrêmement petit. Plus l'angle d'incidence des rayons X est élevé par rapport à θ_c , plus les rayons X sont transmis profondément dans le matériau. La réflectivité des rayons X diminue alors rapidement avec l'augmentation de l'angle d'incidence, au-dessus de θ_c. Ainsi, le rapport des rayons X réfléchis spéculairement diminue proportionnellement à θ^4.

Pour obtenir une courbe de réflectivité, il faut mesurer l'intensité réfléchie en fonction de plusieurs angles d'incidence. Dans le cas de multicouches composées de plusieurs dépôts de films minces, la courbe de réflectivité (figure 2.6) montre des oscillations causées par l'interférence des rayons X réfléchis (constructives et destructives). Ces oscillations sont appelées franges de Kiessing [149]. L'oscillation dépend de l'épaisseur du film : plus le film est épais, plus la période des oscillations est courte. Quand à la rugosité, plus elle est grande, plus le taux de décroissance de la réflectivité des rayons X est rapide (figure 2.6).

Afin de d'extraire les informations recherchées, la courbe expérimentale de réflectivité est comparée à la courbe théorique, calculée sur la base d'un modèle de structure en couches. La solution avec les valeurs optimales des paramètres d'épaisseur, de densité et de rugosité de l'interface dans le film multicouche est obtenue lorsque le résidu entre les données de réflectivité mesurées et calculées atteint un minimum. Dans la plupart des cas, les valeurs de ces paramètres sont obtenues par la méthode des moindres carrés. Dans les cas de structures plus complexes, l'analyse par la transformée de Fourier s'avère la plus efficace.

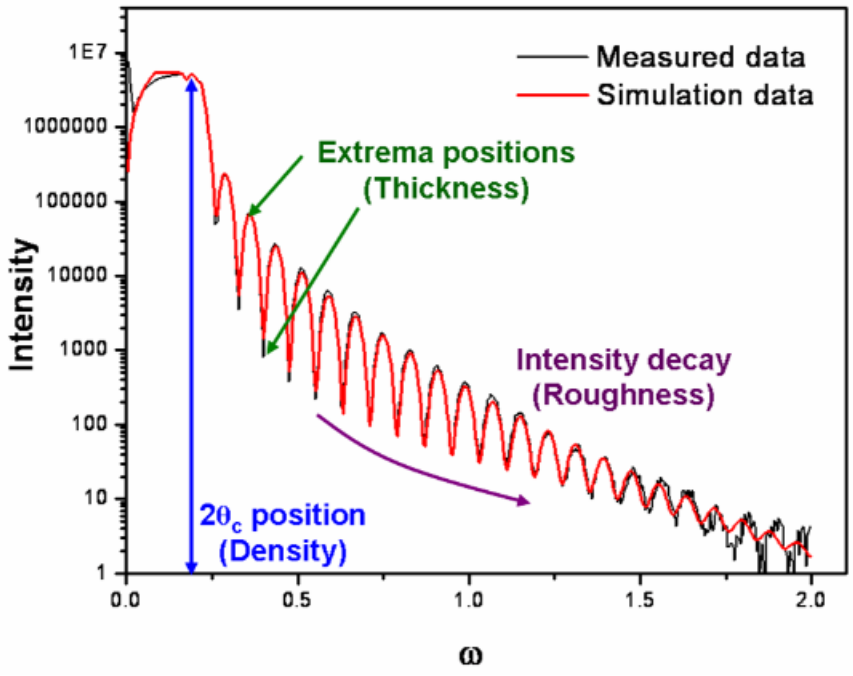

FIGURE 2.6 – [150] Courbe XRR typique d'un film mince sur un substrat. La densité, l'épaisseur et la rugosité du film sont obtenues respectivement à partir de l'angle critique, de la période d'oscillation et de la décroissance de la courbe.

2.3 Technique de mesures statiques de l'aimantation

Dans cette section, nous décrirons la technique expérimentale exploitée pour l'évaluation des propriétés statiques de l'aimantation.

Afin de mesurer les moments magnétiques dans un matériau ferromagnétique, il existe plusieurs méthodes directes et indirectes : les mesures de forces issues d'un matériau soumis à un champ magnétique non uniforme, les mesures de l'induction magnétique aux alentours du matériau et les mesures des propriétés optiques du matériau par effet Kerr magnéto-optique (Magneto-Optical Kerr Effect, MOKE)... Parmi ces méthodes, la magnétométrie à échantillon vibrant (Vibrating Sample Sagnetometer, VSM) se révèle être très efficace.

2.3.1 La magnétométrie à échantillon vibrant

Initialement introduite par Foner [151], la VSM est une technique de mesure directe du moment magnétique d'un échantillon en fonction d'un champ magnétique externe appliqué. La mesure peut se faire dans deux directions différentes, à savoir en appliquant un champ magnétique dans le plan de l'échantillon (in-plane, IP) ou en perpendiculaire (out-of-plane, OOP).

2.3.1.1 Principe de fonctionnement

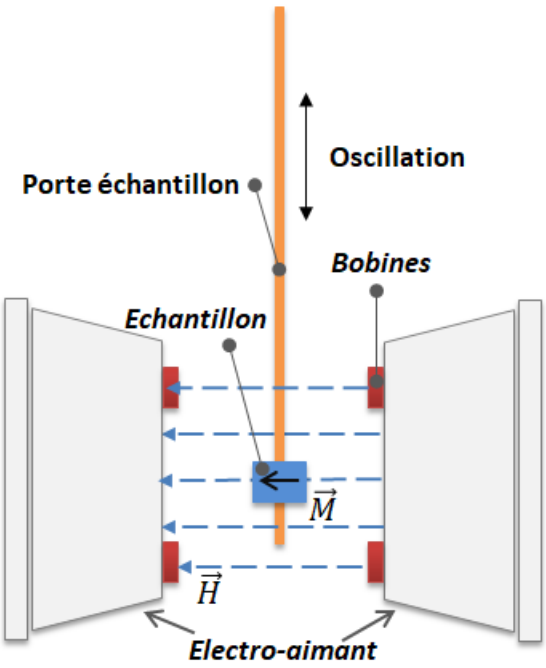

FIGURE 2.7 – Schéma du dispositif expérimental VSM.

La VSM est basée sur la loi de Faraday qui stipule qu'une force électromagnétique est générée dans une bobine lorsqu'il y a un changement de flux à travers cette dernière. Dans le dispositif de mesure, un échantillon est placé à l'extrémité d'une tige qui est centrée entre deux pièces polaires d'un électroaimant pouvant générer un champ magnétique de grande homogénéité (uniforme) et capable de fixer la direction de l'aimantation (figure 2.7). L'échantillon est ensuite soumis à une vibration verticale par l'intermédiaire de hauts-parleurs. L'échantillon vibre alors à une fréquence fixe. Des bobines sont montées sur les pôles de l'électroaimant (figure 2.7). Ainsi, la variation du flux magnétique provenant

du mouvement vertical de l'échantillon aimanté induit une tension électrique dans les bobines qui peut être directement mesurée. La tension dans une seule bobine de détection s'exprime comme :

$$U_{ind} = -\frac{\partial \Phi}{\partial t} \tag{2.2}$$

où Φ est le flux magnétique. Le champ magnétique appliqué étant constant, celui-ci n'a aucun effet sur la tension (pas d'induction de force électromotrice), mais est nécessaire pour aimanter l'échantillon.

La mesure de cette tension permet d'obtenir la valeur du moment magnétique par calibration avec un échantillon de référence. En effet, toujours sur la même tige, un échantillon dont le moment magnétique est connu, est placé entre deux bobines de références. L'aimantation de l'échantillon est déterminée en comparant les deux tensions.

2.3.2 Cycles d'hystérésis

Comme cela a été présenté dans le chapitre précédent, un matériau ferromagnétique soumis à un champ magnétique externe voit sa direction d'aimantation s'aligner dans la direction du champ appliqué. Cependant, lorsque le champ magnétique est supprimé, l'aimantation ne s'annule pas, au contraire, une partie de l'alignement demeure dans le matériau, on dit qu'il s'est aimanté. Si plusieurs champs magnétiques sont appliqués, l'aimantation trace une boucle appelé "cycle d'hystérésis". Ceci est le résultat de la relation non linaire entre l'aimantation et le champ magnétique.

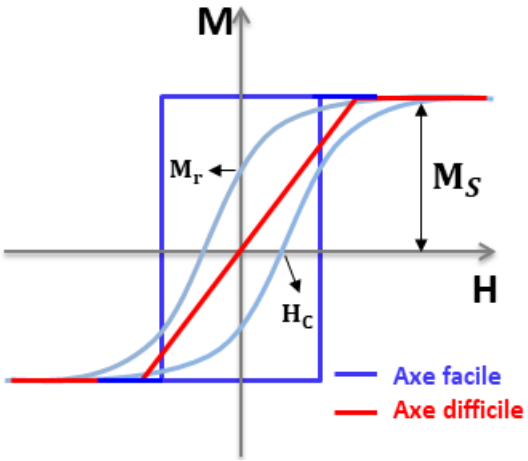

FIGURE 2.8 – Cycle d'hystérésis pour une couches mince ferromagnétique obtenu par VSM.

Au départ, l'aimantation augmente rapidement au fur et à mesure de l'augmentation du champ magnétique (les domaines magnétiques dont l'aimantation est parallèle au champ H croissent) jusqu'à atteindre une valeur maximale, appelée "aimantation à saturation " M_s, c'est à dire l'instant où tous les moments magnétiques sont alignés dans la même direction (un seul domaine magnétique). Si par la suite le champ magnétique est réduit, M suit une courbe différente.

Dans un cycle d'hystérésis, en plus d'accéder à la valeur de M_s, plusieurs autres paramètres peuvent êtres extraits (figure 2.8) :

- L'aimantation rémanente M_r qui correspond à champ magnétique appliqué nul $H = 0$.
- Le champ coercitif H_c qui correspond au champ magnétique pour lequel l'aimantation est nulle $M = 0$. On parle de matériau ferromagnétique doux, pour les matériaux à faible champ coercitif, tandis que pour les valeurs élevées de H_c, le matériau est un ferromagnétique dur. Ainsi les matériaux ferromagnétiques doux ont tendance à avoir de fins cycles d'hystérésis tandis que pour les ferromagnétiques durs, les cycle d'hystérésis sont larges.
- Le champ d'anisotropie H_k nécessaire pour la saturation de l'aimantation.
- La forme du cycle renseigne également sur l'axe de facile aimantation. Lorsque la valeur de M_r/M_s est voisine de 1, on parle de direction de facile aimantation. Sinon on parlera d'axe difficile aimantation pour lequel l'aimantation varie linéairement en fonction de H.

Les mesures VSM sont les premières à être effectuées. A partir des courbes d'hystérésis, nous obtenons M_s et le champ de saturation dans le plan, essentiels pour les mesures BLS, pour lesquelles il est nécessaire d'appliquer un champ magnétique planaire saturant afin d'éviter une aimantation non homogène dans le matériau. Les valeurs des moments magnétiques à saturation et par unité de surface, sont ensuite tracées en fonctions des épaisseurs du matériau ferromagnétique afin d'extraire l'épaisseur de la couche magnétique morte (magnetic dead layer, t_d). Il est indispensable de prendre en compte cette couche morte, afin d'obtenir les valeurs réelles (correctes) des constantes d'anisotropie, de l'iDMI et pour la caractérisation de la dépendance en épaisseur de l'amortissement magnétique.

La partie suivante est consacrée à la description des techniques et des bancs expérimentaux qui nous ont permis d'aborder le comportement de la dynamique de l'aimantation : il s'agit de la FMR et de la BLS. Nous introduirons également le pompage de spin, troisième effet d'interface étudié au cours de cette thèse.

2.4 Techniques expérimentales de la dynamique de l'aimantation

Les premières études de la dynamique de l'aimantation ont été historiquement entreprises depuis la fin du 19 ème siècle. Aujourd'hui et depuis quelques dizaines d'années, les techniques d'investigation de la dynamique de l'aimantation se sont considérablement développées. Cette investigation concerne particulièrement les matériaux magnétiques nanostructurés en raison de leurs applications potentielles dans le domaine de la spintronique [152, 153].

La dynamique de l'aimantation peut se produire sur une large gamme d'échelles de temps. La figure 2.9 montre différents types de dynamiques de l'aimantation avec leurs échelles de temps caractéristiques (τ). Ce temps dépend des dimensions du systèmes magnétique, des ses paramètres et du type d'excitation. La dynamique de l'aimantation est alors classée en deux grandes familles en fonction de leurs temps caractéristiques : rapide (τ sur quelques nanosecondes à des des centaines de picosecondes) et ultra-rapide (τ sur quelques sub-picosecondes). Dans les structures magnétiques en couches minces de quelques nanométres d'épaisseur, le processus du retournement de l'aimantation s'inscrit dans la famille de la dynamique rapide de l'aimantation.

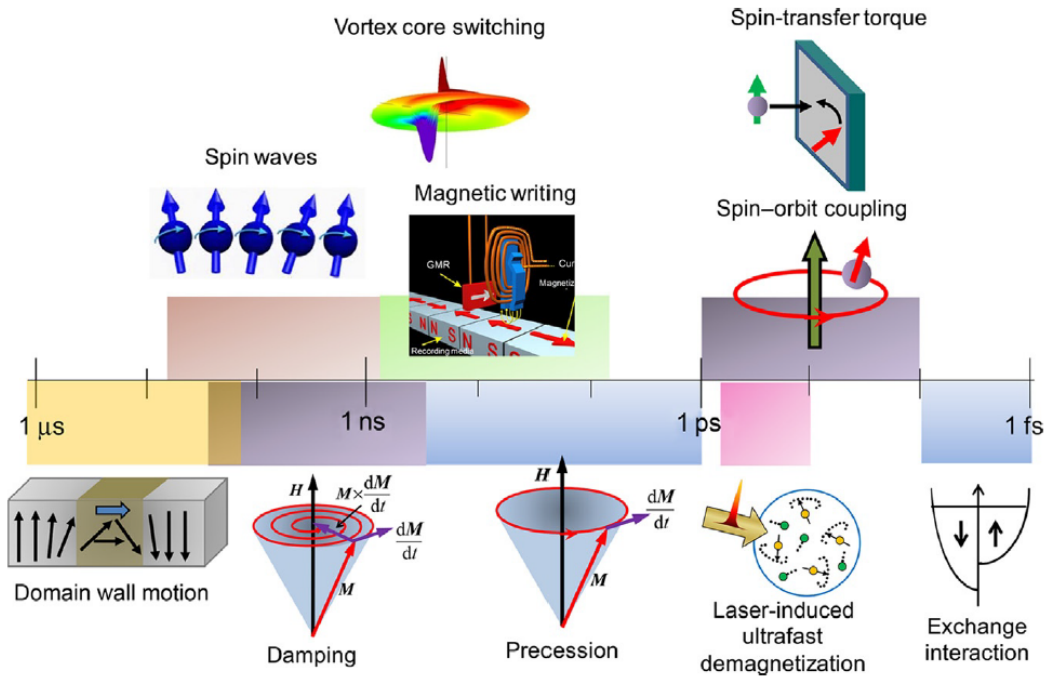

FIGURE 2.9 – [152] Schéma montrant les différentes échelles de temps caractéristiques de divers types de la dynamique de l'aimantation.

Afin d'étudier la dynamique de l'aimantation, plusieurs méthodes existent et sont classées en deux groupes : méthodes en domaine temporel et domaine fréquentiel [152, 153, 154].

Les techniques temporelles consistent à mesurer la réponse temporelle de l'aimantation suite à une excitation extérieure (laser impulsionel ou impulsion de champ magnétique ultra-courte). Parmi ces techniques, nous pouvons citer l'effet Kerr résolu en temps (time resolved MOKE, TR-MOKE) [152, 153], la magnétométrie inductive micro onde par impulsion (Pulsed Inductive Microwave Magnetometer, PIMM) [155], le dichroisme circulaire magnétiques des rayons X [156], qui donne l'évolution du spin et du moment orbital des électrons etc.

En général, dans les expériences TR-MOKE, un laser ultrarapide est utilisé pour réaliser une expérience pompe-sonde, pour laquelle chaque impulsion laser est divisée en impulsions de pompe et de sonde qui sont utilisées pour exciter et détecter la dynamique de l'aimantation, respectivement [153]. En faisant varier le délai de l'impulsion de la sonde par rapport à la pompe, l'évolution temporelle de la réponse magnétique de l'échantillon peut être cartographiée en enregistrant le signal MOKE à chaque délai. Cette technique offre une bonne sensibilité grâce aux hautes résolutions temporelle et spatiale.
D'un autre coté, la technique PIMM qui est basée sur l'utilisation d'un oscilloscope pour mesurer la dynamique de l'aimantation est bien adaptée à l'étude de la dynamique des capteurs tel que les têtes de lectures pour l'enregistrement magnétique [157].

Les techniques fréquentielles se basent sur la mesure de la fréquence de précession de l'aimantation. Au cours de cette thèse, nous avons exploité ces techniques par le biais de la FMR et la BLS afin d'investiguer les propriétés magnétiques d'interfaces, reliées au couplage spin-orbite. Dans la suite une description détaillée de celles-ci est présentée.

2.4.1 La résonance ferromagnétique

Le phénomène de résonance ferromagnétique par l'observation des modes uniformes, fut réalisée pour la première fois par Griffiths [158]. La théorie portant sur ce phénomène fut ensuite entièrement développée par Kittel [159]. Cette technique, considérée comme la plus efficace pour l'investigation des ondes de spin, est principalement exploitée pour l'étude des anisotropies magnétiques, de la relaxation de l'aimantation et des phénomènes associés ainsi que pour la détermination du rapport gyromagnétique et du couplage intercouche dans le cas de différentes couches ferromagnétiques déposées.

2.4.1.1 Principe de fonctionnement

Le principe général des techniques FMR repose sur l'utilisation de la combinaison entre un champ micro onde $(\vec{h}_{rf})$[3] et un champ magnétique statique. Le petit champ $\vec{h}_{rf}$ excite, à une fréquence donnée, l'aimantation globale du matériau qui se met à précesser autour du champ effectif $\vec{H}_{eff}$ (figure 2.10). Le champ magnétique extérieur, appliqué simultanément que le champ $\vec{h}_{rf}$ et perpendiculairement à celui-ci, permet de changer la fréquence de précession. Lorsque la fréquence de précession coïncide avec la fréquence du générateur microonde (fréquence d'excitation), une résonance FMR se produit, un maximum d'absorption de l'énergie microonde est observé. La puissance totale absorbée par l'échantillon est ensuite mesurée, permettant de remonter à partir des spectres de résonance FMR obtenus, au différentes informations sur les propriétés magnétiques du matériau. A noter qu'il existe deux méthodes pour atteindre la résonance ferromagnétique, à savoir le balayage en champ, qui consiste à varier le champ magnétique statique tout en gardant la fréquence fixe, ou bien, le balayage en fréquence, en fixant le champ magnétique statique tout en variant la fréquence du champ $\vec{h}_{rf}$.

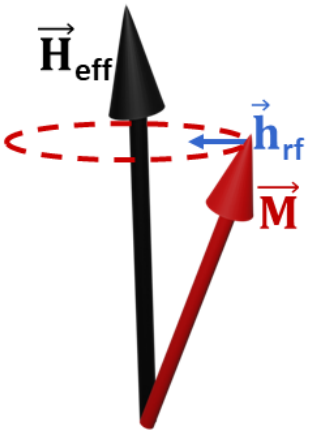

FIGURE 2.10 – Schéma montrant l'excitation de l'aimantation par un champ microonde dans une expérience FMR.

Plusieurs variétés de FMR existent : FMR en cavité (classique) et FMR large bande [154], telle que la FMR avec analyseur de réseau vectoriel (vector network analyzer FMR, VNA-FMR). Dans la FMR en cavité, l'échantillon est placé dans une cavité résonante, dans le domaine microonde et on mesure la puissance réfléchie. La mesure est extrêmement sensible car le facteur de qualité de la cavité est généralement très élevé, ce qui permet

3. Ce type de champ est utilisé dans le but d'atteindre la résonance, car la fréquence de précession des matériaux ferromagnétique se situe dans le domaine microonde de 0.3 à 300 GHz

d'étudier des couches minces de quelques nanomètres d'épaisseur. Cependant, cette mesure n'est pas en large bande car la résonance de la cavité est quasi-fixe. De plus le balayage en champ modifie la structure en domaines du matériaux magnétique [160].

La VNA-FMR est une technique très efficace de balayage en fréquence, pour mesurer la résonance magnétique et qui permet de conserver la structure en domaines. L'échantillon est placé sur un guide d'ondes coplanaire (coplanar waveguide, CPW) qui est connecté au VNA. Celui-ci sert à la fois de source et de détecteur du signal radiofréquence, et compare les signaux entrants et sortants (leur amplitude et leur phase), ce qui permet de mesurer l'absorption de l'échantillon en fonction de la fréquence.
La variante à FMR à ligne microruban (microstrip line FMR, MS-FMR) a été utilisée au cours de cette thèse [161].

2.4.1.2 Montage expérimental FMR du LSPM

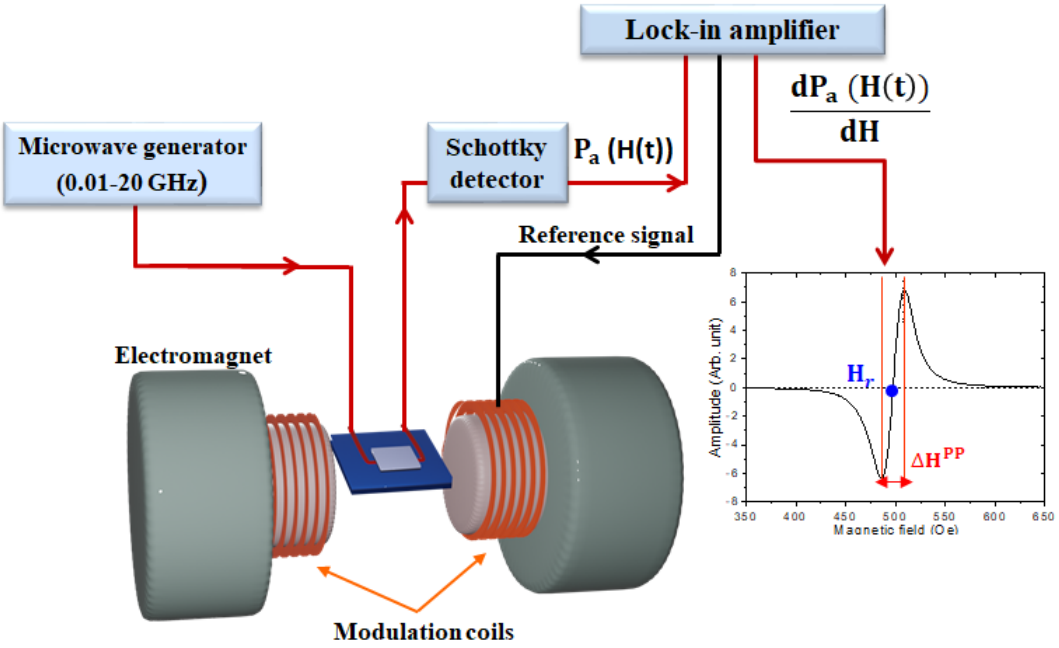

FIGURE 2.11 – Schéma du dispositif expérimental FMR à ligne micro-ruban (MS-FMR).

La MS-FMR de notre laboratoire, présentée sur la figure 2.11, a été mise en place et montée par Mohamed Belmeguenai et Fatih Zighem. Ce banc expérimental est constitué d'une ligne micro-ruban (en cuivre) connectée à une générateur microonde (radiofréquence) large bande (0.01-20GHz). L'échantillon, placé sur la ligne micro-ruban, voit l'aimantation de la couche du matériau ferromagnétique excitée par un champ $\vec{h}_{rf}$. La puissance transmise est mesurée par une diode Schottky. La ligne micro-ruban et l'échantillon sont insérés à l'intérieur de l'entrefer d'un électroaimant où règne un champ magnétique statique. Des bobines de modulation sont également placées à l'intérieur de l'électroaimant, afin de moduler le champ magnétique statique par un champ alternatif de 4 Oe d'amplitude et de fréquence de 170 Hz. Cette modulation permet l'utilisation d'une détection synchrone qui améliore par la suite le rapport signal/bruit. L'ensemble des équipements de la FMR est contrôlé par un ordinateur, via programme Labview opérant sous Windows. Cette interface permet de contrôler en temps réel l'intensité et le pas du champ magnétique ainsi que la fréquence d'excitation.

Selon les propriétés magnétiques souhaitant explorées, dans le laboratoire LSPM, deux bancs de mesures FMR sont mis à disposition :

— Banc en configuration perpendiculaire ou planaire (figure 2.12) : possibilité d'appliquer des champs magnétiques statiques allant jusqu'à 1.6 T. Selon les mesures qu'on souhaite accomplir, l'ensemble ligne microruban et échantillon peut tourner de 0° à 180° par rapport à un axe dans son plan, permettant alors d'appliquer le champ magnétique perpendiculairement ou dans le plan de la couche ferromagnétique (échantillon) tout en mesurant des fréquences de précession jusqu'à 20 GHz. Avec ce banc FMR, il est possible de déterminer le facteur gyromagnétique, l'aimantation effective, et de mesurer les dépendances angulaires hors du plan des champs de résonance et de la largeur de raie FMR.

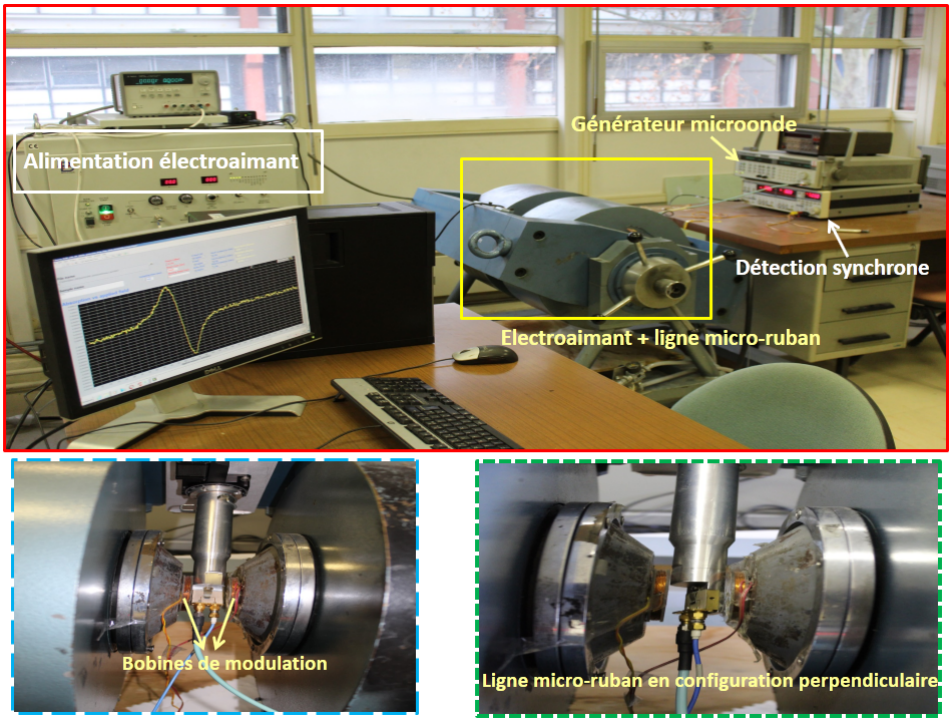

FIGURE 2.12 – Banc de mesure FMR du LSPM, en configuration prpendiculaire ou planaire.

— Banc en configuration planaire (figure 2.13) : possibilité d'appliquer des champs magnétiques dans le plan jusqu'à 0.22 T, et de mesurer des fréquences de précession dans la gamme de 0.01-20 GHz. Les mesures avec ce banc permettent d'étudier les anisotropies planaires et de mesurer les dépendances angulaires des champs de résonance et de la largeur de raie FMR. Il permet également la détermination de l'aimantation effective.

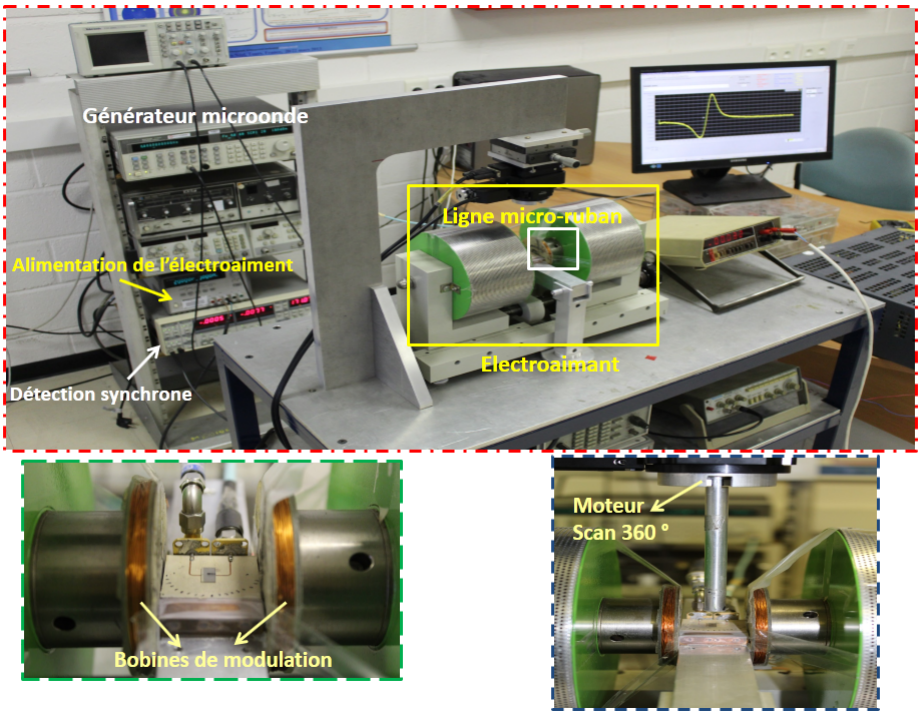

FIGURE 2.13 – Banc de mesure FMR du LSPM, en configuration planaire ne nécessitant pas de forts champs magnétiques.

2.4.1.2.1 La ligne micro-ruban

La propagation du signal radiofréquence dans la FMR, se fait par le biais de la ligne microruban, où l'échantillon est placé sur celle-ci afin d'exciter son aimantation. Comme le montre la figure 2.14, cette ligne est composée d'un plan de masse, sur lequel un séparateur diélectrique (substrat en saphir Al_2O_2) et un ruban en cuivre y sont déposés. L'impédance caractéristique s'écrit :

$$Z_c = \sqrt{\frac{L}{C}} = \frac{h}{w}\sqrt{\frac{\mu}{\varepsilon_{eff}}} \tag{2.3}$$

où h est la hauteur du séparateur diélectrique, w la largeur de la ligne micro-ruban, et ε_{eff} est la constante diélectrique effective.

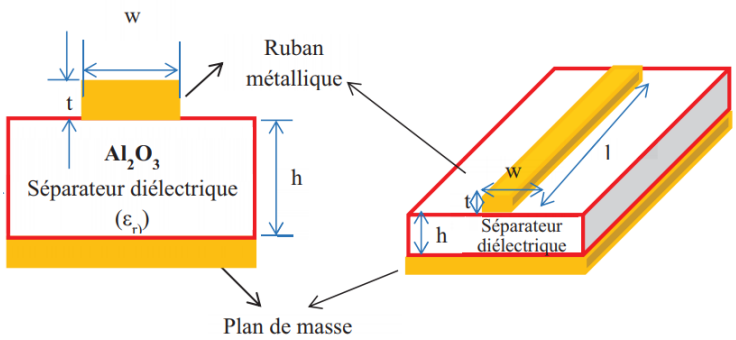

FIGURE 2.14 – [162] Schéma représentant la ligne microruban FMR.

2.4.1.2.2 Modulation FMR

Un spectre FMR représente la puissance du signal absorbé (P_{abs}) par la couche mince magnétique, en fonction du champ magnétique extérieur appliqué (H). Cependant, P_{abs} pourrait s'accompagner d'un faible rapport signal/bruit, ce qui rendrait les spectres FMR peu exploitables. Ainsi, afin d'améliorer le rapport signal/bruit, un amplificateur à détection synchrone, permettant de moduler le champ magnétique statique est utilisé dans les bancs FMR. La modulation se réalise, en appliquant un faible champ alternatif $\vec{h}_{ac}$ de pulsation ω, en plus du champ magnétique statique :

$$H(t) = H + h_{ac}\cos(\omega t) \qquad \text{où } H \gg h_{ac} \tag{2.4}$$

et la puissance absorbée par l'échantillon se détermine par :

$$P_{abs}(H(t)) = P_{abs}(H + h_{ac}\cos(\omega t)) \tag{2.5}$$

De plus, nous avons également un autre signal appelé signal de référence V_{ref}, qui possède la même fréquence que h_{ac} et de phase ϕ :

$$V_{ref}(H(t)) = \cos(\omega t + \phi)) \tag{2.6}$$

L'identification est ensuite réalisée par la multiplication de l'équation 2.5 (développée en série de Taylor) par l'équation 2.6 :

$$\begin{aligned} V_{ref}P_{abs}(H(t)) = P_{abs}(H)\cos(\omega t + \phi)\frac{dP_{abs}}{dH} + h_{ac}\cos\omega t\cos(\omega t + \phi) + ... = \\ P_{abs}H\cos(\omega t + \phi) + \frac{h_{ac}}{2}\cos\phi\frac{dP_{abs}}{dH} + \frac{h_{ac}}{2}(\cos 2\omega t)^2\frac{dP_{abs}}{dH} \end{aligned} \tag{2.7}$$

Enfin, le signal est filtré par un filtre passe-bas, ayant une fréquence de coupure de $\frac{\omega}{2}$, qui permet de garder que la composante continue du signal : $\frac{h_{ac}}{2}\cos\phi\frac{dP_{abs}}{dH}$. Il en résultat qu'au final, on détecte la dérivée de la puissance absorbée $\frac{dP_{abs}}{dH}$.

Un spectre FMR typique, obtenu par balayage en champ, est représenté sur la figure 2.15. A partir de ce spectre, deux informations importantes sont extraites : le champ de résonance H_r, et la demie largeur à mi-hauteur FMR, ΔH. Le champ de résonance dépend des champs internes, de ses variations en fonction de la fréquence d'excitation et de la direction du champ magnétique externe appliqué. ΔH est liée à l'amortissement de l'aimantation et sa dépendance en fonction de la direction du champ magnétique appliqué et de la fréquence d'excitation permet de caractériser les mécanismes intrinsèques et extrinsèques de l'amortissement magnétique. H_r et ΔH sont extraits à partir de l'ajustement des spectres FMR expérimentaux par une Lorentzienne (equation 2.8), où le champ de résonance est obtenu par le centre de symétrie du spectre, et ΔH est la demie largeur à mi-hauteur [163] :

$$\frac{dP_{abs}}{dH} = A_0\frac{-2\Delta H(H - H_R)\cos(\delta) + [\Delta H^2 - (H - H_R)^2]\sin(\delta)}{[\Delta H^2 - (H - H_R)^2]^2} + A_1 \tag{2.8}$$

où δ désigne l'angle de combinaison entre les composantes dispersives et dissipatives, A_0 est l'amplitude du signal, A_1 est le décalage, H_R est le champ de résonance et ΔH est la demi-largeur à mi-hauteur de la raie FMR.

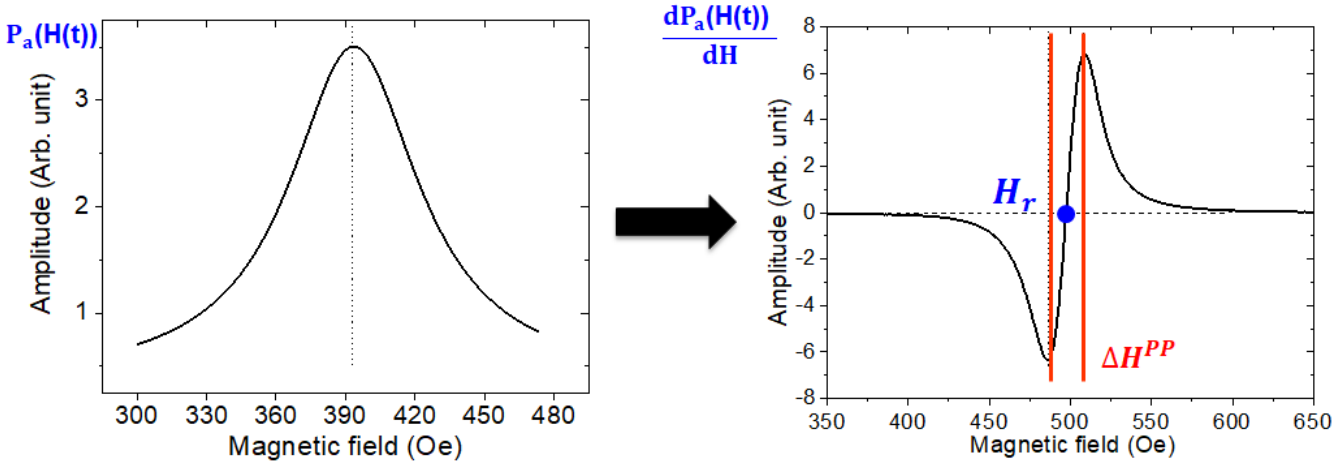

FIGURE 2.15 – Spectres FMR dans le cas de mesure de la puissance absorbée (à gauche),et par dérivée de la puissance absorbée (à droite).

2.4.1.3 Méthodologie de mesure FMR

Avant de présenter les résultats d'étude des effets d'interface (chapitres suivants), il est important de détailler la méthode suivie pour les mesures FMR, ainsi que les modèles utilisés afin d'extraire les informations nécessaires à l'investigation de la dynamique de l'aimantation.

Pour une couche mince ferromagnétique, le système de coordonnées utilisé est représenté sur la figure 2.16. φ_H et φ_M, désignent l'angle dans le plan du champ magnétique appliqué H et de l'aimantation M, respectivement, par rapport aux bords du substrat. Tandis que θ_H et θ_M représentent l'angle entre le champ H et l'aimantation M respectivement, par rapport à la normale au plan de l'échantillon :

$$\vec{H} = H \begin{pmatrix} \cos\varphi_H \sin\theta_H \\ \sin\varphi_H \sin\theta_H \\ \cos\theta_H \end{pmatrix} \qquad \vec{M} = M_s \begin{pmatrix} \cos\varphi_M \sin\theta_M \\ \sin\varphi_M \sin\theta_M \\ \cos\theta_M \end{pmatrix} \tag{2.9}$$

Également dans ce système de cordonnées, les énergies magnétiques d'un film mince ferromagnétique s'expriment par :

— Énergie de Zeeman :

$$E_{zeeman} = -HM_s[\sin\theta_M \sin\theta_H \cos(\varphi_M - \varphi_H) + \cos\theta_M \cos\theta_H] \tag{2.10}$$

— Énergie démagnétisante : à partir de l'équation 1.10, nous obtenons :

$$E_{démagntisant} = -2\pi M_s^2 \sin^2\theta_M \tag{2.11}$$

— Énergie d'échange : en supposant que $\vec{M}$ est uniforme, c'est à dire le champ magnétique statique est suffisant pour saturer l'aimantation $\Rightarrow E_{échange} = 0$

— Énergie d'anisotropie : dans cette étude, on considère des couches ferromagnétiques présentant des anisotropies planaires uniaxiale et d'ordre 4, faisant respectivement des angles φ_u et φ_4 avec l'un des côtés de substrat. L'énergie d'anisotropie est ainsi caractérisée par la contribution de :

$$E_{anisotropie} = K_\perp \sin^2\theta_M - K_{\perp 2}\cos^4\theta_M - \tfrac{1}{2}(1+\cos 2(\varphi_M-\varphi_u))K_u\sin^2\theta_M \\ -\tfrac{1}{8}(3+\cos 4(\varphi_M-\varphi_4))K_4\sin^4\theta_M \tag{2.12}$$

où K_u et K_4 sont les constantes d'anisotropie planaires uniaxiale et d'ordre 4 respectivement, avec $H_u = \frac{2K_u}{M_s}$ et $H_4 = \frac{4K_4}{M_s}$ les champs d'anisotropie correspondants, tandis que $K_\perp$ et $K_{\perp 2}$ représentent les constantes d'anisotropie uniaxiale perpendiculaire et d'ordre deux, respectivement .

Nous introduisons également, les aimantations effectives, $4\pi M_{eff\parallel}$ et $4\pi M_{eff\perp}$ dans le plan et perpendiculaire au plan, respectivement :

$$4\pi M_{eff\parallel} = 4\pi M_{eff} = 4\pi M_s - \frac{2K_\perp}{M_s} = 4\pi M_s - H_\perp \tag{2.13}$$

$$4\pi M_{eff\perp} = 4\pi M_s - \frac{2K_\perp}{M_s} - \frac{4K_{\perp 2}}{M_s} \tag{2.14}$$

où $H_\perp = \frac{2K_\perp}{M_s}$ est le champ d'anisotropie perpendiculaire uniaxiale.

Enfin, la fréquence de précession (F_r) uniforme évaluée à l'équilibre est obtenue à partir de la densité d'énergie E (somme de toutes les énergies citées précédemment), et donnée par l'équation 1.22.

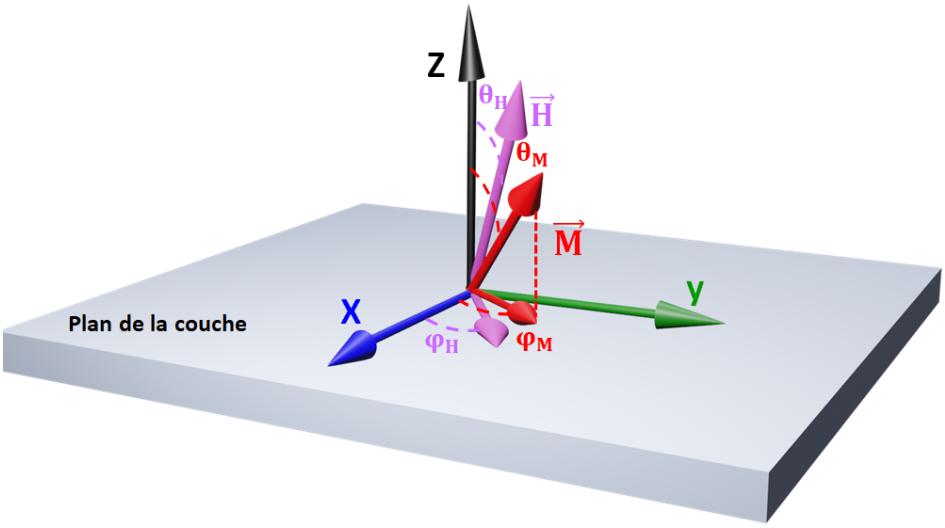

FIGURE 2.16 – Schéma représentant le système des coordonnées utilisé pour l'expression de la densité d'énergie pour une couche mince ferromagnétique.

2.4.1.3.1 Mesures en champs appliqués perpendiculairement au plan de l'échantillon

C'est les premières mesures FMR à effectuer. Ceci permet de déterminer le facteur gyromagnétique ($\frac{\gamma}{2\pi}$) pour chaque échantillon, ainsi que l'aimantation effective. Ensuite, nous mesurons la dépendance angulaire du champ de résonance (H_r) en fonction de θ_H . Durant ces mesures, les échantillons ont été tournés de 180°, par rapport à un axe dans leur plan : de la direction dans le plan ($\theta_H = \pm 90°$) à la normale au plan de la couche ($\theta_H = 0°$). Les maxima et les minima du champ du champ de résonance FMR identifient alors clairement les axes de difficile et de facile aimantation, respectivement. Ainsi, la fréquence de précession du mode uniforme est donnée par :

$$F^2_{hors-du-plan} = (\frac{\gamma}{2\pi})^2[H\cos(\theta_M - \theta_H) - 4\pi M_{eff}\cos 2\theta_M + \frac{2K_{\perp 2}}{M_s}(\cos(2\theta_M) + \cos(4\theta_M))] \times[H\cos(\theta_M - \theta_H) - 4\pi M_{eff}\cos^2\theta_M + 4\frac{K_{\perp 2}}{M_s}\cos^4\theta_M] \tag{2.15}$$

À noté que dans le cas, d'un champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan de l'échantillon, $\theta_H = \theta_M = 0°$, la fréquence de précession est donné par :

$$F_\perp = \frac{\gamma}{2\pi}(H - 4\pi M_{eff} + \frac{4K_{\perp 2}}{M_s}) \tag{2.16}$$

Cette equation permet d'ajuster les données expérimentales de F(H) hors du plan, le facteur gyromagnétique est extrait de la pente, tandis que l'aimantation effective est calculée à partir de l'interception avec l'axe vertical (figure 2.17).

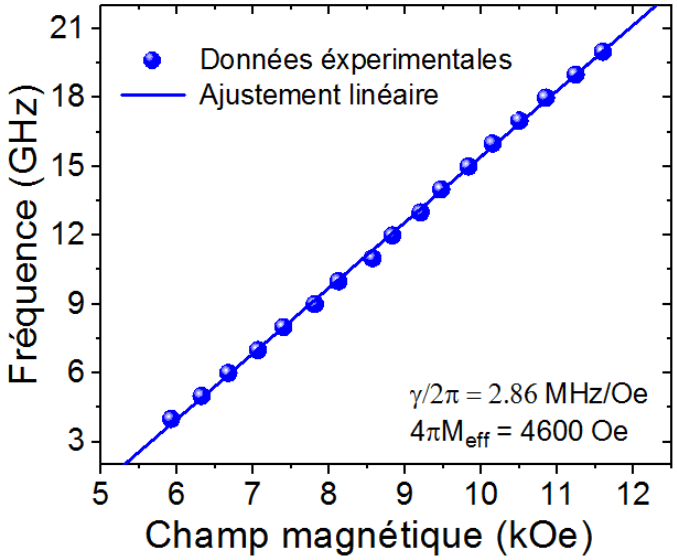

FIGURE 2.17 – Fréquence de résonance FMR en fonction d'un champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan d'un échantillon de $La_{2/3}Sr_{1/3}MnO_3(8nm)/Pt$. Par ajustement avec l'équation 2.16, le rapport gyromagntique est obtenu à partir de la pente, tandis que l'aimantation effective est obtenue de l'interception avec l'axe vertical .

2.4.1.3.2 Mesures en champs appliqués dans le plan de l'échantillon

Première étape

Dans le cas d'un champ magnétique appliqué dans le plan, l'aimantation et le champ magnétique sont alors dans le plan et $\theta_M = \theta_H = 90°$. Le fréquence de résonance du mode uniforme s'écrit :

$$F_{\parallel}^2 = (\frac{\gamma}{2\pi})^2[H\cos(\varphi_M - \varphi_H) + \frac{2K_u}{M_s}\cos 2(\varphi_M - \varphi_u) + \frac{2K_4}{M_s}\cos 4(\varphi_M - \varphi_4)]\times$$
$$[H\cos(\varphi_H - \varphi_M) + 4\pi M_{eff} + \frac{K_u}{M_s}(1 + \cos 2(\varphi_M - \varphi_u)) + \frac{K_4}{2M_s}(3 + \cos 4(\varphi_M - \varphi_4))] \tag{2.17}$$

Nous commençons par mesurer les dépendances angulaires de H_r en fonction de φ_H dans le plan de la couche mince, qu'on appellera scan 360°. Les donnés expérimentales sont ensuite ajustées par l'équation 2.17 afin de déterminer la valeur du champ d'anisotropie uniaxiale (respectivement d'ordre 4), ainsi que les axes faciles de l'anisotropie unixiale (respectivement d'ordre 4).

Les valeurs expérimentales de la largeurs de raie FMR ΔH en fonction de φ_H sont également analysées lors de cette première étape, par ajustement avec l'équation 2.18. ΔH est la somme de la contribution intrinsèque de l'amortissement de Gilbert ΔH^{Gi}, et extrinsèques ΔH^{mos}, ΔH^{2mag} et ΔH^{inh} (voir section 1.1.6) :

$$\Delta H = \Delta H^{Gi} + \Delta H^{mos} + \Delta H^{2mag} + \Delta H^{inh} \tag{2.18}$$

Le terme ΔH^{Gi} est indépendant de l'orientation du champ appliqué, et se lie à l'amortissement de Gilbert α et à la fréquence de précession f par :

$$\Delta H^{Gi} = \frac{2\alpha f}{\gamma/2\pi} \tag{2.19}$$

Les mécanismes décrivant les contributions extrinsèques sont :

— La mosaicité : décrit la contribution de la distribution de l'orientation des cristallites à ΔH :

$$\Delta H^{mos} = |\frac{\partial H}{\partial \varphi_H}\Delta\varphi_H| \tag{2.20}$$

$\Delta\varphi_H$ est la fluctuation moyenne de la direction des axes de faciles aimantation des anisotropies planaires.

— Processus de diffusion à deux magnons : contribution donnée par :

$$\Delta H^{2mag} = (\Gamma_0 + \Gamma_2\cos 2(\varphi_H - \varphi_2) + \Gamma_4\cos 4(\varphi_H - \varphi_4))\arcsin(\frac{f}{\sqrt{f^2 + f_0^2} + f_0}) \tag{2.21}$$

où $f_0 = \gamma M_{eff}$.

— Le terme ΔH^{inh} regroupe toute contributions, liée aux différentes inhomogenéités du système, conduisant à l'élargissement de la raie FMR. Cette contribution est indépendante de la fréquence et de la direction du champ magnétique appliqué.

Deuxième étape

Une fois que la direction de l'anisotropie uniaxiale est identifiée, la dépendance de la fréquence d'excitation microonde en fonction de H_r, est mesurée pour chaque échantillon, puis ajustée avec l'équation 2.17 afin de déduire M_{eff}. Comme ΔH résulte des contributions extrinsèques et intrinsèques à l'amortissement, la dépendance angulaire de ΔH est utilisée pour déterminer la direction du champ magnétique appliqué donnant la valeur minimale de ΔH, où les contributions extrinsèques à la largeur de raie sont minimales. La dépendance en fréquence de ΔH le long de cette direction est ensuite mesurée et ajustée par l'équation 2.22, ce qui conduit à la détermination du paramètre d'amortissement de Gilbert α (à partir de la pente) :

$$\Delta H = \frac{\alpha f}{\gamma/2\pi} + \Delta H^{inh} \tag{2.22}$$

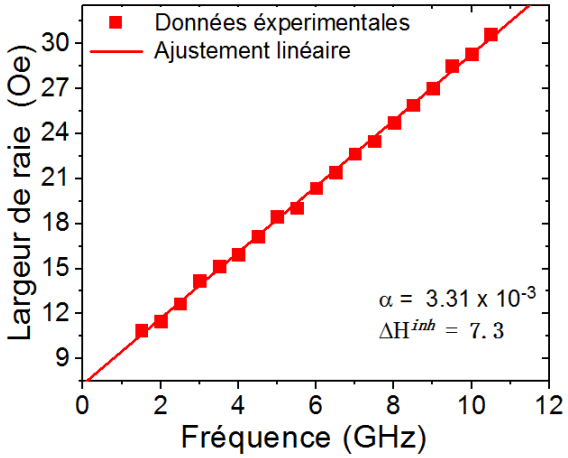

FIGURE 2.18 – Largeur de raie FMR en fonction de la fréquence de résonance pour un champ magnétique appliqué dans le plan d'un l'échantillon de $La_{2/3}Sr_{1/3}MnO_3$ (10nm)/Pt, ajustée par l'équation 2.22. L'amortissement de Gilbert est déduit à partir de la pente de la courbe, et l'interception avec l'axe vertical donne ΔH^{inh}.

2.4.2 La diffusion Brillouin

Dans cette section, nous décrivons la BLS, une technique expérimentale alternative pour l'étude de la dynamique de l'aimantation. Contrairement à la FMR, la BLS permet de sonder les ondes de spins où le vecteur d'onde $k_{sw} \neq 0$, c'est à dire les modes non uniformes. Le principal avantage de la BLS est que sa sensibilité permet de détecter les ondes de spin thermiquement excitées, c'est-à-dire qu'il n'est pas nécessaire de recourir à des sources d'excitation externes. C'est une technique spectroscopique optique permettant d'étudier les excitations dont la fréquence se situe dans le régime des GHz [154]. Elle permet notamment de renseigner sur d'importants paramètres magnétiques, tels que l'anisotropie magnétique [164], l'interaction d'échange intercouches [165], l'amortissement magnétique[164], et particulièrement la constante de l'iDMI [166, 167].

En effet, l'intérêt principal de l'utilisation de la BLS, provient de la possibilité de mesurer l'iDMI contrairement à la FMR, qui explore uniquement les modes uniformes. Plusieurs techniques expérimentales ont été développées depuis une dizaine d'années pour la mesure de l'iDMI dans les multicouches magnétiques. Ces techniques peuvent être répertoriées en trois grandes catégories [168] :

- Les techniques de parois de domaines : où D_{eff} est extrait soit en mesurant la vitesse ou l'énergie de la paroi de domaine en fonction d'un champ magnétique dans le plan, soit en mesurant directement la structure interne de la paroi de domaine.
- Les techniques de couple spin-orbite : où D_{eff} est extrait en mesurant le décalage en champ du cycle d'hystérésis hors plan sous un champ magnétique appliqué dans le plan.
- Les techniques d'ondes de spin (dont la BLS) : où D_{eff} est obtenu en mesurant la non réciprocité des ondes de spin se propageant dans des films magnétisés dans le plan.

En général, les méthodes basées sur des parois de domaine peuvent être appliquées pour mesurer l'iDMI uniquement dans des matériaux aimantés perpendiculairement [168], tandis que les méthodes basées sur les ondes de spin sont capables de quantifier D_{eff} également pour les systèmes avec aimantation dans le plan. La technique du déplacement des parois de domaine induit par un courant est globalement une technique assez complexe pour déterminer l'iDMI, tant pour la réalisation expérimentale que pour l'interprétation des résultats. Les techniques basées sur les ondes de spins, permettent également de déterminer directement l'amplitude et le signe de l'iDMI (voir equation 2.30). La BLS s'est rapidement imposée comme la technique la plus utilisée pour étudier l'iDMI, grâce à la configuration expérimentale peu complexe (comparée aux autres techniques) et une grande précision dans la détermination de la dispersion des ondes de spin, ainsi que le fait que comme déjà mentionné, aucune excitation externe n'est nécessaire.

2.4.2.1 Principe de la diffusion Brillouin

La spectroscopie Brillouin est une technique de diffusion inélastique de la lumière par les ondes de spin. Le principe de fonctionnement est illustré sur la figure 2.19. Avec un faisceau laser, nous venons illuminer la surface d'un échantillon. Les photons (d'énergie $\hbar\omega_{inc}$ et de quantité de mouvement $\hbar k_{inc}$) ainsi interagissent avec la matière, soit en émettant ou en absorbant un quanta d'excitation, dans ce cas, un magnon (onde de spin), d'énergie $\hbar\omega_{sw}$ et de quantité de mouvement $\hbar k_{sw}$. Le photon diffusé perd ou gagne en énergie et en moment selon :

$$\begin{cases} \hbar\omega_{diff} = \hbar\omega_{inc} \pm \hbar\omega_{sw} \\ \hbar k_{diff} = \hbar k_{inc} \pm \hbar k_{sw} \end{cases} \tag{2.23}$$

On distingue alors la création ou l'annihilation d'un magnon. L'émission d'un magnon correspond ainsi au processus Stokes :

$$\begin{cases} f_{Stokes} = f_{inc} - f_{sw} \\ k_{Stokes} = k_{inc} - k_{sw} \end{cases} \tag{2.24}$$

Tandis que l'absorption d'un magnon par un photon correspond au processus anti-Stokes, tel que :

$$\begin{cases} f_{anti-Stokes} = f_{inc} + f_{sw} \\ k_{anti-Stokes} = k_{inc} + k_{sw} \end{cases} \tag{2.25}$$

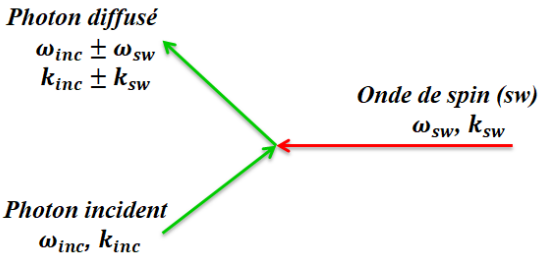

FIGURE 2.19 – Schéma diffusion Brillouin de la lumière.

2.4.2.2 Dispositif expérimental BLS du LSPM

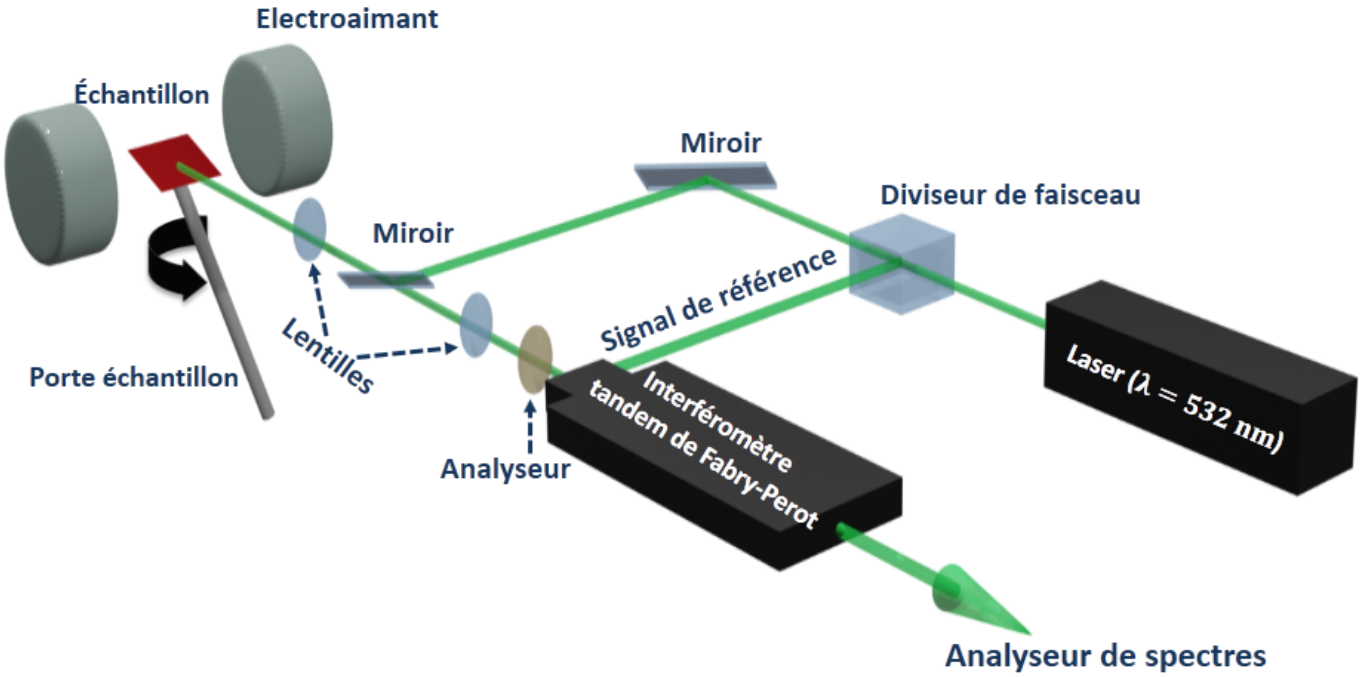

FIGURE 2.20 – Schéma du dispositif expérimental de spectroscopie Brillouin du LSPM.

Le montage BLS du LSPM est schématisé sur la figure 2.20. L'échantillon est éclairé par un laser préalablement stabilisé de longueur d'onde $\lambda = 532$ nm. La source laser est intense, monochromatique (de couleur verte), possède une grande longueur de cohérence($>$ 100 m) et montre une bonne stabilité en longueur d'onde au cours du temps, afin que les résultats de la spectroscopie soient liés à la diffusion Brillouin plutôt qu'aux effets liés au laser. Le rayonnement laser passe par un séparateur qui le divise en deux : une partie est utilisée comme faisceau de référence, pour préserver les réglages initiaux du tandem de Fabry-Perrot, tandis que la deuxième partie du faisceau laser, continue son trajet en se dirigeant vers l'échantillon à travers un dispositif de plusieurs miroirs et lentilles. Le faisceau laser est focalisé sur l'échantillon grâce à une lentille de 140 mm de focale pour zone sondée. La lumière est ensuite diffusée par l'échantillon (processus élastique et inélastique) et envoyée à travers un analyseur afin de réduire le bruit et d'éliminer le signal associé à la présence des phonons (on s'intéresse uniquement aux magnons).

Le faisceau diffusé est dirigé par la suite, vers le tandem Fabry-Perot à travers une lentille de focalisation. Le tandem comprend deux interféromètres Fabry-Perrot plan (FPP)

en série. La gamme en fréquence de ce dernier est comprise entre 3 et 300 GHZ, offrant un large intervalle spectral. La finesse du dispositif est $F \approx 100$, ce qui correspond à une précision de 0.1 GHz pour 10 GHz en fréquence. À la sortie du tandem Fabry-Pérot, la lumière diffusée est captée par une photodiode à avalanche et analysée par un système d'acquisition assisté par ordinateur. Le spectre BLS affiché, représente ainsi le signal collecté (nombre de photons) en fonction de la fréquence.

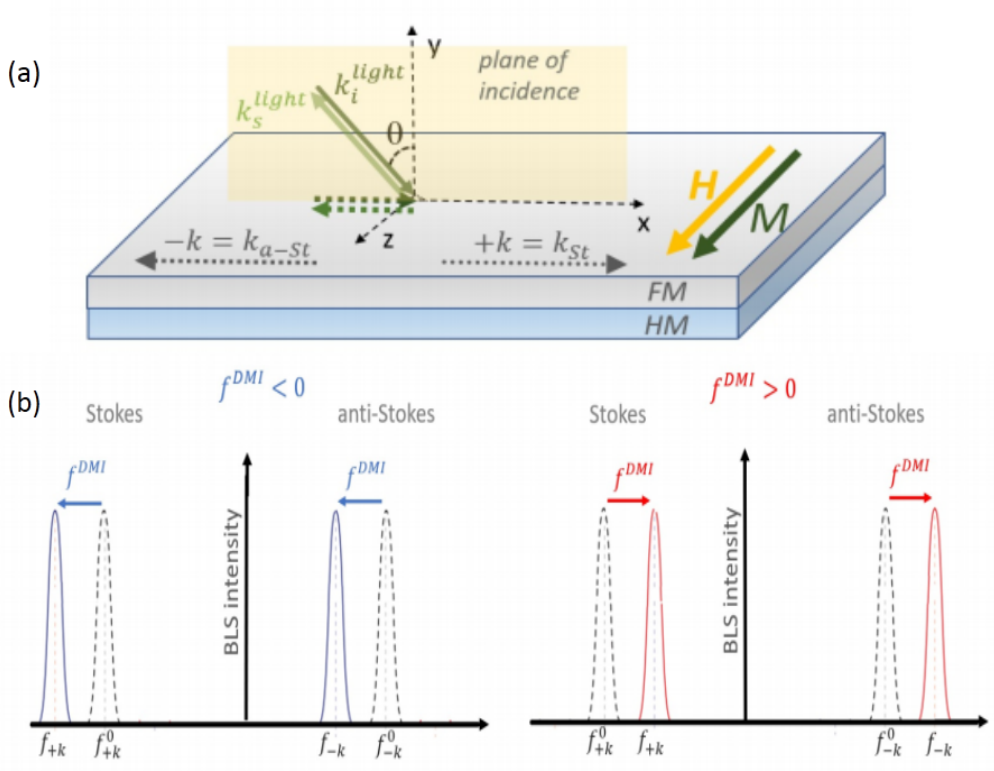

FIGURE 2.21 – [168] (a) Schéma représentant le faisceau laser incident (k_i) par rapport au diffusé (k_s) pour une structure multicouches HM/FM, les ondes de spin de direction $+k$ ($-k$), correspondent à celles impliquées dans le processus Stokes (anti-Stokes). (b) Un spectre BLS typique en l'absence de DMI (lignes en pointillés) et avec DMI (lignes continues) pour une valeur positive ou négative de DMI, c'est-à-dire de f_{DMI}, respectivement.

En fonction des propriétés des matériaux étudiés, deux géométries différentes de diffusion peuvent être utilisées dans l'expérience BLS : dans la géométrie de diffusion vers l'avant, le faisceau laser est focalisé sur un échantillon transparent et collecté derrière après avoir traversé l'échantillon. Cette géométrie ne permet que la détection des magnons avec un vecteur d'onde plus faible que celui des photons incidents. En cas d'échantillons opaques, la géométrie rétrodiffusion est utilisée augmentant ainsi la valeur de vecteurs d'ondes accessible. Connaissant l'angle d'incidence et la longueur d'onde du laser d'excitation transféré, le vecteur d'onde k_{sw} peut être facilement calculé en utilisant l'expression :

$$k_{sw} = 2\frac{2\pi}{\lambda}\sin(\theta_{inc}) \tag{2.26}$$

où λ est la longueur d'onde du laser, et θ_{inc} est l'angle d'incidence du faisceau lumineux.

Ainsi, le dispositif BLS du LSPM nous permet d'imposer le vecteur d'onde étudié, en fonction de l'angle d'incidence du faisceau laser. En effet, l'échantillon est monté sur un

porte échantillon contrôlé par un moteur électrique, permettant de déplacer l'échantillon dans le plan et à modifier l'angle d'incidence θ du laser (figure 2.21 (a)). Dans cette géométrie, θ_{inc} maximal possible est de 60° correspondant à un vecteur d'onde maximal de 20.45 μm.

A noter que nos mesures sont réalisées en appliquant un champ magnétique par un électroaimant d'amplitude maximale de 14 kOe. Le champ magnétique est généré dans le plan de l'échantillon et perpendiculaire au vecteur d'onde : géométrie de Damon-Eshbach (voir section 1.1.5.2). Les données sont ainsi accumulées pour une période de temps assez longue, où il faut compter en moyenne une demi-journée d'accumulation pour un seul angle d'incidence, c'est à dire un seul spectre BLS.

2.4.2.2.1 Tandem Fabry-Perrot

Un interféromètre de Fabry-Perot simple, est un dispositif composé de deux miroirs plans parallèles entre eux, séparés par une distance L que l'on peut varier. Les faces en regard sont planes pour un maximum de réflexions, tandis que les faces arrières des miroirs sont légèrement prismatiques pour éviter les réflexions parasites. La lumière incidente à l'intérieur du Fabry-Perot est réfléchie en faisant de multiples réflexions à travers les deux miroirs, dont une petite partie est transmise à chaque réflexion. Ces lumières incidentes génèrent des interférences et ne sont transmises par le Fabry-Perot que lorsque les longueurs d'ondes interfèrent de manières constructives selon :

$$L = p\frac{\lambda}{2} \tag{2.27}$$

où la lumière de longueur d'onde λ sera transmise si la distance (L) entre les deux miroirs est un multiple de $\frac{\lambda}{2}$ (p nombre entier positif).

Pour des spectres BLS exploitables, deux paramètres jouent un rôle important pour les performances du Fabry-Perot, à savoir l'intervalle spectral libre (ISL) et le contraste C :

- ISL : désigne l'espacement entre deux ordres d'interférences voisins séparés en fréquence par $\frac{1}{2L}$. L'espacement entre les miroirs définit la gamme en fréquence sondée δf ou $\delta f = \frac{c}{2L}$, c la célérité.
- Contraste (C) : définit comme le rapport de l'intensité maximale(T_{max}) transmise par le Fabry-Perot sur l'intensité minimale(T_{min}) :

$$C = \frac{T_{max}}{T_{min}} = 1 + \frac{4F^2}{\pi^2} \approx \frac{4F^2}{\pi^2} \leq 10^4 \tag{2.28}$$

où F est la finesse, paramètre dépendant de la qualité des miroirs utilisés.

Cependant, pour les mesures d'ondes de spin dans les couches minces opaques, il est possible que le contraste soit faible, où l'intensité des composantes élastiques de la lumière diffusée, soit supérieur à celle des composantes inélastiques. Le problème du contraste peut être résolu en utilisant un système de multi-passages dans l'interféromètre de Fabry-Perot. Dans notre cas, la lumière passe trois fois à travers le Fabry-Perot. Le passage de la lumière dans le Fabry-Perot implique une périodicité des pics de transmission. Il serait alors fréquent de confondre la position des raies Stokes et anti-Stokes avec les ordres voisins.

Afin d'éviter cette problématique, un système en tandem de Fabry-Perot, développé par Sandercock [169] est utilisé.

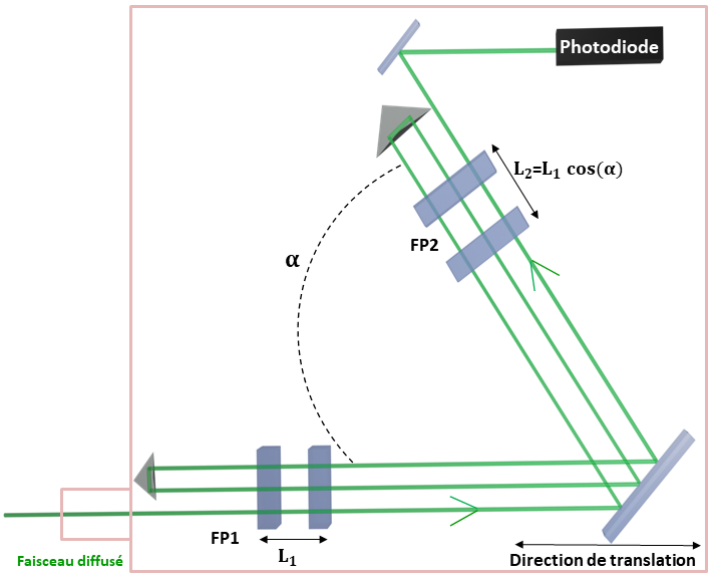

FIGURE 2.22 – Dispositif expérimental du tandem Fabry-Pérot. Les deux interféromètres sont synchronisés automatiquement par un système de translation piézoélectrique.

Le tandem Fabry-Perot est constitué de la disposition en série de deux Fabry-Perot, désorienté par un angle α, l'un par rapport à l'autre (figure 2.22). Comme le montre la figure 2.23, la superposition des deux spectres permet de supprimer les interférences voisines et d'élargir la gamme en fréquences sondées. Les miroirs du tandem Fabry-Perot sont fixés sur des cales piézoélectriques, ce qui permet des les aligner automatiquement lors des mesures, et de maintenir un écartement constant entre eux. L'espacement des miroirs pour les deux interféromètres est tel que le montre l'équation 2.29, permettant ainsi de satisfaire les conditions de synchronisation et de conserver la longueur d'onde transmise :

$$L_1 = \frac{L_2}{\cos\alpha} \tag{2.29}$$

où L_1 et L_2 est la distance qui sépare les deux miroirs du premier et du second interféromètre Fabry-Perot respectivement.

Enfin, la stabilisation du dispositif à long terme, est maintenu grâce à un boitier d'asservissement. Celui-ci, applique des corrections successives au système d'alignement qui maintient les interféromètres parallèlement.

2.4.3 Méthodologie de mesures BLS

Dans cette section, nous présentons, la méthode de mesure de l'iDMI, de l'anisotropie magnétique perpendiculaire et de l'amortissement par la BLS.

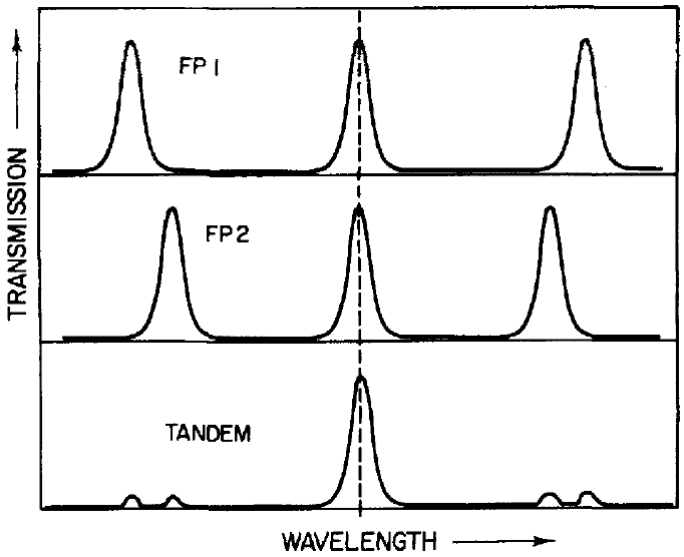

FIGURE 2.23 – [169] Élimination d'interférences voisines par tandem Fabry-Perot.

2.4.3.0.1 Mesure de l'iDMI

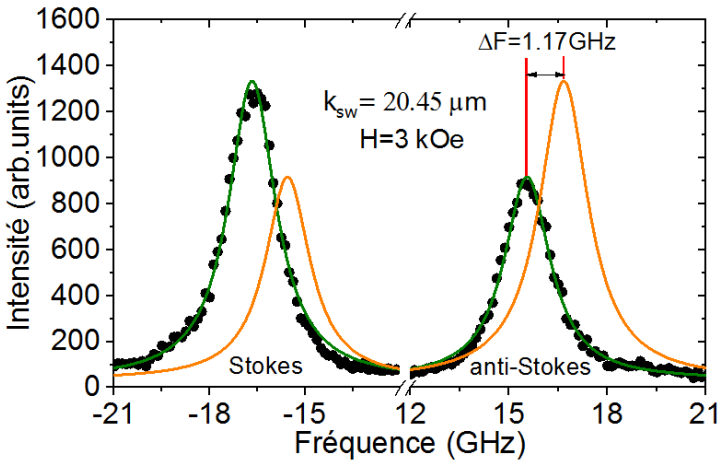

FIGURE 2.24 – Exemple de spectre BLS pour un échantillon de CoFeB (1.5 nm)/Pt, présentant un décalage en fréquences de la raie Stokes et anti-Stokes. ΔF montre clairement la présence d'une iDMI.

L'étude de l'iDMI par la BLS, trouve son intérêt dans la non-réciprocité de la propagation des ondes de spin, de vecteurs d'onde opposés pour une géométrie de DE. En effet, lors d'une mesure BLS, les magnons ayant un vecteur d'onde $(+k_{sw})$ sont absorbés pour les décalages positifs en fréquences, tandis que les vecteurs d'ondes $(-k_{sw})$, sont émis pour les décalages négatifs en fréquences (figure 2.21 (b)). La différence de fréquence entre les deux magnons en fonction du vecteur d'onde k_{sw} s'écrit alors [166] :

$$\Delta F = f_{Stokes} - f_{anti-Stokes} = \frac{2\gamma}{\pi M_s} D_{eff} k_{sw} = \frac{2\gamma}{\pi M_s} \frac{D_s}{t_{FM}} k_{sw} \tag{2.30}$$

où D_s est la constante interfaciale de l'iDMI, t_{FM} est l'épaisseur de la couche ferromagnétique pour une hétérostrcture en couches minces.

Le décalage en fréquence ΔF est linéaire en fonction de k_{sw} et est directement proportionnelle à D_{eff}, ce qui permet une quantification directe de l'iDMI en module et en signe. Une spectre BLS typique en présence d'une iDMI est présenté sur la figure 2.24, où un décalage entre les fréquences Stokes et anti-Stokes est observé. Ces fréquences sont déterminées par un ajustement avec une fonction lorentzienne.

Enfin pour évaluer l'iDMI, plusieurs spectres sont mesurés en BLS (pour un seul échantillon), suivant différents angles d'incidence ($10° \leq \theta \leq 60°$), c'est à dire différents vecteurs d'onde k_{sw} (equation 2.26). Le décalage en fréquence ΔF est calculé, ensuite tracé en fonction de k_{sw}, et linéairement ajusté afin de déterminer D_{eff} à partir de la pente (figure 2.25). Par la suite, la constante d'iDMI, "D_s", est estimée à partir de la dépendance linéaire de D_{eff} en fonction de $1/t_{FM}$ (pente de la droite), conséquence de la nature interfaciale de l'interaction.

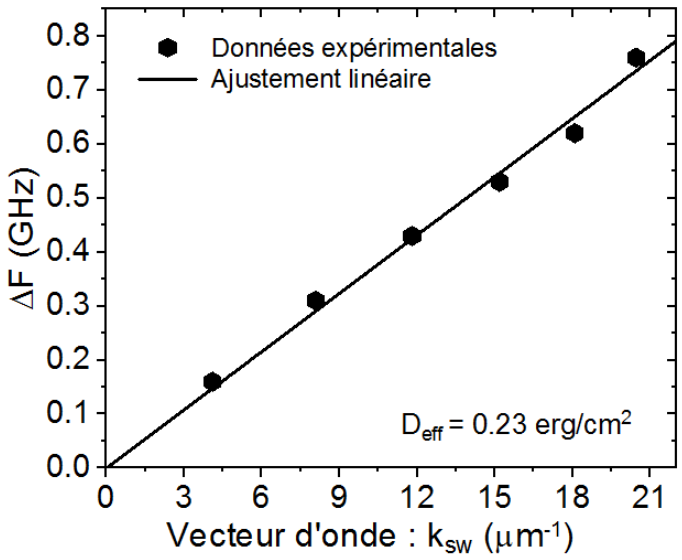

FIGURE 2.25 – Variation de ΔF en fonction de k_{sw} pour un échantillon de Ta (2.2nm)/Ir (1.35 nm)/Co (1.4nm)/Ir (1.35 nm)/Al (2 nm) . D_{eff} est extrait de la pente par ajustement avec l'équation 2.30.

2.4.3.0.2 Mesure de la PMA et de l'amortissement de Gilbert

En plus des mesures FMR, nous avons également mesuré l'anisotropie magnétique perpendiculaire et l'amortissement de Gilbert par BLS. De manière similaire à la FMR, ces deux effets d'interface sont investigués par la variation du champ magnétique appliqué dans le plan et pour un vecteur d'onde k_{sw} fixe.

En effet, la moyenne des fréquences Stokes et anti-Stokes (F_{moy}), donnée par l'équation 2.29, est mesurée pour chaque échantillon en fonction du champ appliqué afin d'annuler l'effet de l'iDMI. L'aimantation effective M_{eff} est ensuite obtenue à partir de l'ajustement de la courbe de $F_{moy}(H)$ en utilisant l'équation 2.29 :

$$F_{moy} = (\frac{f_S + f_{aS}}{2}) = \frac{\gamma}{2\pi}\sqrt{(H + Jk_{sw}^2 + P(k_{sw}t_{FM})4\pi M_s)(H + Jk_{sw}^2 - P(k_{sw}t_{FM})4\pi M_s + 4\pi M_{eff})} \tag{2.31}$$

où $J = \frac{2A}{M_s}$ avec A est la constante d'échange, et $P(k_{sw}t_{FM}) = 1 - \frac{1-e^{-(k_{sw}t_{FM})}}{k_{sw}t_{FM}}$.

De même, pour extraire l'amortissement de Gilbert, nous avons mesuré la largeur à mi-hauteur des raies Stokes et anti-Stokes et calculer leurs moyenne δF. Les données expérimentales sont ensuite ajustées par l'équation 2.32 en fonction du champ magnétique appliqué, où α est extrait de la pente :

$$\delta F = 2\alpha \frac{\gamma}{2\pi} H + \delta F_0 \tag{2.32}$$

où δF_0 est la contribution extrinsèque à la largeur de raie.

2.4.4 Comparaison entre FMR et BLS

Dans ce travail de thèse, nous avons utilisé essentiellement la FMR et BLS pour l'investigation des effets d'interface. Cependant, chaque technique possède des avantages et inconvénients, expliquant pourquoi nous les avons utilisées de manière complémentaire, afin de réaliser une caractérisation magnétique complète des échantillons. La FMR possède de nombreux avantages. Avec cette technique, il est facile d'étudier les structures magnétiques avec des champs magnétiques appliqués dans ou hors du plan tout en effectuant des balayages en fréquence ou en champ magnétique. La FMR est une technique très efficace et largement exploitée pour l'étude des modes uniformes, l'existence d'une base théorique solide pour l'interprétation des données expérimentales offre une grande précision dans les résultats obtenus. Également, le temps d'acquisition est rapide comparé à la BLS, ce qui permet d'étudier plusieurs échantillons par jour. Cependant elle a l'inconvénient d'explorer que les modes uniformes, avec une étroite gamme en fréquences. Également, le rapport signal/bruit diminue rapidement pour les échantillon dont l'épaisseur $t_{FM} < 2$ nm , nous avons alors procéder à la mesure des effets d'interface, par la BLS pour ces échantillons.

Un des principaux avantages de la BLS par rapport à la FMR, est la possibilité d'étudier les modes non uniformes, ce qui fait de cette technique un puissant outil pour l'investigation de l'iDMI. De plus, la BLS permet une mesure localisée des ondes de spin, grâce à la haute résolution spatiale définie par le laser, d'environ 50 μm. La BLS possède également une gamme en fréquences largement supérieur à la FMR (jusqu'à 300 GHz). Cependant, les mesures avec champs magnétiques appliqués perpendiculairement au plan des couches sont difficiles à réaliser en BLS. De plus, les temps d'acquisitions des spectres sont très élevés comparés à la FMR. Il faut compter alors, plusieurs jours pour l'étude d'un seul échantillon (balayage en vecteur d'onde et en champ), et quelques semaines pour un système complet.

2.5 Le pompage de spin

Pour fabriquer un dispositif spintronique, il faut avant tout disposer d'un système capable de générer un courant de spin [38], ainsi que d'un système sensible à la polarisation en spin. Des études expérimentales et théoriques récentes et approfondies ont démontré que l'injection de spin d'un matériau ferromagnétique vers un matériau non magnétique, crée un courant de spins et une accumulation de spins dans divers matériaux non magnétiques (NM). Plusieurs méthodes existent pour l'injection de spin dans un matériau NM, parmi lesquelles, le pompage de spin [170, 171] et l'effet Hall de spin (spin Hall effect, SHE) [172, 173]. Le pompage de spin induit par la FMR, est un processus émergent pour injecter dynamiquement un courant de spin pur (courant de spin sans courant de charge associé) dans un matériau NM sans nécessiter de circulation de charge, contrairement à SHE. Cela implique un impact potentiel significatif sur l'efficacité énergétique des dispositifs spintroniques (réduire la dissipation de la chaleur) [174].

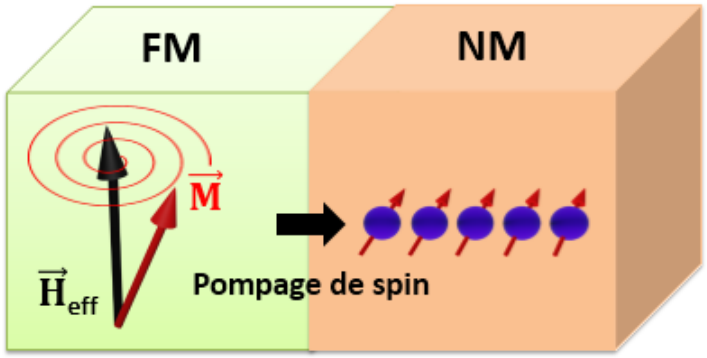

FIGURE 2.26 – Schéma représentant le pompage de spin. La précession de l'aimantation dans la couche FM pompe un courant de spin à l'interface avec un matériau NM.

2.5.1 Principe

Le pompage de spin est une méthode permettant de générer un courant de spin d'un matériau ferromagnétique vers un métal [163] ou un semi-conducteur [175] adjacent dans des structures hybrides par le biais de la dynamique de l'aimantation, telle que la précession de l'aimantation induite par FMR (excitation microonde) [174]. Lorsqu'un matériau NM est en contact avec un ferromagnétique dont l'aimantation est en précession, le moment angulaire de spin peut s'écouler du matériau ferromagnétique vers le NM à travers l'interface, ce qui entraîne la création d'un courant de spin et injecte (pompe) ce courant dans la couche NM adjacente (figure 2.26). Le courant de spin est diffusé dans la couche NM et décroît sur une longueur appelée longueur de diffusion de spin (spin diffusin length λ_{SD}). Si le courant de spin n'est pas complètement dissipé, il y aura une accumulation de spin dans la couche NM et également un retour d'un partie du courant de spin à la couche FM [36]. Le mécanisme de pompage de spin renforcera alors l'amortissement de Gilbert, entrainant un élargissement de la raie FMR. Ce phénomène considéré "intrinsèque" et lié au SOC, est d'autant plus prononcé, lorsqu'un métal lourd est adjacent à la couche FM.

Dans les conditions FMR, le courant de spin pompé dans la couche NM I_{pump} résultant de la précession de l'aimantation, peut s'écrire comme [176] :

$$I_{pump} = \frac{\hbar}{4\pi}(g_r^{\uparrow\downarrow}(\vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt}) + g_i^{\uparrow\downarrow}\frac{d\vec{M}}{dt}) \tag{2.33}$$

où $g_r^{\uparrow\downarrow}$ et $g_i^{\uparrow\downarrow}$ sont les parties réelles et imaginaires des conductances par mixage de spin qui dépendent de l'interface. Le courant de spin pompé, qui correspond à une perte de moment angulaire, circule perpendiculairement à l'interface FM/NM avec une direction de polarisation $\vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt}$. Cependant, il a été démontré que pour les interface FM/NM $g_r^{\uparrow\downarrow} \gg g_i^{\uparrow\downarrow}$ [176], nous ignorons alors le terme imaginaire ajouté dans l'équation 2.33. Ainsi la partie restante dans cette équation contient le terme $\vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt}$ similaire au terme de l'amortissement de Gilbert dans l'équation LLG (voir équation 1.21). La forme de l'expression obtenu permet d'assimiler naturellement la contribution du pompage de spin au terme d'amortissement de Gilbert. La relaxation du courant de spin pompé entraîne ainsi une augmentation de l'amortissement, qui est inversement proportionnel à l'épaisseur de la couche ferromagnétique t_{FM} en raison de la nature interfaciale du phénomène de pompage de spin. Ainsi, l'amortissement de Gilbert peut être décrit par :

$$\alpha = \alpha_{FM} + \alpha_{pumping} = \alpha_{FM} + \frac{g\mu_B}{4\pi M_s t_{FM}} g^{\uparrow\downarrow} \tag{2.34}$$

où α_{FM} est l'amortissement de Gilbert du matériau ferromagnétique, $\alpha_{pumping}$ est l'amortissement magnétique supplémentaire apporté par le pompage de spin dû à la couche NM adjacente et $g_{\uparrow\downarrow}$ est la conductance par mixage de spin.

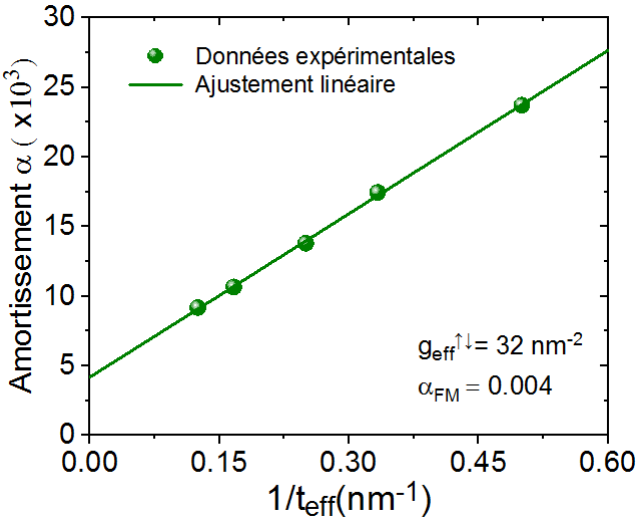

FIGURE 2.27 – Variation de l'amortissement de Gilbert en fonction de l'épaisseur effective de la couche CoFeB pour un système de CoFeB/Pt. La conductance effective par mixage de spin et α_{FM} sont déduits par ajustement linéaire à partir de l'équation 2.34

$g^{\uparrow\downarrow}$ est un concept pertinent permettant d'évaluer le transport du courant spin à l'interface entre une matériau FM et NM. En effet la conductance par mixage de spin contient des termes décrivant la capacité du courant de spin à traverser l'interface vers la couche NM adjacente, la capacité du courant de spin qui traverse l'interface à se relaxer dans la couche non magnétique, et le retour par diffusion du courant de spin non relaxé dans la couche ferromagnétique [36, 177]. Ainsi, l'estimation de la conductance effective

par mixage de spin interfacial ($g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$) est outil indispensable, pour évaluer l'efficacité du pompage de spin. $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ est déduite à partir de la variation de la constante d'amortissement en fonction de l'inverse de l'épaisseur magnétique effective. La figure 2.7 montre qu'à partir de l'ajustement linéaire par l'équation 2.34, la conductance par mixage de spin est extraite de la pente et α_{FM} de l'interception avec l'axe vertical.

2.5.2 Pompage de spin et amortissement de Gilbert dans les multicouches

La modification de l'amortissement d'une couche ferromagnétique en contact avec des couches de couverture est déterminée par le type de matériau FM et NM. En général, l'ajout d'une couche de couverture augmente l'amortissement. Avant de discuter de la relation entre l'amortissement et l'épaisseur de la couche non magnétique, t_{NM} , il est utile de considérer l'influence du matériau non magnétique. Certains matériaux, tels que le Pt et le Pd, sont considérés comme les couches de couverture les plus efficaces pour améliorer l'amortissement, tandis que d'autres matériaux ont un effet moindre, tels que Cr et Ir et d'autres matériaux comprenant Au, Ag et Cu, qui n'ont presque aucun effet sur l'amortissement [163, 178, 179].

Plusieurs études ont examiné l'effet des structures en multicouches sur l'amortissement telles que : FM/NM1/NM2, NM1/FM/NM2, NM2/FM/NM1/NM2, NM2/NM1/FM/NM1 ...(figure 2.28). L'une des raisons d'étudier ces systèmes multicouches est de considérer la longueur de diffusion du spin pour NM1 et de savoir si le courant de spin pompé peut atteindre la deuxième couche, dans laquelle il se dissiperait [36]. Une autre raison est de déterminer si la simple addition d'une autre interface augmentera l'amortissement, ou d'étudier l'effet du magnétisme de proximité induit dans la couche normalement non magnétique.

A noter que la détermination de la valeur de λ_{SD} est d'un grand intérêt, car elle permettra d'augmenter l'efficacité d'injection de courant de spin dans une interface FM/NM par l'optimisation de l'épaisseur NM [163].

Pour t_{NM} et pour les métaux lourds tels que le Pt et Pd, il a été démontré que l'amortissement augmente rapidement avec l'augmentation de t_{NM} pour les structures en multicouches, avant d'atteindre un plateau [163]. Ces études montrent un effet important sur l'amortissement qui est associé à l'absorption du moment angulaire du spin pompé dans la couche du matériau NM. La dépendance de l'amortissement en fonction de t_{NM} provient de la longueur de diffusion du spin λ_{SD}, qui est significativement plus courte pour le Pt que pour le Pd [36] par exemple.

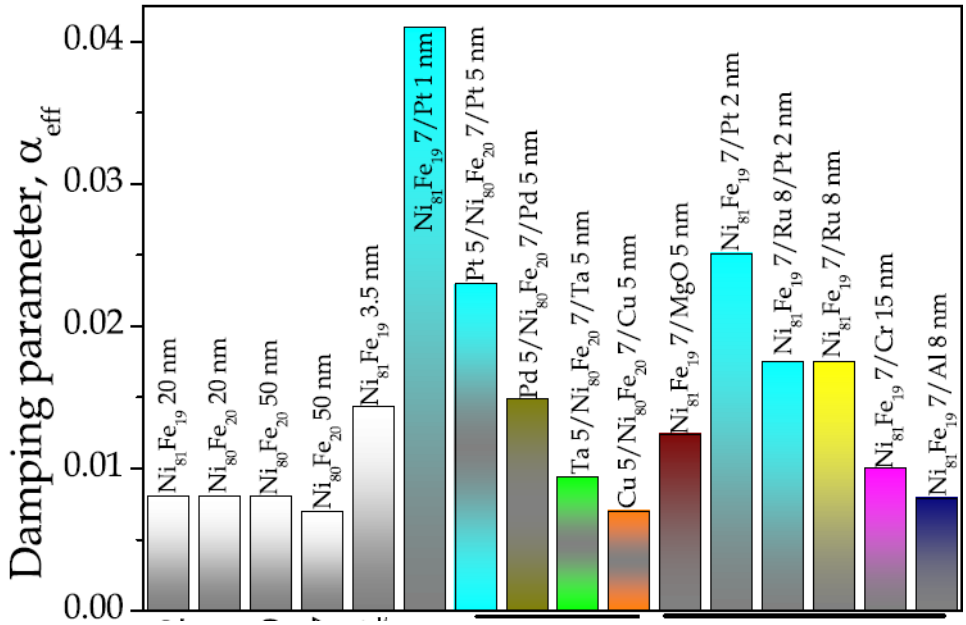

FIGURE 2.28 – [36] Histogramme du paramètre d'amortissement de Gilbert pour les hétérostructure en couches minces à base NiFe combinées avec diverses couches NM. La figure montre clairement l'effet de la couche NM sur l'amortissement.

2.6 Conclusion chapitre

Ce chapitre a mis l'accent sur toutes le techniques expérimentales, utilisées pour la croissance des échantillons, la caractérisation structurale et pour l'investigation des effets d'interface. Nous avons par ailleurs, donné une description détaillée des bancs de mesure FMR et BLS disponibles au LSPM. Nous avons également montré la puissance de ces outils pour la caractérisation magnétique de nos échantillons, notamment leur utilisation de manière complémentaire tout au long de la thèse, ce qui a permit de faire une étude approfondie et complète des systèmes magnétiques étudiés.

Enfin, nous avons présenté la méthode de mesure suivie pour la caractérisation magnétique des échantillons.

La suite de ce manuscrit sera donc axée sur les résultats obtenu au cours de cette thèse à travers l'étude expérimentale de plusieurs systèmes magnétiques. Les chapitres seront présentés selon les hétérostructure abordées en fonction des épaisseurs des films FM/NM de la température de recuit et du couverture en oxygène.

Chapitre 3

Étude de l'anisotropie magnétique et du pompage de spin dans les systèmes $La_{2/3}Sr_{1/3}MnO_3/Pt$

Les oxydes magnétiques présentent des propriétés qui pourraient être exploitées par la spintronique. En effet, les manganites à structure pérovskite possèdent un énorme potentiel pour être utilisées dans les composants spintroniques . Ce terme "pérovskite" a été utilisé pour la première fois pour le $BaTiO_3$, en l'honneur de Perovskii qui les a découvertes . De même, le terme 'manganite" est utilisé pour indiquer toutes les compositions contenant à la fois du manganèse trivalent et tétravalent.

Dans ce chapitre, nous présentons l'étude de l'anisotropie magnétique et du pompage de spin dans les structures à base de manganites à structure pérovskite type $La_{2/3}Sr_{1/3}MnO_3$ ($LSMO$). Nous commençons par présenter l'intérêt et les enjeux technologiques derrière l'étude de telles structures. Nous décrirons ensuite, la structure cristallographique du $LSMO$ à l'origine de ses propriétés remarquables et enchainerons par la présentation détaillée de l'étude des phénomènes mentionnés ci-dessus.

3.1 Introduction

Le transport de spin à travers une interface entre un matériau (NM) et un ferromagnétique (FM) par pompage de spin [170, 171] et effet Hall de spin (SHE) [172, 173] est indispensable pour la manipulation de la dynamique de l'aimantation. En effet, l'utilisation d'un courant polarisé en spin pour manipuler l'aimantation, via le couple de transfert de spin (STT), a fait l'objet d'une attention considérable en raison de ses applications prometteuses dans les dispositifs spintroniques tels que les mémoires magnétiques MRAMs ou les logiques magnétiques.

Jusqu'à présent, une attention significative a été portée aux hétérostructures FM/NM comprenant des matériaux 3d [38] avec une extension au grenat de fer et d'yttrium (YIG) [180]. Bien que ces systèmes aient permis de mieux comprendre la physique sous-jacente des SHE et du pompage de spin, ces ferromagnétiques à métaux de transition présentent une aimantation à saturation élevée et un amortissement magnétique important qui se traduisent par des densités élevées des courants critiques dans les dispositifs basés sur SHE. En effet, l'amortissement magnétique joue un rôle important dans la détermination

de la vitesse de retournement de l'aimantation (vitesse d'écriture) et de la puissance de renversement de ces dispositifs. La compréhension et le contrôle de l'amortissement des matériaux magnétiques dans un système à base de films minces sont donc critiques pour réaliser des mémoires à haute vitesse et à faible puissance.

Ainsi pour améliorer ces applications, l'identification de nouveaux matériaux et structures pour la génération, la transmission et la conversion efficace des courants de spin est fortement demandée. En partant des dispositifs à base de métal à la fin des années 1980, le domaine de la spintronique s'est rapidement étendu aux oxydes de métaux de transition. En effet, au cours des dernières décennies, la croissance de films minces et d'hétérostructures d'oxyde de haute qualité a montré des progrès importants concernant la qualité des échantillons. Alors que la croissance de films d'oxydes a d'abord été motivée par la découverte de la supraconductivité à haute température dans les cuprates pérovskites [181], la technologie des techniques de dépôt a rapidement été appliquée à d'autres oxydes de métaux de transition à structure de pérovskite, telles que les manganites. La découverte de la magnétorésistance colossale dans ces films minces [182] a déclenché d'intenses activités de recherche et a conduit à l'utilisation de manganites comme électrodes dans les jonctions tunnel magnétiques. Depuis lors, la recherche sur la spintronique des oxydes a été intense, les derniers développements concernent les doubles pérovskites, les oxydes magnétiques dilués et les oxydes multiferroïques [183, 184].

Dans le domaine de spintronique des oxydes, le composé $La_{2/3}Sr_{1/3}MnO_3$ ($LSMO$) est un matériau ferromagnétique largement attractif en raison de sa faible aimantation à saturation, de sa magnétorésistance colossale, de son faible coefficient d'amortissement magnétique et de sa nature semi-métallique [185], où sa polarisation de spin attendue est proche de 100% [186]. En effet, un rapport de magnétorésistance par effet tunnel de 1800% à 4 ° K est démontré par Bowen et al. [186], en raison d'une polarisation de spin d'au moins 95% dans les électrodes $LSMO$.

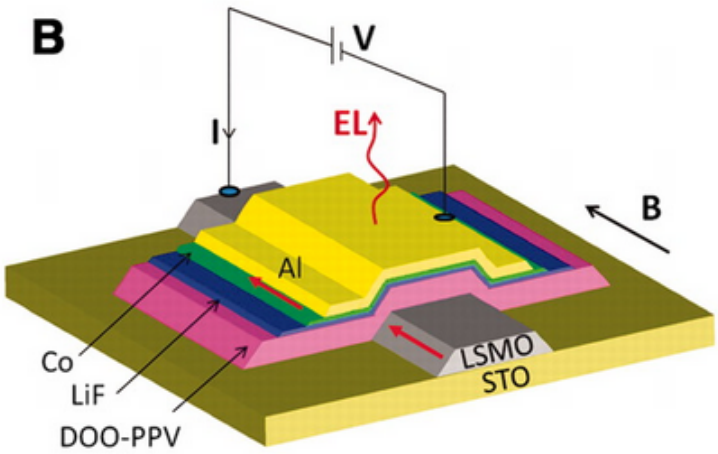

FIGURE 3.1 – [187] Schéma de structure de spin OLED, où un film mince de $LSMO$ représente l'anode. Ici, le champ magnétique, dans le plan (flèche noire), induit l'alignement parallèle des aimantations des couches FM (Co et $LSMO$), flèches rouges. L'émission EL (emitted light) (ligne rouge ondulée) est collectée à travers l'électrode mince Co/Al.

Plusieurs applications sont ainsi envisageables parmi lesquelles, "la spintronique organique", telle que les futurs dispositifs de diodes électroluminescentes organiques de spin (spin-OLED), voir figure 3.1, où des trous et des électrons polarisés en spin sont injec-

tés dans la couche émettrice organique. Dans ces composants, $LSMO$ remplace l'oxyde d'indium-étain (ITO) dans le rôle de l'anode, donnant lieu à de meilleurs performances par rapport à d'autres matériaux ferromagnétiques ou leurs alliages [188].

Dans ce chapitre, nous utilisons la résonance ferromagnétique pour l'étude de l'anisotropie magnétique et de l'amortissement dans des films épitaxiés de $LSMO$ déposés sur des substrats $SrTiO_3$ (001) (STO) avec et sans couche de couverture de Pt. Nous observons un faible amortissement magnétique et un transport interfacial efficace de spin dans ce système, ce qui fait de la bicouche $LSMO/Pt$ un candidat potentiellement prometteur pour les applications en spintronique.

3.2 Propriétés des couches de $LSMO$

3.2.1 Structure cristallographique

Parmi les oxydes perovskites de manganèse, les $La_{1-x}A_xMnO_3$ (où $A = Ca, Sr, Ba$) ont été largement étudiés comme un matériau optimal pour les dispositifs spintroniques. La structure cristalline d'une manganite perovskite comme le $La_{1-x}Sr_xMnO_3$ ($LSMO$) (où x est une variable indiquant le niveau de dopage) est présentée sur la figure 3.2. Cette structure est de forme générique ABO_3 cubique et appartient au groupe d'espace Pm3m. Les atomes de lanthane (La) ou de strontium (Sr) dopés par substitution occupent les sites "A" et forment une cellule unitaire cubique. Les atomes de manganèse (Mn) occupent le site "B" entourés d'atomes d'oxygène et forment un octaèdre MnO_6 (figure 3.2). Les atomes d'oxygène sont ionisés en O^{2-}, le lanthane en La^{3+} et le strontium en Sr^{2+}. Les atomes de manganèse sont ionisés soit en Mn^{3+}, soit en Mn^{4+}, selon le niveau de dopage.

Ce système présente de riches interactions entre les degrés de liberté de charge, de spin et d'orbitale conduisant à des diagrammes de phase électroniques et magnétiques complexes, par exemple une transition paramagnétique, ferromagnétique et antiferromagnétique dépendante du dopage.

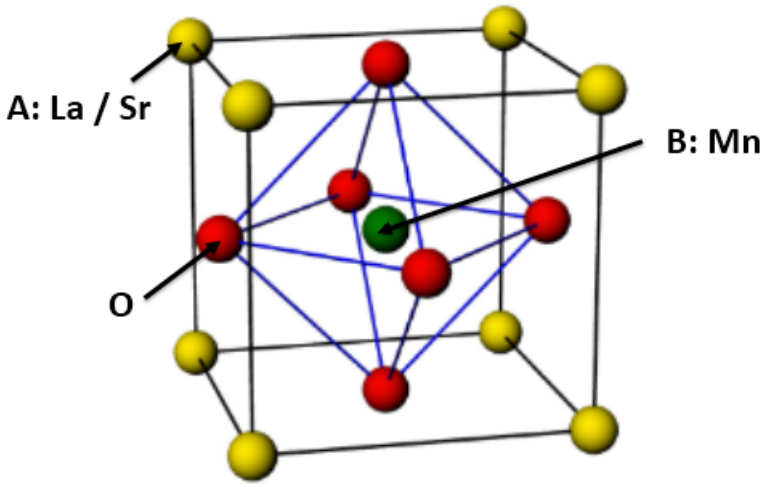

FIGURE 3.2 – [189] Cellule unitaire du $LSMO$. L'atome de manganèse (vert) est entouré d'un octaèdre d'oxygène (rouge). Les atomes des sites jaunes peuvent être soit du lanthane, soit du strontium, en fonction du degré de dopage.

3.2.2 Diagramme de phase

Les concentrations de dopage et les rayons atomiques des cations pourraient déterminer les propriétés physiques et structurelles des manganites pérovskites. La figure 3.3 montre le diagramme de phase riche des manganites $La_{1-x}Sr_xMnO_3$ en fonction de la concentration de dopant "Sr" et de la température, qui permet d'obtenir différentes propriétés en fonction du taux de dopage "x". Les deux concentrations extrêmes de dopant, c'est-à-dire pour x = 0 ($LaMnO_3$) et x = 1 ($SrMnO_3$), présentent un comportement antiferromagnétique. Pour x > 0.17, le $LSMO$ présente une phase de métal ferromagnétique (FM). Cette phase FM est assez stable jusqu'à la concentration de dopant 'Sr' à x = 0.5. À x = 0.33, le composé est à moitié métallique et présente une phase FM avec une température de Curie maximale de 350 K. Par conséquent, cette concentration de dopage particulière (autour de x = 0.33) est la plus intéressante, car elle permet d'explorer les possibilités de développement de dispositifs spintroniques à température ambiante. Dés lors, les études concernant les films $LSMO$ épitaxiés sont les plus pertinentes, où la réduction de l'épaisseur du $LSMO$ est cruciale pour la miniaturisation des dispositifs spintroniques.

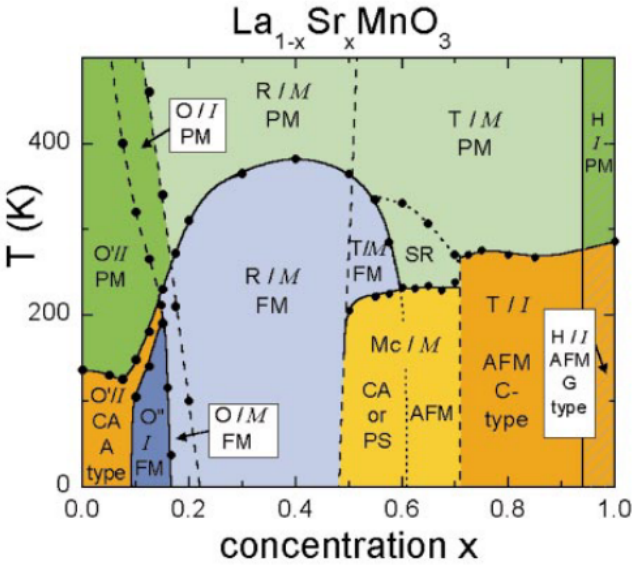

FIGURE 3.3 – [190] Diagramme de phase du $La_{1-x}Sr_xMnO_3$ pour différentes concentration de dopage et de température. Différentes structures cristallines sont indiquées : O-orthorhombique ; R-rhomboédrique ; T-tétragonal, M_c-monoclinique ; H-hexagonale. Les phases magnétiques sont également indiquées : antiferromagnétique AFM-jaune, ferromagnétique FM-bleu, paramagnétique PM-vert.

3.2.3 Film mince de $LSMO$

Les premiers dépôts de films épitaxiés de $LSMO$ de haute qualité remontent aux années 1990, dépôt par pulvérisation magnétron et PLD [191, 192]. La PLD a été la technique clé pour la croissance des films de $LSMO$, où les propriétés de type "massif" dans les films minces de $LSMO$ ont été reproduites par cette technique.

La qualité des films $LSMO$, dépend non seulement des conditions de dépôt par PLD (telles que la pression en oxygène, la puissance laser, la distance cible-substrat...), mais également du type de substrat utilisé. En effet, il a été démontré que selon le substrat

utilisé, différentes contraintes (de compression ou de traction) peuvent être induites dans les films $LSMO$ et qui ont pour conséquences de modifier leurs propriétés électriques (telle que la résistivité électrique) et magnétiques (aimantation à saturation et anisotropies magnétiques) [193] (voir figure 3.5). La figure 3.4 montre l'écart du paramètre maille entre le $LSMO$ sous forme massif et le substrat utilisé.

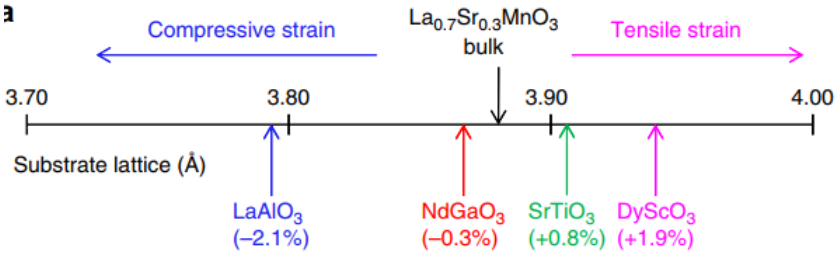

FIGURE 3.4 – [193] Écart du paramètre de maille entre le $LSMO$ et les quelques substrats couramment utilisés : 2.1% pour le LAO, 0.3% pour le NGO, 0.8% pour le STO et 1.9% pour le DSO.

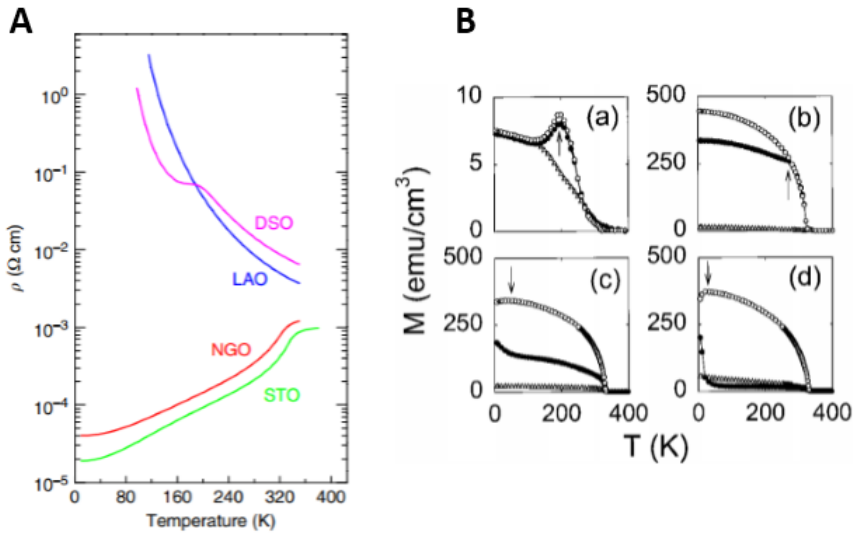

FIGURE 3.5 – [193] A) Dépendance en température de la résistivité des films minces de $LSMO$ de 8 nm d'épaisseur déposés sur différents substrats sous un champ magnétique nul, [194] B) Aimantation en fonction de la température des films de $LSMO$ déposés sur des substrats LAO (a), STO (b), LSAT (c) et NGO (d) selon 3 directions cristallographiques différentes .

Les substrats pérovskites les plus couramment utilisés pour la croissance épitaxiale de films minces de $LSMO$ sont $LaAlO_3$ (LAO), $(LaAlO_3)_{0.3}(Sr_2TaAlO_6)_{0.7}$ (LSAT), $NdGaO_3$ (NGO), $SrTiO_3$ (STO), $DyScO_3$ (DSO), etc. Les films $LSMO$ déposés sur STO, DSO subiront une déformation biaxiale en traction dans le plan, tandis que sur LAO, $LSAT$ et NGO, ils subiront une déformation biaxiale en compression dans le plan. La figure 3.6 montre les contraintes imposées par le substrat sur un film perovskite et son adaptation par rapport au substrat.

Parmi ces substrat, le titanate de strontium ($SrTiO_3$) (STO) est le plus utilisé pour le dépôt en couches minces d'oxydes tels que les $LSMO$, en raison de leurs nombreuses

propriétés. Le $SrTiO_3$ a une structure pérovskite stable. A température ambiante, il existe sous la forme cubique, mais se transforme en structure tétragonale à des températures inférieures à 105 ° K [195]. À très basse température, le titanate de strontium présente des caractéristiques piézoélectriques et supraconductrices. Le $SrTiO_3$ présente également une très grande constante diélectrique [195].

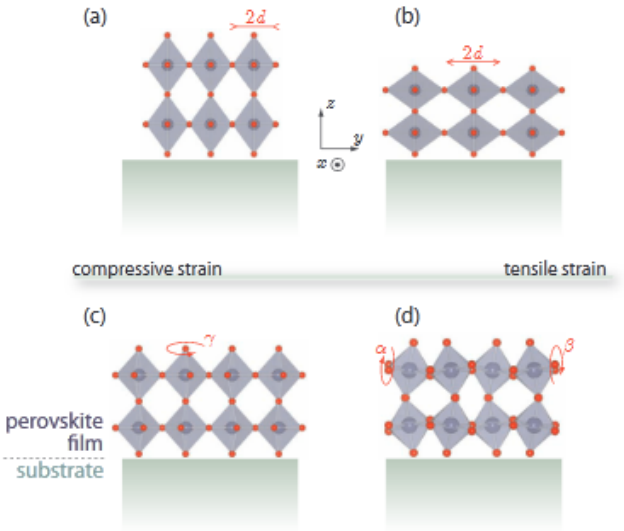

FIGURE 3.6 – [196] Schéma des déformations du réseau pour un film mince pérovskite épitaxié déformé sous (a) une déformation de compression dans le plan, (b) une déformation de traction dans le plan, respectivement. Les octaèdres BO_6 peuvent s'adapter aux changements induits par le substrat par une rotation soit perpendiculaire au substrat (c) et/ou autour d'un axe parallèle au plan du substrat (d).

3.3 Préparation des échantillons

Les échantillons à base de couches minces de $LSMO$ étudiés au cours de cette thèse, ont été déposés via la collaboration du LSPM avec le centre GREYC, Université Caen-Normandie.

Des films minces $LSMO$ ($La_{2/3}Sr_{1/3}MnO_3$) d'épaisseurs t_{LSMO} variables, où $t_{LSMO} = 6, 8, 10, 20\ et\ 30\,\text{nm}$, ont été déposés sur des substrats $SrTiO_3$ (STO) (001) par ablation laser (voir section 2.1.2), équipée d'un RHEED in situ de la société Twente Solid State Technology (TSST). Durant la croissance, la température de dépôt a été maintenue à 750° C sous une pression de 0.2 mbar d'oxygène avec une fréquence de pulvérisation de 1 Hz et une fluence de laser de 1.70 J.cm^{-2}.

Après le dépôt, les films de $LSMO$ ont été refroidis à température ambiante sous une pression de 500 mbar d'O_2. Ensuite, les échantillons ont été transférés dans une chambre de pulvérisation magnétron à courant continu (DC magnétron), sans rompre le vide, pour le dépôt d'une couche de Pt de 7 nm d'épaisseur à température ambiante sous une pression d'argon (Ar) de 4×10^{-2} mbar et à une puissance de 17.6 W. Le platine est utilisé ici comme matériau NM pour les mesures de pompage de spin. Une couche $LSMO$ de 10 nm d'épaisseur, non recouverte et déposée dans les mêmes conditions, est utilisée comme échantillon de référence.

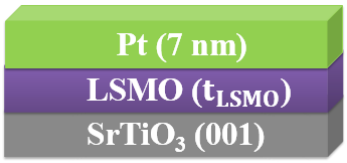

FIGURE 3.7 – Structure de l'empilement à base de $LSMO$ étudiée. Plusieurs épaisseurs (t_{LSMO}) de $LSMO$ ont été déposées où $t_{LSMO} = 6, 8, 10, 20$ *et* 30 nm.

3.4 Propriétés structurales

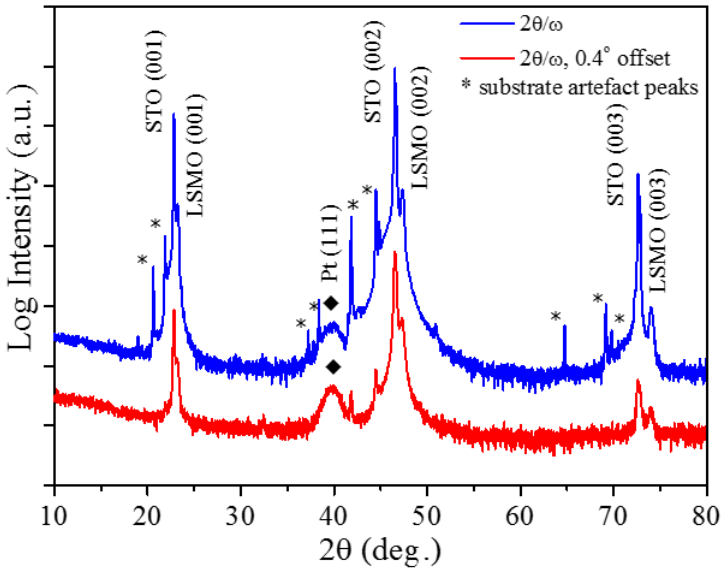

FIGURE 3.8 – Diagramme de diffraction des rayons X $2\theta/\omega$ d'un échantillon $LSMO$ (30 nm)/Pt (7 nm) déposé sur le substrat STO (001), en utilisant une source de rayons X (Cu).

La figure 3.8 montre les diagrammes XRD 2θ /ω mesurés pour une couche de $LSMO$ de 30 nm d'épaisseur recouverte de Pt. Les diagrammes indiquent la présence des pics de $LSMO$ et de substrat STO de type (001). En effet, trois pics nets correspondant aux réflexions (001), (002) et (003) du STO sont observés pour cet échantillon. Les pics principaux du $LSMO$ apparaissent à côté d'eux et sont marqués comme $LSMO$(001), $LSMO$(002) et $LSMO$(003), indiquant une croissance le long de la direction du $LSMO$(001). Cela confirme également la croissance épitaxiale attendue de la couche de $LSMO$ sur le substrat monocristallin STO (001), selon la relation $(001)LSMO||(001)STO$ et $[001]LSMO$ $|||[001]STO$. Le paramètre de maille hors plan de LSMO a été évalué à 3.84 Å. Cette valeur est inférieure au paramètre de la cellule unitaire pseudocubique du LSMO ($a_{LSMO} = 3.867$ Å) [197] suggérant la présence d'une contrainte de traction dans le plan du film mince de LSMO.

En effet, le paramètre de maille de STO est $a_{STO} = 3.905$ Å et une croissance épitaxiale dans le plan du film entraîne un allongement dans le plan du film, produisant ainsi une compression hors du plan. De plus, le diagramme de rayons X présente un pic de Pt (111), provenant de la couche de couverture de Pt. Pour mieux visualiser ce pic, nous avons également réalisé un diffractogramme 2θ /ω avec un décalage hors plan de 0.4° (en

ligne rouge sur la figure 3.8). Cela a permis de réduire pics artefacts supplémentaires liés au substrat (en étoiles dans la figure 3.8) induits par le fait que les rayons X utilisés ici ne sont pas monochromatiques. La croissance du $LSMO$ recouvert par Pt est donc similaire à celle du $LSMO$ non recouvert [198] et elle est en accord avec les investigations reportées dans [199, 200].

3.5 Propriétés statiques

Afin d'étudier l'anisotropie magnétique et le pompage de spin, la détermination de l'aimantation à saturation M_s et de l'épaisseur de la couche magnétique morte t_d est essentielle. Pour cela, les mesures VSM sont les premières à être effectuées, en appliquant un champ magnétique dans le plan et hors du plan des échantillons. La figure 3.9 montre un exemple des cycles d'hystérésis pour les couches $LSMO$ (20 et 30 nm).

Pour chaque échantillon, M_s est extraite de ces courbes à partir de la valeur de l'aimantation atteinte à la saturation. La dépendance de l'aimantation à saturation par unité de surface ($M_s \times t_{LSMO}$) en fonction des épaisseurs t_{LSMO} est ensuite tracée et ajustée linéairement afin de déterminer M_s et t_d : M_s à partir de la pente et t_d à partir de l'intercepte avec l'axe horizontal (figure 3.10). Nous obtenons $M_s = (323 \pm 19)$ emu.cm^{-3} et $t_d = (3.4 \pm 0.2)$ nm . L'aimantation à saturation obtenue est en bon accord avec celles rapportées dans les références [199, 201] ($M_s = 350$ emu.cm^{-3} et $M_s = 300$ emu.cm^{-3}) et elle est légèrement plus élevée que celle donnée (265 emu.cm^{-3}) par Lee et al. [200]. Globalement M_s obtenue est en agrément avec les valeurs relevées dans la littérature.

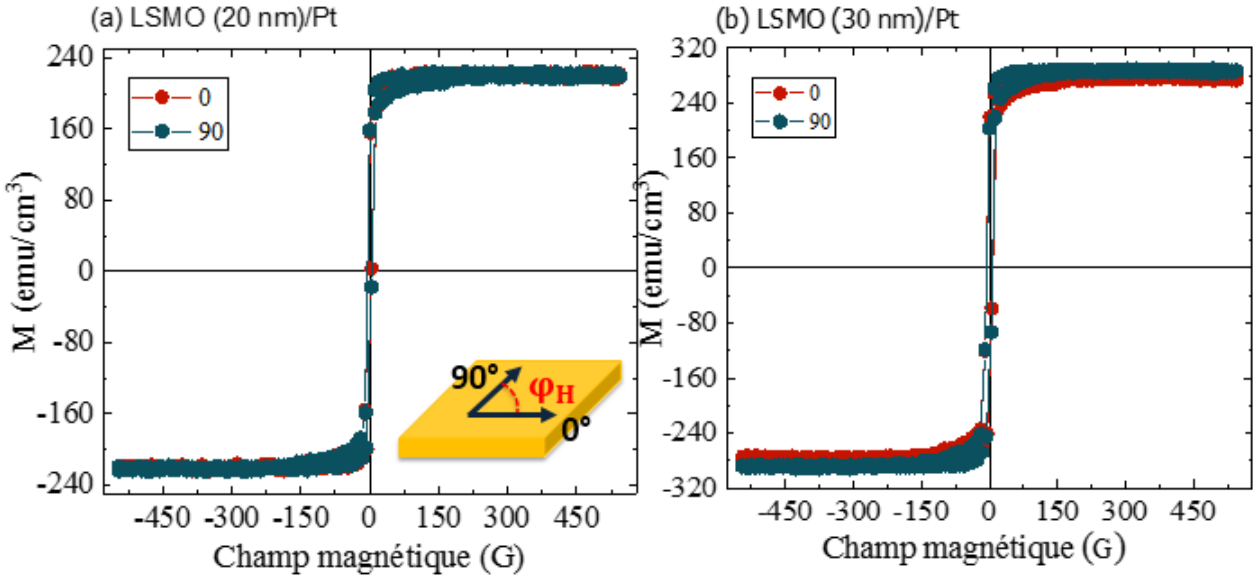

FIGURE 3.9 – Cycles d'hystérésis pour les échantillons (a) $LSMO$ (20 nm)/Pt et (b) $LSMO$ (30 nm)/Pt pour champ magnétique appliqué dans le plan à 0 ° et 90 ° par rapport aux bords du substrat.

La couche magnétique morte désigne la région à la surface ou à l'interface avec le substrat ($STO/LSMO$) et avec la couche de couverture ($LSMO/Pt$) où les propriétés ferromagnétiques du $LSMO$ ont diminué ou ont été modifiées de manière significative. L'origine de cette couche magnétique morte n'est toujours pas encore claire et encore sous débat, ce qui en fait le sujet de plusieurs recherches au cours des dernières années.

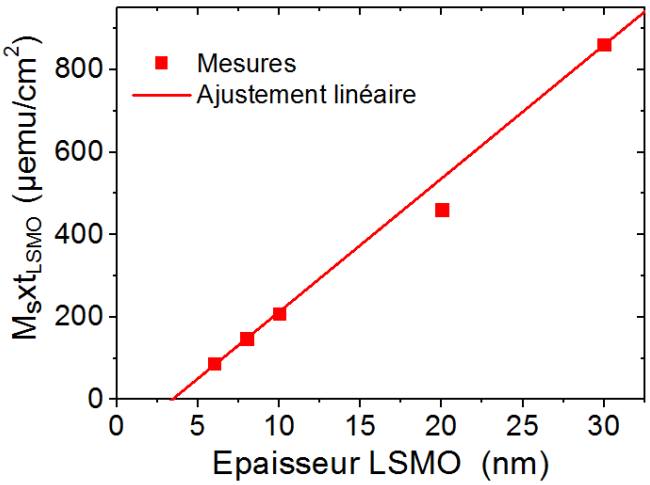

FIGURE 3.10 – Dépendance en épaisseur du moment magnétique à saturation par unité de surface pour les systèmes $LSMO/Pt$ de différentes épaisseurs de la couche LSMO (t_{LSMO}) recouvertes par une couche de Pt de 7 nm d'épaisseur. Les symboles indiquent les données expérimentales et la ligne continue représente l'ajustement linéaire.

Parmi les explication possibles, il a été suggéré que t_d contient probablement des lacunes d'oxygène (qui sont plus concentrées à la surface des films $LSMO$ ultra-minces) qui perturbent le couplage d'échange et donc détruisent l'ordre à longue portée [202]. Suite à la détermination de la couche magnétique morte, nous considérerons dans la suite de ce chapitre l'épaisseur effective du LSMO (t_{eff}) définie comme l'épaisseur nominale du $LSMO$ (t_{LSMO}) réduite par l'épaisseur de la couche morte : $t_{eff} = t_{LSMO} - t_d$.

3.6 Propriétés dynamiques

Dans cette section, nous présentons l'étude de l'anisotropie magnétique et du pompage de spin dans les films $LSMO/Pt$ par FMR.

3.6.1 Spectres FMR

La figure 3.11 montre un exemple des spectres FMR, mesurés à différentes fréquences microondes d'excitation(5, 6 et 8 GHz) et représentant l'amplitude de la dérivée de la puissance absorbée par rapport au champ, en fonction du champ magnétique appliqué dans le plan pour un film $LSMO$ de 8 nm d'épaisseur ($LSMO$ (8 nm)/Pt). Ces spectres sont ajustés par l'équation 2.8, afin de déterminer le champ de résonance (qui sera utilisé pour le calcul de l'aimantation effective M_{eff}) et la demi-largeur à mi-hauteur de la raie FMR, utilisée pour les calculs de l'amortissement de Gilbert α_{LSMO} et de la conductance par mixage de spin $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$, que nous verrons plus tard.

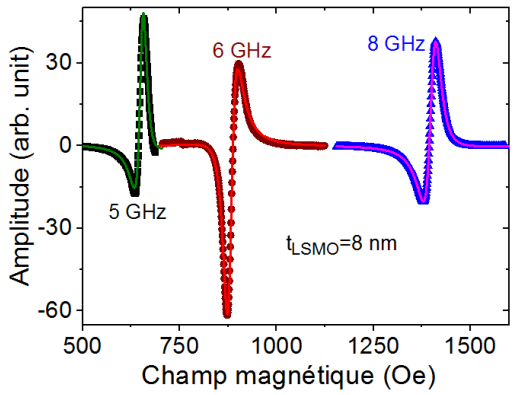

FIGURE 3.11 – Spectres FMR (mesurés à différentes fréquences) représentant l'amplitude de la dérivée de la puissance absorbée, par rapport au champ appliqué, en fonction du champ magnétique appliqué dans le plan pour le film $LSMO$ (8 nm)/Pt . Les symboles font référence aux données expérimentales et les lignes représentent l'ajustement en utilisant l'équation 2.8.

3.6.2 Le rapport gyromagnétique

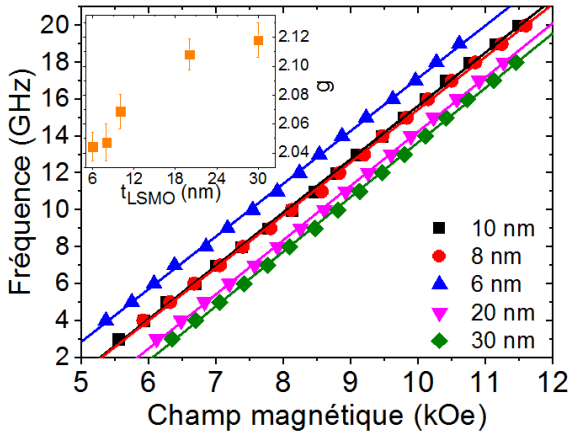

FIGURE 3.12 – Variation de la fréquence du mode de précession uniforme en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan pour le système $LSMO/Pt$ (7 nm) de différentes épaisseurs de la couche $LSMO$. Les symboles font référence aux données expérimentales et les lignes représentent l'ajustement en utilisant l'équation 2.16.

En plus de la détermination de M_s et de t_d, le rapport gyromagnétique $\gamma/2\pi$ est également important pour l'étude de l'anisotropie magnétique et du pompage de spin. Pour cela, nous avons étudié les variations de la fréquence de précession uniforme de l'aimantation en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan du film, pour toutes les épaisseurs de $LSMO$. La figure 3.12 illustre cette dépendance. Le facteur gyromagnétique est obtenu à partir de la pente de l'ajustement linéaire des données expérimentales avec l'équation 2.16. L'insert de la figure 3.12 montre la dépendance en épaisseur du facteur g (facteur de Landé), déterminé à partir des valeurs obtenues de $\gamma/2\pi$, où $\gamma/2\pi = g \times 1.397$ (MHz/Oe). Le facteur g diminue avec la diminution de l'épaisseur, ce qui est cohérent avec les études précédentes sur les films minces métalliques [203, 204]. Pour la plus grande épaisseur ($LSMO$ (30 nm)/Pt), la valeur du facteur g est (2.11 ± 0.012), ce qui donne une estimation de la valeur de g pour le $LSMO$ massif. Il faut noter

la faible variation en épaisseur du facteur g pour les films épais de $LSMO$ (égale ou supérieur à 20 nm), confirmant à nouveau que la valeur du facteur g du $LSMO$ massif se situe autour de 2.11 ± 0.012. On doit mentionner aussi que le facteur g diminue à au fur et à mesure que l'épaisseur diminue pour atteindre la valeur de 2.04 ± 0.01 qui est proche de celle du facteur g de l'électron libre, indiquant une petite interaction spin-orbite [205]. Il convient de mentionner que le facteur g est connu pour dépendre de la composition et il est fortement influencé par les effets de surface et d'interface, du fait de forte dépendance de la symétrie locale [205]. De tels effets d'interface peuvent conduire à de fortes augmentations du rapport entre moment angulaire orbital et le moment angulaire de spin, qui est lié au facteur g.

3.6.3 Anisotropie magnétique

Nous étudions l'anisotropie magnétique en commençant par l'investigation de la dépendance angulaire hors du plan du champ de résonance. La figure 3.13 montre cette dépendance mesurée à la fréquence de 7 GHz pour deux échantillons de $LSMO$ (10 et 20 nm)/Pt en plus de l'échantillon de référence, sans couche de couverture en Pt. Pendant les mesures, les échantillons ont été tournés de 180° (avec un pas de 5°) de la direction dans le plan ($\theta_H = \pm 90°$) à la normale au plan de la couche ($\theta_H = 0°$). Les maxima et minima du champ de résonance identifient clairement les axes de difficile et de facile aimantation. Le comportement angulaire est dominé par une anisotropie effective uniaxiale perpendiculaire avec un axe facile dans le plan.

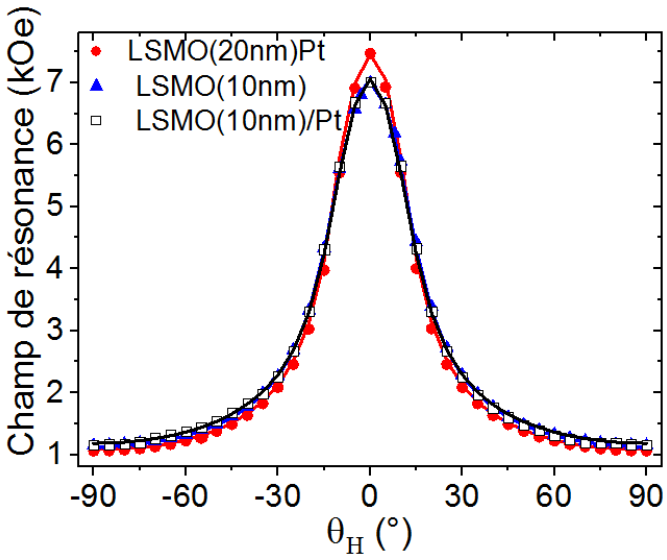

FIGURE 3.13 – Variations du champ de résonance en fonction de l'angle hors du plan (θ_H) (qui définit la direction du champ magnétique appliqué par rapport à la normale au plan du film), mesurées à une fréquence de 7 GHz, pour les systèmes $LSMO$ (20 et 10 nm)/Pt et pour la couche de $LSMO$ de référence d'épaisseur 10 nm sans la couche de couverture en Pt. Les données expérimentales (symboles) sont ajustées (lignes) par l'équation 2.15.

Nous avons également étudié la dépendance angulaire du champ de résonance FMR dans le plan de la couche, où φ_H désigne l'angle entre le champ magnétique appliqué dans le plan par rapport à un bord du substrat (voir figure 2.16).

Cette dépendance, mesurée à 5 GHz pour les échantillons $LSMO$(8 nm)/Pt et pour la couche de référence $LSMO$ (10 nm) sans Pt, est illustrée sur la figure 3.14. Cette fi-

gure montre que la dépendance angulaire du champ de résonance du $LSMO$ (10 nm) non recouvert par le Pt, est dominée par une anisotropie d'ordre 4 (biaxiale) avec des axes faciles le long des bords du substrat (axes [100] et [010]), en plus d'une anisotropie uniaxiale également le long de l'un des bords du substrat. Il est bien connu que les films $LSMO$ déposés sur STO (001) présentent une anisotropie d'ordre 4 dans le plan avec les axes de facile aimantation le long de [110] et [1$\bar{1}$0] (à 45° par rapport aux bords du substrat). Cette anisotropie à été associée à l'épitaxie totale dans le plan entre le film de $LSMO$ et le substrat STO [198, 206, 207] et elle a été attribuée à une origine magnétocristalline. De plus, Vila-Fungueirino et al. [208] ont rapporté que les films $LSMO$ déposés sur STO (001) présentent une anisotropie magnétocristalline d'ordre 4, avec un axe facile le long de la direction [110], superposée à une anisotropie uniaxiale plus faible. La cellule unitaire monoclinique déformée du $LSMO$ produit une large différence des recouvrements orbitales le long des directions équivalentes à l'axe facile [110], introduisant ainsi le supplément d'anisotropie uniaxiale [208]. Généralement, il est important de préciser que l'anisotropie magnétique des films minces de $LSMO$ est très sensible à la symétrie et à la morphologie du substrat, et que les déformations du réseau peuvent induire une anisotropie supplémentaire le long de la direction de la contrainte de traction [194]. L'anisotropie uniaxiale

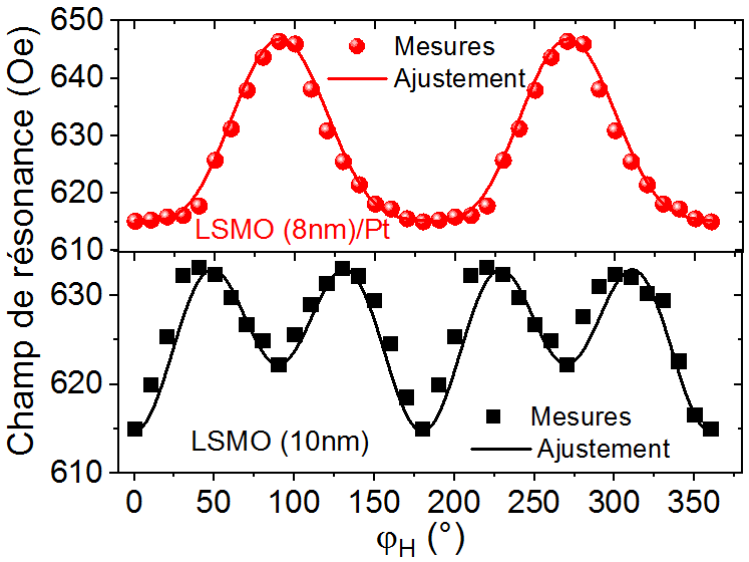

FIGURE 3.14 – Champ de résonance FMR en fonction de la direction du champ magnétique appliqué dans le plan par rapport au bord du substrat (φ_H) mesuré à une fréquence de 5 GHz pour le système $LSMO$ (8 nm)/Pt et la couche de référence de $LSMO$ de 10 nm d'épaisseur sans la couche de couverture en Pt. Les symboles font référence aux données expérimentales et les lignes sont les ajustements utilisant l'équation 2.17.

observée pourrait également être induite par la morphologie du substrat, par exemple par les marches résiduelles du substrat dues à un désalignement lors de découpage du substrat selon un axe cristallographique (substrat vicinal) [209]. La dépendance angulaire dans le plan du système $LSMO$ (8 nm)/Pt semble être régie par une anisotropie uniaxiale. Cependant, une observation attentive de cette dépendance angulaire nous permet d'observer que le comportement n'est pas une pure sinusoïde, suggérant l'existence d'autres termes d'anisotropie.

Par conséquent, pour la détermination précise des différentes contributions à l'anisotropie dans le plan, la dépendance angulaire du champ de résonance (pour les deux échantillons) a été ajustée à l'aide l'équation 2.17. Ainsi, les meilleurs ajustements (en

ligne rouge sur la figure 3.14), ont révélé que pour le système $LSMO$ (8nm)/Pt, la dépendance angulaire résulte de la contribution du champ d'anisotropie magnétique d'ordre 4 où $H_4 = (7 \pm 0.5)$ Oe et par conséquent $K_4 = (0.57 \pm 0.07) \times 10^3$ erg.cm^{-3}, avec des axes faciles le long des directions [110] et [1$\bar{1}$0] superposée à un champ d'anisotropie uniaxiale plus élevé, ayant pour valeur $H_u = (16.75 \pm 1)$ Oe [$K_u = (2.7 \pm 0.29) \times 10^3$ erg.cm^{-3}], le long d'un bord du substrat STO. Pour la couche de référence de $LSMO$ (10 nm), l'ajustement de la dépendance angulaire dans le plan de l'échantillon (en ligne noire sur la figure 3.14) a donné, $H_4 = (16 \pm 1)$ Oe [$K_4 = (1.29 \pm 0.14) \times 10^3$ erg.cm^{-3}] avec des axes faciles le long de [100] (et des directions équivalentes) et d'un champ d'anisotropie uniaxiale $H_u = (4 \pm 0.3)$ Oe [$K_u = (0.64 \pm 0.073) \times 10^3$ erg.cm^{-3}]. Nous précisons qu'aucune anisotropie significative d'ordre 4 n'a été détectée dans les différents échantillons LSMO/Pt étudiés et que l'anisotropie uniaxiale dans le plan reste faible et inférieure à 16 Oe. Des tendances similaires (anisotropie uniaxiale dominante dans le plan) ont été rapportées pour les systèmes $LSMO/STO$ [199, 200].

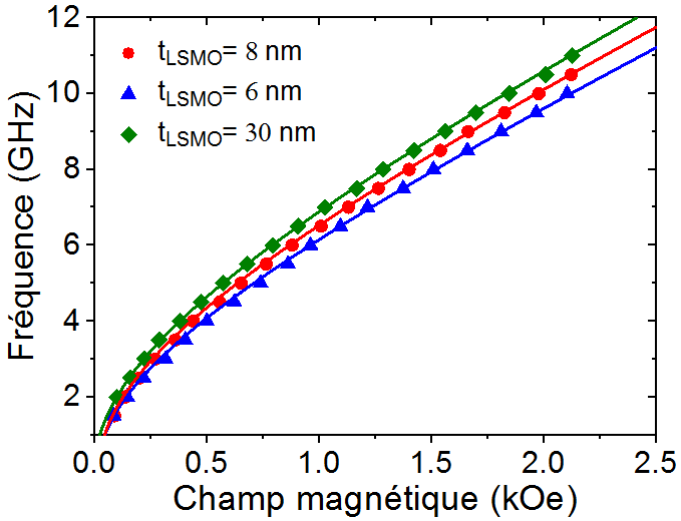

FIGURE 3.15 – Variation de la fréquence du mode de précession uniforme en fonction du champ magnétique appliqué dans le plan pour le système $LSMO/Pt$ (7 nm) avec différentes épaisseurs de $LSMO$ ($t_{LSMO} = 6, 8\, et\, 30$ nm). Les directions du champ magnétique appliqué sont $\varphi_H = 40°, 90°$ et $50°$, respectivement pour $t_{LSMO} = 6, 8$ et 30 nm. Les symboles font référence aux données expérimentales et les lignes sont des ajustements utilisant l'équation 2.17.

Dans la suite, nous allons présenter l'étude de l'anisotropie magnétique perpendiculaire qui peut être directement déterminée à partir de l'aimantation effective. Ainsi, les fréquences du mode de précession uniforme en fonction des champs magnétiques appliqués perpendiculairement et dans le plan des échantillons (figure 3.15 pour une direction φ_H donnée) ont été ajustées à l'aide des équations 2.15 et 2.17, respectivement, afin d'extraire les valeurs de l'anisotropie perpendiculaire effective. Ainsi, les valeurs obtenues ($M_{eff\parallel}$ et $M_{eff\perp}$ pour les champs magnétiques appliqués dans le plan et perpendiculairement au plan de l'échantillon, respectivement) sont ensuite représentées en fonction de l'inverse de l'épaisseur effective de $LSMO$ ($1/t_{eff}$). La figure 3.16 présente ces données, pour lesquelles nous remarquons une différence significative entre les valeurs de $M_{eff\parallel}$ et $M_{eff\perp}$. Cette différence suggère l'existence d'un terme d'anisotropie perpendiculaire de second

ordre caractérisé par la constante $K_{2\perp}$ en plus du terme conventionnel d'anisotropie perpendiculaire uniaxiale, comme indiqué dans l'équation 2.15. Ainsi, selon cette équation et pour un champ magnétique appliqué dans le plan ($\theta_H = 90°$), la contribution de $K_{2\perp}$ à la fréquence s'annule et l'ajustement des données expérimentales (figure 3.15) conduit à $M_{eff\parallel}$. Par conséquent, les mesures sous champ magnétique appliqué dans le plan sont indépendantes de $K_{2\perp}$.

Pour un champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan ($\theta_H = 0°$), la fréquence de précession du mode uniforme varie linéairement en fonction du champ de résonance (figure 3.12) où l'intersection avec l'axe horizontal donne $M_{eff\parallel} - \frac{4K_{2\perp}}{M_s}$. Ainsi, les constantes uniaxiales et du second ordre d'anisotropie perpendiculaire ont été déduites en combinant les mesures FMR de la fréquence de résonance en fonction du champ magnétique appliqué dans le plan (figure 3.15) et perpendiculairement au plan (figure 3.12). A noter que la precision sur les valeurs de $K_{2\perp}$ a été vérifiée en ajustant la dépendance angulaire hors plan du champ de résonance par l'équation 2.15 où un bon accord a été observé (figure 3.13). De plus, il n'aurait pas été possible d'ajuster les données expérimentales de la figure 3.13 sans l'utilisation de la constante $K_{2\perp}$.

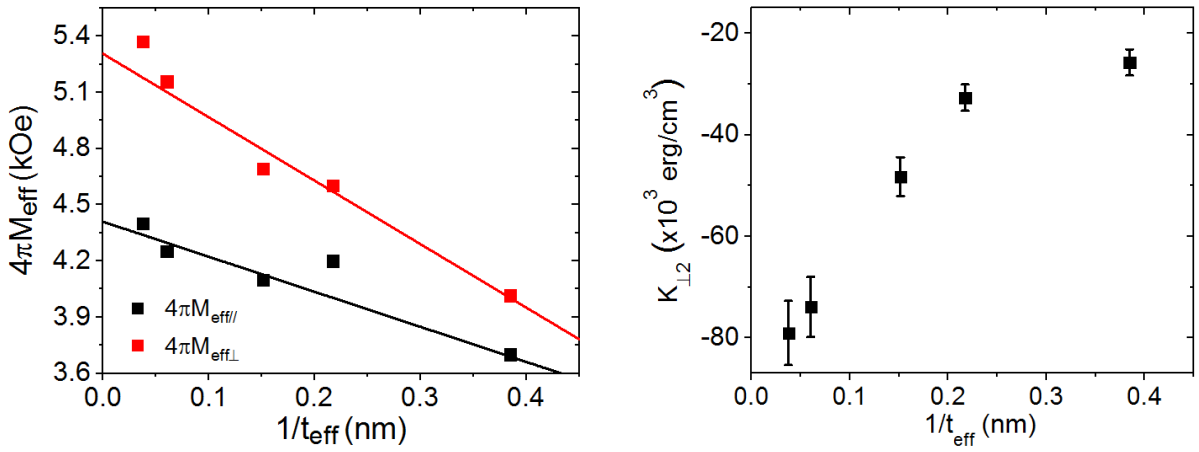

FIGURE 3.16 – A gauche : dépendance des aimantations effectives $4\pi M_{eff\parallel}$ et $4\pi M_{eff\perp}$ extraites de l'ajustement des mesures FMR sous des champs magnétiques appliqués dans le plan et perpendiculairement au plan, respectivement, en fonction de l'inverse des épaisseur effectives de $LSMO$, pour les systèmes $LSMO/Pt$. Les symboles font référence aux données expérimentales et les lignes sont les ajustements linéaires. A droite : dépendance de la constante d'anisotropie perpendiculaire du second ordre ($K_{2\perp}$) en fonction de l'inverse de l'épaisseur effective du $LSMO$ pour les systèmes $LSMO/Pt$.

Les valeurs obtenues de $K_{2\perp}$ (représentées dans la figure 3.16) montrent une augmentation (en valeur absolue) de cette constante avec l'augmentation de l'épaisseur du $LSMO$, suggérant l'existence des contributions d'interface. De plus, le signe négatif de ce terme indique qu'il renforce l'axe de facile aimantation dans le plan. Plusieurs origines peuvent être attribuées à ce terme. $K_{2\perp}$ peut par exemple, survenir des contraintes mécaniques non uniformes existantes aux interfaces présentant une grande disparité cristallographique [210]. Dieny et al. [211] ont également montré analytiquement que les fluctuations spatiales de l'épaisseur du film peuvent conduire à un terme d'ordre supérieur si la période des fluctuations est inférieure à la longueur d'échange du matériau FM [210, 211].

Dans la suite, nous nous intéressons à l'anisotropie perpendiculaire uniaxiale $K_\perp$ qui obéit à la relation :

$$K_\perp = K_v + \frac{K_s}{t_{eff}} \tag{3.1}$$

où K_s est la constante d'anisotropie perpendiculaire de surface et K_v, est la constante du volume. En combinant les équations 2.13 et 3.1, nous déduisons que :

$$4\pi M_{eff} = 4\pi M_s - \frac{2K_v}{M_s} - \frac{2K_s}{M_s t_{eff}} \tag{3.2}$$

Ainsi, les constantes d'anisotropie ont été déterminées à partir de l'ajustement linéaire de la courbe de $4\pi M_{eff\parallel}$ en fonction de $1/t_{eff}$ (figure 3.16). K_s et K_v sont extraites à partir de la pente et de l'intersection avec l'axe vertical, respectivement. La valeur obtenue de $K_s = (0.03 \pm 0.004)$ erg.cm^{-2} est très faible et négligeable, suggérant que la contribution de l'interface à l'anisotropie perpendiculaire est insignifiante, contrairement aux systèmes à base de métaux de transition FM tels que Pt/Co [68]. La constante d'anisotropie perpendiculaire de volume $K_v = (-0.57 \pm 0.07) \times 10^5$ erg.cm^{-3} favorise l'axe facile aimantation dans le plan et elle est significativement inférieure aux valeurs rapportées dans les références [200, 198]. En effet, en ne tenant compte que de $M_{eff\parallel}$, les constantes d'anisotropie perpendiculaire de surface et de volume sont sous-estimées puisque la contribution de $K_{2\perp}$ à ces deux termes est négligée. Nous avons alors utilisé $4\pi M_{eff\perp}$ et déduit la constante d'anisotropie effective de surface $K_{seff} = (0.055 \pm 0.007$ erg.cm$^{-2})$ et de volume $K_{veff} = (-2.01 \pm 0.035) \times 10^5$ erg.cm^{-3}. Ainsi, alors que l'anisotropie perpendiculaire de surface reste très faible par rapport à celle de l'interface Co/Pt par exemple, K_{veff} est en accord avec les valeurs rapportées par Belmeguenai et al. [206] (-2.5×10^5 erg.cm^{-3}) et par Lee et al. [200] (-4×10^5 erg.cm^{-3}). L'origine principale de cette anisotropie perpendiculaire est généralement considérée comme provenant de la déformation interfaciale par le biais du couplage magnétoélastique [212].

3.6.4 Amortissement magnétique et pompage de spin

Nous avons également étudié l'amortissement magnétique des échantillons $LSMO$ en mesurant la demi-largeur à mi-hauteur (ΔH) des raies FMR. La figure 3.17 montre la dépendance angulaire typique (pour une direction φ_H appliquée du champ magnétique dans le plan) pour les échantillons de $LSMO$ (8 nm)/Pt et $LSMO$ (10 nm) sans Pt à une fréquence de 5GHz.

Le comportement anisotrope prononcé de ΔH est en désaccord avec le caractère isotrope de l'amortissement intrinsèque de Gilbert, et par conséquent, nous déduisons que la largeur de raie observée dans la figure 3.17 doit résulter des contributions extrinsèques supplémentaires. Dans nos échantillons, les contributions extrinsèques proviennent principalement de la diffusion à deux magnons, de la mosaïcité et des inhomogénéités (voir partie 1.1.6.2). Pour la couche de $LSMO$ (10 nm), ΔH présente la même symétrie d'ordre 4 qui a été observée dans la dépendance angulaire du champ de résonance (figure 3.14). Dans le cas de l'échantillon $LSMO$ (8 nm)/Pt, la dépendance angulaire de ΔH montre principalement une symétrie uniaxiale avec des minima qui correspondent aux axes difficiles de l'aimantation. Un tel comportement anisotrope de ΔH reflétant la symétrie du champ de résonance est une caractéristique de la diffusion à deux magnons. Cette contribution de diffusion à deux magnons a été confirmée par la dépendance angulaire hors plan de ΔH. En effet, lorsque nous passons du plan à la direction hors plan, ΔH augmente

avant de diminuer significativement au voisinage de la direction normale au plan pour laquelle elle atteint son minimum (figure 3.18). La diffusion à deux magnons peut être corrélée à la présence de défauts orientés préférentiellement selon des directions cristallographiques spécifiques, conduisant ainsi à une asymétrie. Par conséquent, la dépendance angulaire ($\Delta H(\varphi_H)$) a été ajustée par l'équation 2.18, où les paramètres d'ajustement sont indiqués dans le tableau 3.1.

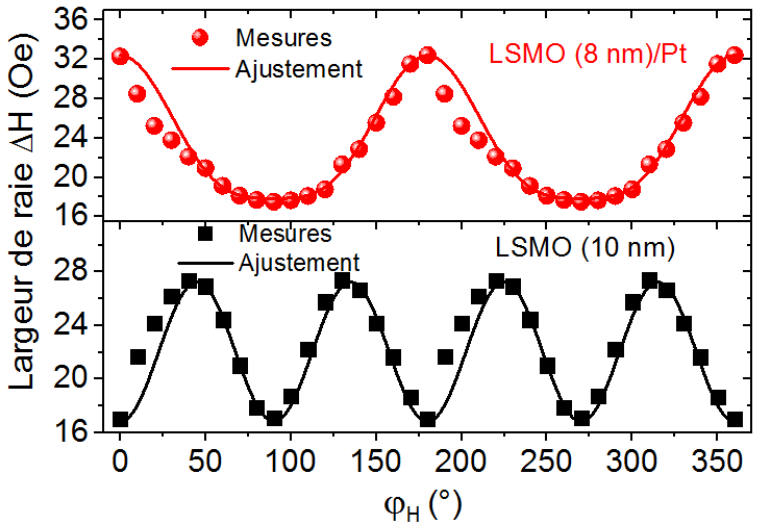

FIGURE 3.17 – Dépendance de la demi-largeur à mi-hauteur (ΔH) de la raie FMR en fonction de la direction du champ magnétique appliqué dans le plan par rapport au bord de l'échantillon (φ_H), mesurée à une fréquence de 5 GHz pour le système $LSMO$ (8nm)/Pt et la couche $LSMO$ de référence de 10 nm d'épaisseur. Les symboles font référence aux données expérimentales et les lignes sont les ajustements utilisant l'équation 2.18 et les paramètres dans le tableau 3.1.

Système	$\Delta H_0(Oe)$	$\alpha \times 10^{-3}$	Γ_0 (Oe)	Γ_2 (Oe)	Γ_4 (Oe)	$4\pi M_{eff}$ (kOe)	$\varphi_2(°)$	$\varphi_3(°)$
$LSMO$ (10 nm)	10 ± 0.5	3.62 ± 0.08	15.35 ± 0.75	0	14 ± 0.5	4.2 ± 0.1		45 ± 2
$LSMO$ (8 nm)/Pt	5.7 ± 0.3	7.9 ± 0.25	10.35 ± 1	20 ± 1	4.5 ± 0.75	4.5 ± 0.1	0	0 ± 2

TABLE 3.1 – Paramètres utilisés pour le meilleur ajustement des données expérimentales de la largeur de raie FMR de la figure 3.17. Nous rappelons que Γ_0, Γ_2 (et φ_2) et Γ_4 (et φ_3) sont des coefficients (et direction) utilisés pour caractériser l'amplitude de la contribution de la diffusion à deux magnons.

La dépendance angulaire de $\Delta H(\theta_H)$ a été ajustée par l'équation 2.18 en prenant en compte des considérations théoriques complexes présentées en détail dans les références [213, 214], où les contributions à la largeur de raie sont les mêmes que pour le cas du champ magnétique appliqué dans le plan. Toutefois, une grande différence est présente dans les expressions théoriques de la mosaïcité ΔH^{mos} et du processus de diffusion à deux magnons ΔH^{2mag} où réside toute la complexité du modèle utilisé pour l'ajustement de la figure 3.18 [213, 214] :

$$\Delta H^{mos} = |\frac{\partial H}{\partial \theta_H}| \Delta \theta_H \tag{3.3}$$

$$\Delta H^{2mag} = 2\Gamma(H,\theta_H)\sin^{-1}\sqrt{\frac{-H_y}{H_x+4\pi M_{eff}}\frac{\cos(2\theta_M)}{\cos^2(\theta_M)}} \tag{3.4}$$

où $\Gamma(H,\theta_H)$ est une fonction qui varie selon la valeur et la direction du champ magnétique externe. Cette fonction prend en considération les défauts du film ferromagnétique (dans les trois dimensions dans l'espace, représentés par les coefficients a et b dans l'équation 3.5), de l'échange et d'une fonction supplémentaire (fonction de trainage [213]) notée $\Xi(\theta_H,\theta_M)$ représentant la déviation de l'aimantation à l'équilibre par rapport à la direction du champ magnétique appliqué conduisant à un élargissement de la raie FMR [213] :

$$\Gamma(H,\theta_H) = \frac{\gamma_0}{(H_x+H_y)^2\Xi(\theta_H,\theta_M)}(aH_y^2+b\times[H_x\cos(2\theta_M)+H_y\cos^2\theta_M]^2+[H_x\cos(2\theta_M)-H_y\sin^2\theta_M]^2) \tag{3.5}$$

où γ_0 est un coefficient représentant l'amplitude de la fonction $\Gamma(H,\theta_H)$. Il convient de mentionner que dans le cas d'une géométrie dans le plan, les coefficients Γ sont des constantes (voir équation 2.21), alors que dans le cas d'un champ magnétique et d'une aimantation hors du plan, Γ devient une fonction variable $\Gamma(H,\theta_H)$. Les paramètres donnant le meilleur ajustement de la figure 3.18 sont présentés dans le tableau 3.2.

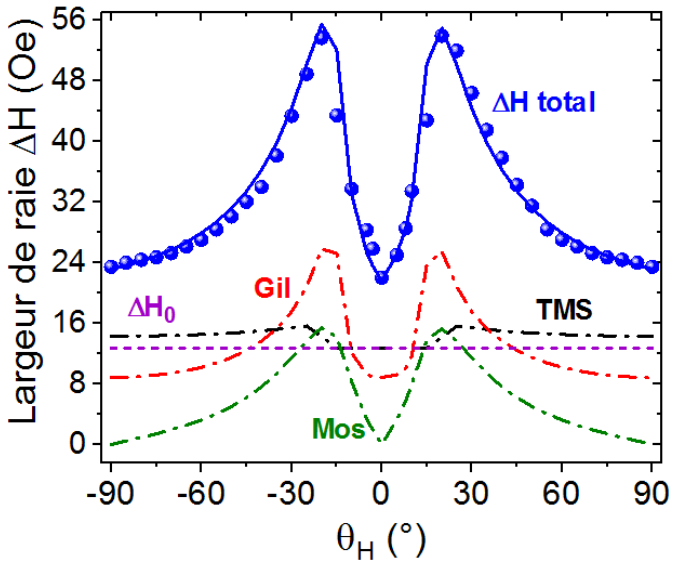

FIGURE 3.18 – Dépendance angulaire hors du plan de la demi-largeur à mi-hauteur (ΔH) pour la couche de référence de $LSMO$ (10 nm) sans Pt, mesurée à 7GHz. Les symboles font référence aux données expérimentales et les lignes sont des ajustements utilisant l'équation 2.18. La contribution intrinsèque à la largeur de raie (amortissement de Gilbert) est représentée par l'ajustement en ligne rouge, en plus des contributions extrinsèques : en noir (diffusion à deux magnons TMS), en vert (mosaïcité, Mos), en violet (les inhomogénéités, ΔH_0). Les paramètres du meilleur ajustement sont indiqués dans le tableau 3.2.

A noter que dans notre banc de mesure FMR, le rapport signal/bruit est plus faible pour les mesures sous champ magnétique appliqué perpendiculairement, en particulier pour les films $LSMO$ les plus minces (inférieurs à 10 nm). Nous avons donc limité les mesures avec champ appliqué perpendiculaire à la détermination du facteur gyromagnétique et nous avons déduit l'amortissement de Gilbert des mesures de la largeur de raie le long de la direction du champ appliqué dans le plan (plus sensible et plus rapide), où

ΔH est minimal. En effet, en choisissant cette direction, les contributions extrinsèques à la largeur de raie sont par conséquent minimisées. Les dépendances fréquentielles de ΔH pour les divers échantillons sont représentées sur la figure 3.19 où les directions de champ appliquées sont mentionnées dans la légende de la figure. Le calcul de la pente pour chaque échantillon (voir equation 2.22) a permis de déduire les coefficients d'amortissement de Gilbert représentés sur la figure 3.20 en fonction de $1/t_{eff}$.

Système	$\Delta H_0(Oe)$	$\alpha \times 10^{-3}$	$\Delta\theta_H(^\circ)$	γ_0 (Oe)	$4\pi M_{eff\parallel}$ (kOe)	$4\pi M_{eff\perp}$ (kOe)
$LSMO$ (10 nm)	12.7 ± 0.6	3.62±0.08	0.34±0.02	0.4±0.08	4.6 ± 0.1	3.46 ± 0.3

TABLE 3.2 – Paramètres utilisés pour le meilleur ajustement de la courbe expérimentale de la largeur de raie FMR hors du plan de la couche de référence de $LSMO$ (10 nm) sans Pt, présentée dans la figure 3.18.

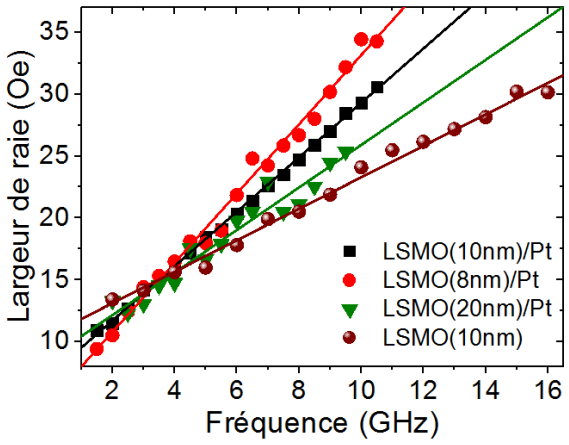

FIGURE 3.19 – Dépendance en fréquence de la demi-largeur à mi-hauteur (ΔH) des raies FMR pour le système $LSMO/Pt$ avec différentes épaisseurs de $LSMO$, en plus de l'échantillon de référence $LSMO$ (10 nm). Les directions du champ magnétique appliqué sont φ_H= 90 °, 40 ° et 60 °, respectivement, pour t_{LSMO}= 8, 10 et 20 nm. Pour l'échantillon de référence, les mesures ont été acquises pour φ_H= 0 °. Les symboles font référence aux données expérimentales et les droites sont des ajustements linéaires. Le champ magnétique a été appliqué dans la direction où ΔH est minimale.

Cette figure révèle que α augmente linéairement avec $1/t_{eff}$, confirmant ainsi la nature interfaciale du pompage de spin dans le système $LSMO/Pt$. Ainsi, nous considérons que l'amortissement total est donné par $\alpha = \alpha_{LSMO} + \alpha_{pumping}$, où α_{LSMO} est la constante d'amortissement de Gilbert du $LSMO$ massif et $\alpha_{pumping}$ est l'amortissement supplémentaire introduit par l'effet de pompage de spin (voir section 2.5). Par conséquent, on extrait $\alpha_{LSMO} = (3.76 \pm 0.09) \times 10^{-3}$ à partir de l'intersection avec l'axe verticale et $g_{eff}^{\uparrow\downarrow} = (4.25 \pm 0.3)$ nm^{-2} à partir de la pente, respectivement.

La valeur obtenue de α_{LSMO} est légèrement supérieure à la valeur rapportée par Lee et al. (1.91×10^{-3}) [200] et en bon accord avec la couche de référence de $LSMO$ (10 nm) où $\alpha_{LSMO} = (3.62 \pm 0.09) \times 10^{-3}$. Cependant la valeur obtenue de $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ est significativement inférieure à celles d'autres systèmes, par exemple de Py/Pt (30 nm^{-2}) [215] et de Co/Pt (45 nm^{-2}) [216]. Néanmoins, cette constante est comparable à celles rapportées pour

Pt/YIG (6.9 nm^{-2}) [217] et $LSMO/Pt$ (5.5 nm^{-2}) [200]. Pour cette dernière référence, nous précisons que la valeur obtenue a été déduite des mesures d'un seul échantillon $LSMO$ (30 nm)/Pt, ce qui la rend moins précise.

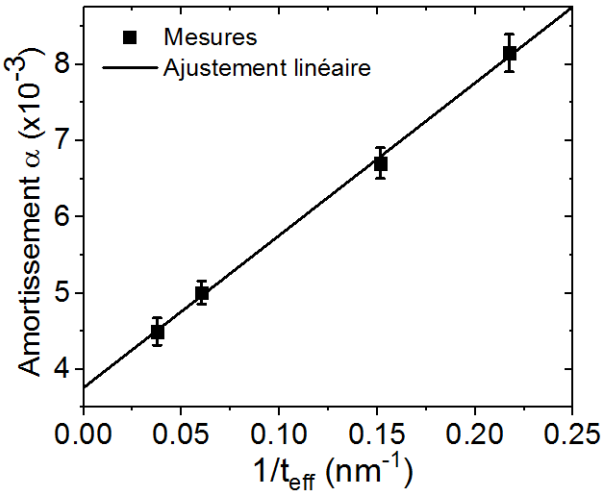

FIGURE 3.20 – Amortissement de Gilbert en fonction de l'inverse de l'épaisseur effective du $LSMO$ pour les films $LSMO/Pt$. Les symboles indiquent les données expérimentales et la ligne droite est l'ajustement en utilisant l'équation 2.34.

3.7 Conclusion chapitre

L'étude de l'anisotropie magnétique, de l'amortissement magnétique (avec ses différentes origines) et du pompage de spin dans le système de $LSMO/Pt$ a été présentée dans ce chapitre. Les mesures VSM ont révélé une faible aimantation à saturation avec une couche magnétique morte relativement épaisse, probablement due à des lacunes qui perturbent le couplage d'échange et détruisent donc l'ordre à longue portée.

Les investigations par le biais de la FMR ont montré l'existence d'une anisotropie perpendiculaire du second ordre et de faible constante d'anisotropie de surface. L'étude de l'anisotropie magnétique dans le plan a démontré l'existence d'une anisotropie uniaxiale en plus d'une faible anisotropie d'ordre 4.

La dépendance angulaire de la largeur de raie FMR a démontrée la présence de plusieurs contributions à l'amortissement magnétique, dont principalement l'amortissement de Gilbert et le processus de diffusion à deux magnons. La couche de couverture en Pt déposée sur le film de $LSMO$ a permis d'améliorer l'amortissement de Gilbert dans ces systèmes conduisant à une valeur modérée de la conductance par mixage de spin. Enfin, cette investigation permet de conclure que la faible aimantation à saturation combinée avec le faible coefficient d'amortissement de Gilbert font de l'empilement $La_{2/3}Sr_{1/3}MnO_3$/Pt un bon candidat pour les dispositifs spintroniques tels que les applications pour les spin-OLED.

Chapitre 4

Étude des phénomènes d'interface reliés au couplage spin-orbite dans les systèmes à base de Co : effet d'empilement et du recuit

Dans ce chapitre, nous présentons l'investigation des phénomènes reliés à l'effet couplage spin-orbite dans les héterostructures à base de Co. Dans un premier temps, nous nous intéresserons à l'étude de la PMA et de l'iDMI pour des systèmes tels qu'ils sont déposés (non-recuits) et recuits, en fonction des matériaux non magnétiques (NM) et de l'ordre d'empilement. Ces systèmes sont notés X/Co/Y où X et Y sont différents matériaux NM. Puis dans un second temps, nous étudions ces phénomènes dans les multicouches de $[Pt/Co/W]_N$, où le nombre de répétitions $N = 1, 2, 3, 5$ et 7.

4.1 Introduction

Les dispositifs électroniques basés sur le spin (spintronique) possèdent de nombreux avantages par rapport aux dispositifs conventionnels basés sur la charge de l'électron qui souffrent d'une consommation d'énergie élevée, d'un courant de fuite et d'une saturation de leurs performances. Les matériaux magnétiques sont très prometteurs pour une utilisation dans de tels dispositifs car l'orientation du spin des électrons peut être facilement manipulée par des champs magnétiques externes ou des courants électriques polarisés en spin. La différence de population d'électrons de spin up et de spin down dans les matériaux magnétiques induisent un flux net de courant polarisé en spin. En raison des propriétés d'hystérésis intrinsèques des matériaux ferromagnétiques, un dispositif spintronique peut idéalement "se souvenir" de l'état défini pendant un temps indéfini. Par conséquent, ces matériaux non volatils à base de spin permettent une augmentation significative de la densité de stockage et en économie d'énergies tout en offrant de nouvelles fonctionnalités. Parmi les matériaux ferromagnétiques, le cobalt (Co) est au cœur des dispositifs spintroniques.

Le Co massif est ferromagnétique à température ambiante, possède une T_c de 1120 ° C et son moment magnétique est équivalent à 1.6-1.7 μ_B/atome. Sa structure cristalline est hexagonale compacte (hcp) à température ambiante qui se transforme en une structure cubique à faces centrées (fcc) à 420 ° C. Le Co est utilisé dans la fabrication de matériaux nécessaires à diverses applications, allant de la production d'aimants, de métaux durs, à la fabrication de batteries lithium-ion et dans les secteurs de la pétrochimie et de la

construction automobile. Il est (et ses alliages) également l'un des métaux de transition les plus utilisés dans l'électronique et l'enregistrement magnétique. De plus, de nombreuses propriétés de ses alliages découlent de sa nature cristallographique, en particulier, sa réponse aux contraintes.

Ainsi, le Co et ses alliages ont été intensivement étudiés au cours des dernières décennies pour des applications potentielles en spintronique. Parmi ces alliages, nous pouvons citer par exemple, les alliages Heusler à base Co (Co_2XY, X : atome de métal de transition et Y : est un élément du groupe III à V), en raison de leurs demi-métallicité de leurs grandes températures de Curie et du faible coefficient d'amortissement magnétique [218], ou des alliages de CoFeB dans les empilement en CoFeB/NM, compte tenu des grands taux TMR observés [51] et des fortes PMA relevées aux interfaces [55].

Cependant, l'intégration de tels matériaux dans les dispositifs spintroniques n'est pas encore entièrement validée, où des connaissances profondes permettant le contrôle précis des propriétés magnétiques dans les structures à base de films de Co est encore nécessaire. Pour cela, nous proposons d'étudier les phénomènes d'interface reliés au couplage spin-orbite (SOC) d'interface dans les systèmes à base de Co. Nous nous intéresserons aux effets du matériau NM (comme couche de couverture ou sous-couche), du recuit (qui modifie la structure cristalline des matériaux) et de la structure en multicouches connue pour augmenter la PMA par exemple [219]. Une attention particulière est donnée à l'iDMI qui joue un rôle déterminant dans la stabilisation des Skyrmions [64]. En effet, l'iDMI est actuellement au centre de l'attention de la communauté du magnétisme, en raison des nombreuses applications spintroniques associées [127, 128].

L'ajustement et le contrôle de l'iDMI sont indispensables pour les applications. Quatre méthodes peuvent être utilisées pour modifier l'iDMI dans les systèmes à trois couches :

- Utilisation de divers matériaux non magnétiques, comme couche de couverture ou sous-couche.
- Variation de l'épaisseur de la couche ferromagnétique.
- Variation de l'épaisseur des couches non magnétiques (voir chapitre 5 et 6).
- Recuit à différentes températures.

Dans la première partie de ce chapitre, nous présentons l'effet du premier et du deuxième facteur pour des échantillons non-recuits et recuits à 300°C. Il serait alors possible d'optimiser sur mesure, les valeurs de l'iDMI grâce aux éléments X et Y dans les systèmes de X/Co/Y. De plus, il est de la plus haute importance d'évaluer le signe et l'amplitude de l'iDMI dans les multicouches, notamment parce que de telles investigations sont encore manquantes. Dans la seconde partie de ce chapitre, nous présenterons l'investigation de la PMA, l'iDMI et l'amortissement magnétique dans les multicouches de $[Pt/Co/W]_N$.

4.2 Interface Pt/Co

En raison de la présence de l'interface Pt/Co dans les système étudiés dans ce chapitre, nous allons dans cette partie rappeler brièvement quelques propriétés et notions sur la PMA et de l'iDMI au niveau de cette interface.

4.2.1 PMA

L'origine de la PMA a d'abord été démontrée pour les interfaces de type matériau lourd/matériau ferromagnétique (HM/FM). Dans le cas de l'interface Pt/Co qui nous concerne, la forte PMA est due à l'hybridation entre les orbitales 3d du Co et 5d du Pt [68]. Le Pt est source d'une forte interaction spin-orbite, couplant les moments orbitaux et les moments de spin à l'interface.

L'hybridation des orbitales 3d-5d et la forte interaction spin-orbite ont de nombreuses conséquences. Dans le cas du Co, les orbitales qui favorisent une orientation de moment magnétique hors du plan seront privilégiées. Pour le Pt, cette hybridation induit des moments magnétiques à la surface du Pt, appelée aimantation induite par effet de proximité (PIM, proximity induced magnetization). C'est un effet d'interface qui est produit par le matériau HM en contact d'une couche FM. le PIM est associé à la large valeur du facteur de Stoner, pour des matériaux tels que le Pt, Ir, Pd et W [220, 221]. Le PIM viendra donc renforcer l'anisotropie perpendiculaire, expliquant pourquoi parmi les meilleurs valeurs de PMA observées, la présence du Pt y est largement associée. On recense ainsi des valeurs d'anisotropie de surface K_s, avoisinant ou supérieures à 1 erg/cm^2 [22].

A noter que dans les interfaces de Pt/Co, la réorientation perpendiculaire a été mesurée pour des épaisseurs critiques légèrement proches ou inférieures à 2 nm [222].

4.2.2 Amortissement magnétique et pompage de spin

En plus de la grande PMA, le grand nombre atomique du platine devrait produire un large pompage de spin. Le Pt est alors considéré comme un bon matériau de réservoir de spin, où des valeurs de conductance par mixage de spin proche de $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ =45 nm^{-2} [216] et jusqu'à $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ =90 nm^{-2} [223] pour des bicouches Pt/Co ont été relevées.

En effet, Barati et al. [224] ont constaté une augmentation remarquable de l'amortissement de Gilbert dans les biocouches de Co/NM (par rapport aux films de Co pur) et même quelques fois plus, dans le cas d'une couche de Pt. L'augmentation de α viendra ainsi renforcer $g^{\uparrow\downarrow}$. Néanmoins, son augmentation devient plus faible pour les films de Co plus épais et la dépendance de l'amortissement par rapport à l'épaisseur de Co, montre une diminution monotone avec l'augmentation de t_{Co}, où α diminue d'environ 45 fois en présence du Pt lorsque l'épaisseur du Co passe de 1 à 28 monocouches atomiques [224].

L'amélioration obtenue de l'amortissement de Gilbert dans les bicouches de Pt/Co résultent de deux facteurs principaux :

- Un fort SOC dans le Pt, plus lourd que le Co.
- Une grande densité d'états électroniques présente au niveau de Fermi E_F dans le Pt, due aux différentes positions énergétiques de l'étroite bande "d", donnant ainsi une contribution importante à l'amortissement.

Par conséquent, dans les bicouches de Pt/Co, les contributions majoritaires à l'amortissement proviennent des quelques plans atomiques de la couche de Pt, qui sont les plus proches de l'interface Pt/Co.

4.2.3 iDMI

Il est bien connu qu'un fort SOC existe à l'interface Pt/Co et par conséquent, l'amplitude de l'iDMI est très grande à cette interface. De plus, il est important d'étudier la

bicouche Pt/Co qui constitue un point de comparaison par rapport aux reste des matériaux NM. De ce fait, nous pouvons alors facilement prédire l'amplitude de l'iDMI qui peut être déterminée dans nos échantillons en tricouches grâce à la sous-couche de Pt.

Dans la bicouche Pt/Co, Yang et al. [96] ont démontré sur la base d'un calcul *ab initio* que l'iDMI est générée principalement au niveau de la première couche atomique de Co la plus proche de l'interface et ainsi, l'intensité de l'iDMI est inversement proportionnelle à l'épaisseur de la couche de Co jusqu'à une monocouche atomique. Inversement, un autre calcul effectué par Jia et al. [225] a prédit une contribution significative des seconds atomes de Co les plus proches à l'interface Pt/Co, ce qui entraîne une dépendance non monotone de l'intensité de l'iDMI par rapport à l'épaisseur de la couche de Co. Les deux études s'accordent sur le fait que ce phénomène interfacial provient de quelques couches atomiques près des interfaces, mais les contributions détaillées de chaque couche atomique à l'iDMI avec les mécanismes associés sont encore à débattre.

4.3 Traitement thermique

Au cours de cette thèse, nous avons également procédé au recuit de certains échantillons afin d'étudier son effet sur les propriétés magnétiques (et les phénomènes SOC d'interface) de nos empilements en couches minces.

Le traitement thermique est utilisé en science des matériaux comme un procédé permettant d'optimiser les propriétés des films minces. En effet, les variations de température peuvent entraîner des changements dans les propriétés structurelles, dans l'arrangement des atomes et dans le comportement magnétique des films ultraminces. Le recuit peut ainsi provoquer une transition de phase, la formation d'alliages, le mélange, la cristallisation, le changement de la température de Curie et l'élimination des contraintes résiduelles... Il est alors important d'étudier l'effet du recuit dans le cas de nos échantillons, sachant que les phénomènes d'interface que nous étudions sont fortement sensibles à la structure, au mélange et aux contraintes aux niveaux des interfaces FM/NM. Ainsi pour les application en spintronique, il a été démontré une forte augmentation du taux TMR dans les MTJ à base de CoFeB/MgO après recuit jusqu'à 400° C [226, 62]. Dans ce cas, le recuit a pour conséquence d'améliorer considérablement la cristallisation des électrodes CoFeB initialement amorphes, donnant lieu en plus à de forts taux TMR, une meilleur stabilité thermique par l'augmentation de la PMA [62]. Cependant, concernant l'iDMI, nous savons peu de choses sur l'effet du recuit sur ce phénomène, particulièrement lorsque différents empilements de films FM et NM sont utilisés. Il serait alors intéressant pour nous d'étudier l'effet du recuit sur l'iDMI en plus de la PMA et du pompage de spin. Dans ce chapitre, nous étudions l'effet du recuit sur les films à base de Co, et dans le chapitre 6 dans les structures à base de CoFeB.

4.4 Anisotropie magnétique perpendiculaire et interaction iDMI dans les systèmes ultraminces X/Co/Y non-recuits et recuits

Dans cette partie, nous avons étudié la dépendance de l'iDMI et de la PMA en fonction de l'épaisseur du Co dans les systèmes de X/Co/Y non-recuits et recuits à 300°C. Le choix judicieux des matériaux X et Y pourrait conduire à l'optimisation des applications

en spintroniques à travers la modulation de la PMA et de l'iDMI. Pour ce faire, nous avons combiné la BLS et la FMR en plus de la VSM et de la XRD.

4.4.1 Préparation des échantillons

4.4.1.1 Choix des empilements

Les échantillons étudiés ici peuvent être classés en trois séries (figure 4.1) :

- Si/SiO_2//Ru(6nm)/Co (t_{Co})/Ti(3nm), appelé **Ru/Co/Ti**.
- Si/SiO_2//W (6nm)/Co (t_{Co})/Ti (3nm), appelé **W/Co/Ti**.
- Si/SiO_2//Ta (3nm)/**X**/ Co(t_{Co})/**Y**/Ta (3nm), où X représente Pt(3nm) ou Ir(3nm).Y peut être du Pt(3nm), Ir (3nm), Cu (3nm) ou MgO(1nm). Les échantillons sont alors notés : **Pt/Co/MgO**, **Pt/Co/Cu**, **Pt/Co/Ir**, **Pt/Co/Pt**, **Ir/Co/Pt** et **Ir/Co/Cu** selon l'empilement, où l'épaisseur du film de Co varie de 0.8 nm à 5.7 nm.

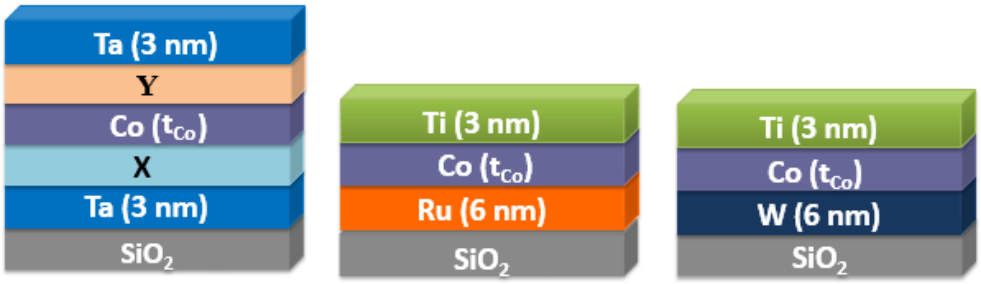

FIGURE 4.1 – Structure de l'empilement des échantillons à base de Co. Y peut être du Pt(3nm), Ir (3nm), Cu (3nm) et X Pt(3nm) ou Ir(3nm).

Le choix des matériaux listés ci-dessus, est basé sur l'étude de leur effet sur l'iDMI et la PMA. En effet trois types de matériaux ont été sélectionnés : des métaux légers comme Ti, Cu et Ru, l'oxyde de magnésium (MgO) et des matériaux HM tels que Pt, Ir et W. L'iDMI est induite dans des systèmes où un matériau HM est en contact avec une couche FM ultra mince en raison de la rupture de l'inversion de symétrie à la surface et du fort SOC du matériau HM. Il a été prouvé expérimentalement que Pt, Ir et W sont presque les seuls matériaux HM induisant une iDMI significative avec des signes opposés. Ainsi, les systèmes à base de Pt sont connus pour présenter la plus grande iDMI [227], par rapport aux structures à base d'Ir [228] et de W [229]. Par conséquent, pour une comparaison directe de l'iDMI entre eux, le Pt, Ir et W sont utilisés comme sous-couches et/ou couches de couverture.

Les métaux légers tels que le Cu et le Ti sont censés avoir une iDMI négligeable et sont donc utilisés pour isoler la contribution à l'iDMI des interfaces individuelles avec les matériaux HM (Pt, Ir et W). De plus, la couche de Cu a été choisie du fait de son immiscibilité avec le Co, tandis que le choix du Ru est motivé par le fait que l'iDMI pourrait également être présente dans les bicouches à base de Ru/Co comme il a été révélé par Scepka et al. [230].

Enfin, nous avons choisi le MgO, un oxyde diélectrique, comme troisième option. Outre son utilisation en tant que barrière dans les MTJs présentant des taux TMR élevés [51], le MgO est au centre d'une discussion intensive sur les mécanismes alternatifs de l'iDMI qui peuvent avoir lieu aux interfaces métal/oxyde grâce à l'interaction Rashba due à un champ électrique très fort produit par le transfert de charge entre le métal et l'oxygène. De même, le MgO est extrêmement efficace pour générer la PMA, qui est utilisée dans de nombreuses importantes applications. Un fort champ cristallin induit par l'hybridation des orbitales d du Co et des orbitales sp de l'oxygène dans le MgO peut produire une anisotropie interfaciale relativement importante même dans les matériaux où le SOC est relativement faible [231].

4.4.1.2 Dépôt des échantillons

Les échantillons étudiés dans cette partie ont été élaborés via la collaboration du LSPM avec le Dr. Mihai Gabor du centre de supraconductivité, spintronique et sciences de surfaces de l'université de Cluj-Napoca en Roumanie.

Les échantillons ont été déposés à température ambiante, sur des substrats de silicium thermiquement oxydés, par pulvérisation magnétron. Les couches métalliques ont été déposées sous une pression d'argon de 1 mTorr, tandis que la couche de magnésium a été déposée sous une pression d'argon de 10 mTorr.
Pour la troisième série d'échantillons, la sous-couche de Ta (de 3 nm d'épaisseur) a été déposée directement sur le substrat afin d'améliorer la rugosité et de faciliter la texturation (111) de la couche supérieure de Pt. Une couche de couverture supplémentaire de Ta (également de 3 nm d'épaisseur) a été déposée pour protéger les échantillons de l'oxydation due à l'exposition à l'air.

La vitesse de dépôt a été calibrée par des mesures ex situ de réflectométrie aux rayons X et l'épaisseur a été calculée en tenant compte du temps de dépôt. Comme nous le verrons plus loin, deux types d'échantillons ont été étudiés, à savoir des échantillons non-recuits et recuits. Les systèmes présentant une constante iDMI significative et une épaisse couche magnétique morte ont été choisis pour étudier l'effet du recuit sur l'iDMI. Les systèmes Pt/Co/Ir, Pt/Co/MgO, Ir/Co/Pt et W/Co/Ti ont donc été recuits ex situ (au LSPM) à une température modérée de 300°C (pour éviter l'alliage avec le Co) pendant 60 minutes et sous vide avec une pression inférieure à 5×10^{-6} mbar. Pendant le chauffage, la température à été modifiée à une vitesse de 5°C/min et après le recuit, les échantillons ont été refroidis à une vitesse d'environ 4°C/min jusqu'à atteindre une température de 200°C, avant d'être retirés dans un sas.

A noter que dans la suite et pour toutes les mesures (VSM, FMR et BLS), nous commençons par présenter les résultats des échantillons non recuits, puis dans un second temps, nous passons aux échantillons recuits.

4.4.2 Propriétés structurales

Deux spectres XRD des échantillons non-recuits à base de Co et utilisant différents matériaux de couverture ou de sous-couches sont illustrés sur la figure 4.2. Dans le cas de l'échantillon avec la sous-couche de Ru, en plus du pic correspondant au substrat Si, un seul pic est observable correspondant au Ru (0001), indiquant ainsi que la sous-couche de Ru croît avec la texture hcp (0001). En raison de l'épaisseur relativement faible du film de Co et du faible facteur de diffusion atomique, aucun pic XRD provenant du film de

Co n'a été observé. Cependant, il est très probable que le film de Co se développe suite à l'empilement hcp de la sous-couche de Ru [232]. Dans le cas de l'échantillon de W, outre le pic correspondant au substrat de Si, les pics β-W (200), (210) et (211) ont été détectés, confirmant que la sous-couche de W est en phase β, où aucune réflexion de la phase α-W na été observée. Une fois de plus, aucun pic de Co n'est détecté.

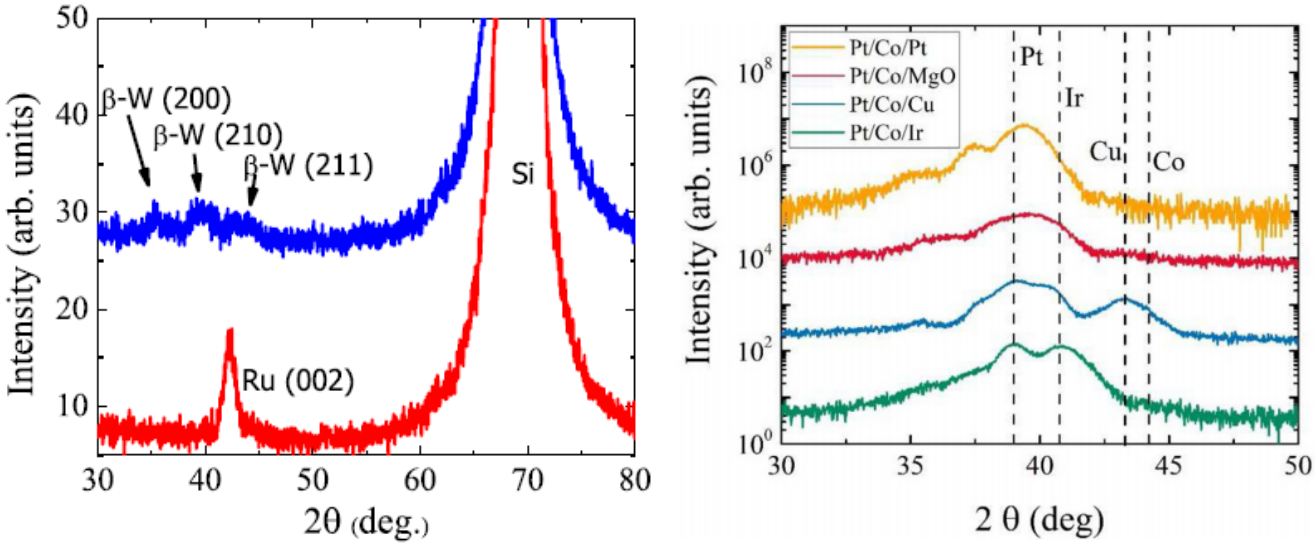

FIGURE 4.2 – Diagramme XRD $2\theta/\omega$ mesurés pour (à gauche) Ru/Co (1.4nm)/Ti et W/Co (1.6 nm)/Ti et (à droite) pour des échantillons représentatifs de Pt/Co/ MgO, Pt/Co/Ir et Pt/Co/Cu ayant une épaisseur nominale de couche de Co de 1.6 nm et un échantillon de Pt/Co/Pt avec une épaisseur nominale de couche de Co de 1 nm. Les lignes pointillées verticales indiquent la position des réflexions de Pt (111) et d'Ir (111) enregistrées.

Enfin concernant le Pt et l'Ir, les films présentent une texturation (111) avec différents degrés de déformation, comme il a été précédemment rapporté [222]. En effet la figure 4.2 montre également les diagrammes XRD ($2\theta/\omega$) mesurés pour les échantillons de Pt/Co/MgO, Pt/Co/Ir et Pt/Co/Cu ayant une épaisseur nominale de Co de 1.6 nm et un échantillon de Pt/Co/Pt avec une épaisseur nominale de couche de Co de 1 nm. Les données présentées ont été mesurées dans une fenêtre d'angle 2θ relativement étroite autour des positions attendues des réflexions de type (111) de Pt, Ir, Co et Cu. Des pics satellites asymétriques sont observables, le plus intense étant situé pour les plus faibles angles, ce qui est typique d'une hétérostructure déformée [233]. Dans le cas de l'échantillon de Pt/Co/MgO, le diagramme de diffraction montre un pic principal proche de la position du Pt (111), où des pics satellites asymétriques peuvent également être observés. Dans le cas de l'échantillon Pt/Co/ Cu, le pic principal correspondant à la réflexion du Pt (111) est fortement déformé, ce qui est attendu car ce type d'échantillon est soumis au plus haut degré de contrainte en raison de la différence entre distances interréticulaires des plans (111) du Pt (d_{111} =0.2265 nm) du Co (d_{111} = 0.2047 nm) et du Cu (d_{111} = 0.208 nm). Pour cet échantillon, un autre pic est visible, correspondant à la réflexion du Cu (111). Dans le cas de l'échantillon Pt/Co/Ir, le diagramme de diffraction consiste en un large pic avec deux maxima locaux correspondant aux réflections Pt et Ir (111). De même, pour tous les échantillons, aucun pic de Co n'est observé, en raison de la faible épaisseur du Co.

4.4.3 Propriétés statiques

En contact avec matériau NM, une couche magnétique morte pourrait apparaitre dans le film de Co, lorsque par exemple, des atomes du matériau NM diffusent dans la couche de Co. Nous commençons alors, en utilisant la VSM, par la mesure de l'aimantation à saturation (M_s) et de l'épaisseur de la couche magnétique morte (t_d). La figure 4.3 montre la dépendance typique du moment magnétique de saturation par unité de surface ($M_s \times t_{Co}$) en fonction de l'épaisseur de Co pour certains des systèmes non recuits et recuits. M_s et t_d sont directement déterminés à partir des ajustements linéaires de ces données, où la pente donne M_s, tandis que l'intersection avec l'axe horizontal donne l'épaisseur de la couche magnétique morte t_d.

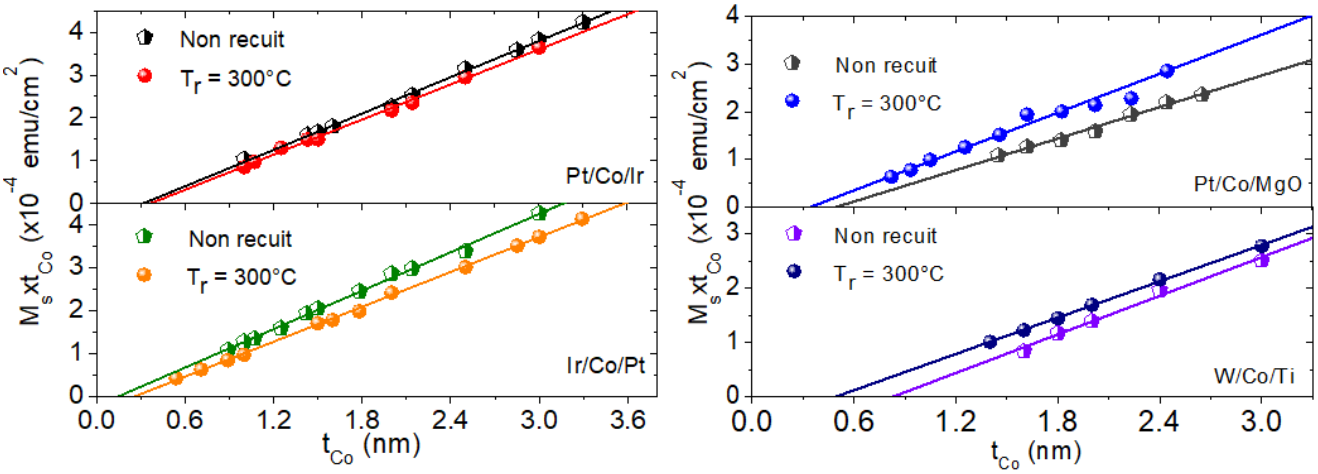

FIGURE 4.3 – Moment magnétique à saturation par unité de surface en fonction de l'épaisseur du Co pour des échantillons non recuits et recuits (T_r). Différents empilements avec divers matériaux comme sous-couche et couche de couverture sont représentés. Les symboles font référence aux mesures VSM et les droites représentent les ajustements linéaires.

Les valeurs mesurées de M_s et de t_d sont résumées dans la tableau 4.1. Aucune couche magnétique morte n'a été relevée dans les structures de Pt/Co/Pt et Pt/Co/Cu, suggérant que les interfaces Pt/Co et Co/Cu ne contribuent pas à t_d, ce qui est en bon accord avec l'immiscibilité attendue du Cu et du Co [234]. De plus, nous remarquons une valeur de t_d plus élevée dans le système Pt/Co/Ir par rapport à celle de Ir/Co/Pt, indiquant une grande interdiffusion à l'interface Co/Ir lorsque l'Ir est déposé sur le film de Co, ce qui est en accord avec les mesures obtenues par Gabor et al. [235] et Lau et al. [236]. De même, une couche magnétique morte plus épaisse peut être observée pour le système W/Co/Ti par rapport à l'empilement de Ru/Co/Ti en raison de l'interdiffusion plus importante à l'interface de W/Co. La présence d'une couche morte magnétique dans le cas des échantillons de Pt/Co/MgO pourrait être associée à une oxydation partielle du Co lorsque le MgO est déposé sur ce dernier.

M_s varie considérablement avec les empilements. La plus grande valeur d'aimantation ($M_s = 1495 \pm 50$ emu.cm^{-3}) a été observée pour le système Ir/Co/Pt et la plus faible pour la structure Pt/Co/MgO ($M_s = 1100 \pm 70$ emu.cm^{-3}). La faible valeur de M_s pour les échantillons Pt/Co/MgO est très probablement attribuée à l'oxydation du Co à l'interface

Co/MgO et à la contamination de la couche de Co par l'oxygène [237]. En effet, il a été démontré précédemment [238, 239] que les atomes d'oxygène peuvent migrer à travers l'interface dans le volume et contaminer la couche de Co, ce qui entraîne une diminution de M_s , en fonction du degré de contamination par l'oxygène. Enfin, la valeur relativement faible de M_s pour les systèmes Ru/Co/Ti et W/Co/Ti peut être liée à l'interdiffusion, à la formation d'un alliage interfacial et à la réduction de la température de Curie par rapport à un film pur de Co [234]. A noter que les valeurs de M_s obtenues pour les empilements Pt/Co/Pt, Pt/Co/Ir et Ir/Co/Pt sont en bon accord avec celles rapportées par Lau et al. [236].

Système	M_s (emu.cm^{-3})		t_d (nm)	
	Non recuit	recuit à 300°	Non recuit	recuit à 300°
Pt/Co/Ir	1412 ± 60	1350 ± 60	0.31 ± 0.07	0.36 ± 0.07
Ir/Co/Pt	1495 ± 50	1350 ± 40	0.15 ± 0.05	0.26 ± 0.04
Pt/Co/Cu	1230 ± 70		0	
Pt/Co/MgO	1100 ± 70	1345 ± 60	0.5 ± 0.1	0.32 ± 0.06
W/Co/Ti	1200 ± 70	1120 ± 50	0.84 ± 0.12	0.49 ± 0.07
Ir/Co/Cu	1300 ± 70		0.15 ± 0.06	
Ru/Co/Ti	1200 ± 70	1350 ± 60	0.35 ± 0.06	
Pt/Co/Pt	1380 ± 60		0	

TABLE 4.1 – Paramètres obtenus à partir des meilleurs ajustements des courbes $M_s \times t_{Co}$ en fonction de t_{Co} pour divers systèmes à base de Co et utilisant différentes couches de couverture et sous-couches en contact avec le film de Co.

Après recuit, seuls les échantillons de Pt/Co/MgO présentent une augmentation de M_s et une diminution de t_d, permettant ainsi à conclure à une amélioration de la qualité de ces échantillons. Ceci est probablement dû à la diffusion d'oxygène interpénétrés dans la couche de Co vers l'interface Co/MgO pour former une interface bien nette [239]. En effet, comme rapporté par Gweon et al. [239], la solubilité de l'oxygène dans le Co est très limitée. De plus, l'énergie libre de Gibbs de formation du MgO dans la gamme de température qui nous intéresse actuellement, c'est à dire à 300° C , est significativement inférieure à celle des oxydes de Co tels que le CoO et le Co_3O_4 comme le montrent les calculs de Jung et Lim [240]. En effet, ils ont montré que par rapport à certains autres oxydes tels que les oxydes de Co, la pression partielle d'oxygène à l'équilibre est la plus faible pour le MgO sur la gamme de température (298-1200) ° K, indiquant que MgO est le plus stable parmi les autres oxydes. On s'attend donc à ce que les atomes d'oxygène interpénétrés dans la couche de Co se diffusent à l'interface Co/MgO pendant le recuit pour former une interface bien nette, comme cela a été observé par Gweon et al [239] par microscopie électronique à transmission. Par conséquent, le rôle dominant de la séparation des atomes d'oxygène interpénétrés dans le film de Co recuit est responsable de l'amélioration du M_s [239].

Dans le cas des échantillons de W/Co/Ti, l'aimantation à saturation varie peu après recuit, mais l'épaisseur de la couche morte diminue de la moitié. En absence de caractérisation interfaciale nous supposons que le recuit conduit à des interfaces plus nettes avec la couche de Co et donc à une couche morte magnétique plus faible.

L'épaisseur t_d augmente légèrement pour Pt/Co/Ir et plus significativement pour le système Ir/Co/Pt ($t_d = 0.26$ nm). Ces résultats sont en accord avec la tendance précédemment rapportée par Yakushiji et al. [241] où une couche magnétique morte de 0.35

nm a été mesurée à l'interface Ir/Co. Cependant, malgré cette augmentation, t_d reste plus épaisse (même après recuit) pour le système Pt/Co/Ir, suggérant qu'elle est plus grande lorsque le film d'Ir est placé au-dessus du Co. L'aimantation à saturation diminue pour Pt/Co/Ir et Ir/Co/Pt et devient ainsi comparable entre ces deux systèmes. Cette dégradation de M_s avec le recuit pour les deux systèmes pourrait être associée à la dégradation de l'interface du Co avec Ir.

4.4.4 Facteur gyromagnétique

La technique FMR a été utilisée pour la mesure du rapport gyromagnétique $\gamma/2\pi$, en sondant la fréquence du mode de précession uniforme en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan des échantillons ($F_\perp(H)$). En raison de l'absence du signal FMR pour les films de Co les plus minces, la variation de $F_\perp(H)$ a été mesurée uniquement pour les couches les plus épaisses de Co où $t_{Co} > 2.1$ nm, comme le montre la figure 4.4. A noter que pour certains échantillons et en raison du faible signal FMR à mesure que la fréquence augmente, le champ de résonance ne peut pas être mesuré jusqu'à 18 GHz, les données sont par conséquent présentées pour une gamme de fréquence et de champs de résonance plus étroite.

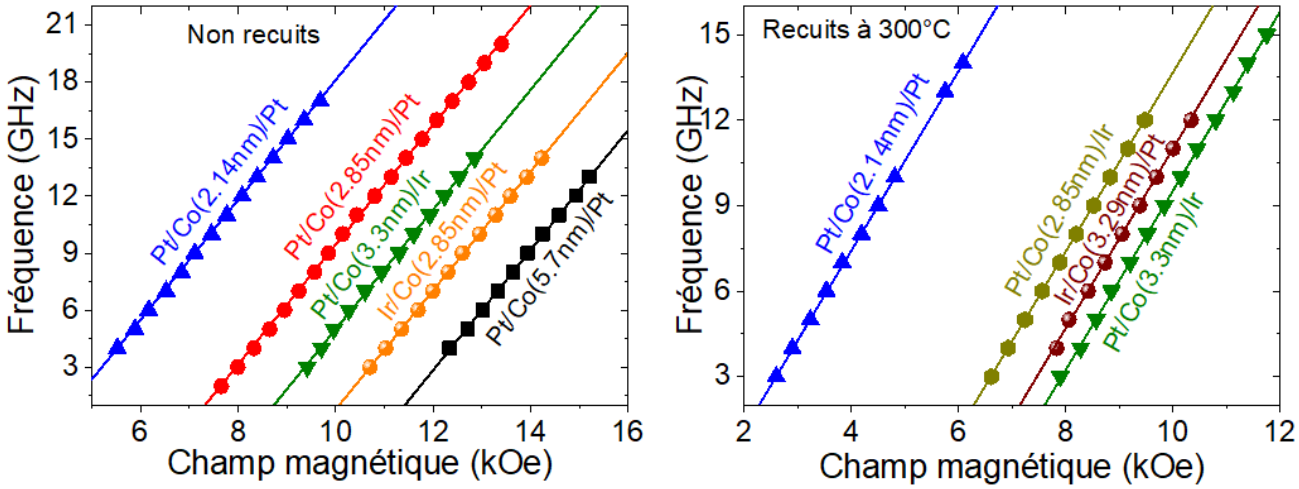

FIGURE 4.4 – Variations de la fréquence du mode de précession uniforme en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan des échantillons pour divers systèmes à base de Co, à droite : non recuits et à gauche : recuits à 300° C. Les symboles font référence aux données expérimentales et les droites sont les ajustements en utilisant l'équation 2.16.

Le rapport $\gamma/2\pi$ peut être directement obtenu à partir de la pente de l'ajustement linéaire des données de la figure 4.4. Nous obtenons $\gamma/2\pi$=(31.2 ±0.5) GHz.T^{-1} et g = 2.23 ± 0.04. A noter que ces résultats ne montrent aucune dépendance significative en fonction de l'épaisseur du Co 2.1 nm $< t_{Co} <$ 5.6 nm et de la température de recuit. Cette valeur de rapport gyromagnétique, qui est légèrement plus élevée que la valeur du Co massif [242], sera utilisée pour tous les systèmes étudiés ici.

4.4.5 Anisotropie magnétique

Comme le montre la figure 4.5, la technique FMR a également été utilisée pour mesurer la dépendance angulaire hors du plan du champ de résonance à la fréquence de 9 GHz pour les échantillons non recuits de Pt/Co/Pt. Cette dépendance angulaire est clairement dominée par un terme d'anisotropie effective uniaxiale. Les données expérimentales sont ensuite ajustées par l'équation 2.15, en considérant le terme du second ordre d'anisotropie caractérisé par la constante $K_{\perp 2}$ (sans cette considération, l'ajustement ne coïncide pas avec les mesures). Ce terme d'anisotropie du second ordre peut apparaître en raison des particularités de la structure atomique à l'interface ou à la suite de contraintes mécaniques non uniformes existant aux interfaces présentant un grand désaccord de paramétres de maille [210]. De même, Dieny et al. [211, 210] ont montré analytiquement que les fluctuations spatiales de l'épaisseur du film peuvent conduire à un terme d'ordre supérieur si la période des fluctuations est inférieure à la longueur d'échange du matériau FM.

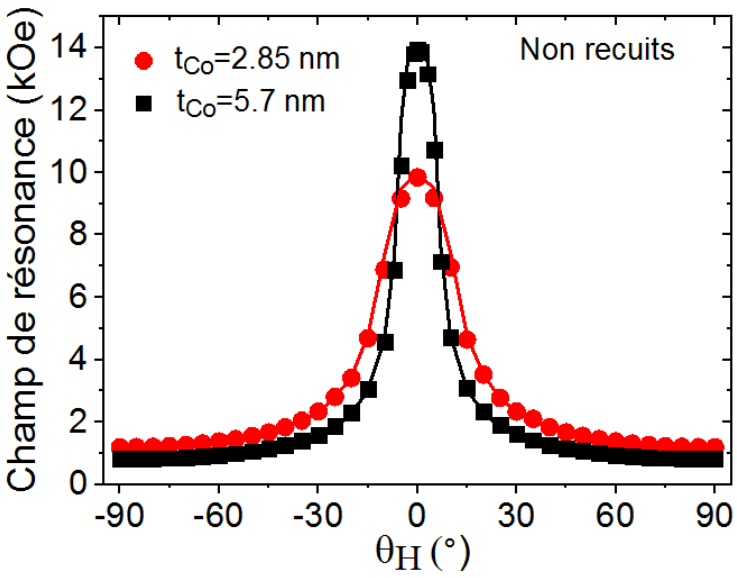

FIGURE 4.5 – Variation du champ de résonance en fonction de l'angle hors plan mesuré à une fréquence de 9 GHz pour les systèmes Pt/Co(t_{Co})/Pt. θ_H désigne l'angle hors du plan définissant la direction du champ appliqué et la normale au plan du film. Les symboles font référence aux données expérimentales et les lignes sont les ajustements utilisant l'équation 2.15.

Une fois de plus, les constantes d'anisotropie uniaxiale et de second ordre ont été déduites en combinant (lorsque cela est possible) les mesures FMR de la fréquence de résonance pour des champs magnétiques appliqués dans le plan (figure 4.6) et perpendiculaires au plan (figure 4.5). En effet, il convient de rappeler que selon l'équation 2.15 et pour un champ magnétique appliqué dans le plan ($\theta_H = 90°$), la contribution de $K_{\perp 2}$ à la fréquence s'annule et les données expérimentales correspondent à $4\pi M_{eff}$, tandis que pour un champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan ($\theta_H = 0°$), la fréquence varie linéairement en fonction du champ magnétique appliqué et l'intersection avec l'axe vertical donne $4\pi M_{eff} - K_{\perp 2}$ (figure 4.4).

Les valeurs obtenues de la constante $K_{\perp 2}$ dans les systèmes Pt/Co/Pt, Ir/Co/Pt et Pt/Co/Ir en fonction de l'épaisseur effective du Co (t_{eff}) sont présentées sur la figure 4.7. En effet, en raison de l'absence du signal FMR pour certains échantillons et systèmes,

$K_{\perp 2}$ a été obtenue pour une étroite gamme d'épaisseurs de Co et uniquement pour les systèmes à base de Pt et Ir. A titre de comparaison et contrairement à $K_{\perp}$ (figure 4.7), le signe négatif de $K_{\perp 2}$ confirme l'axe de facile aimantation dans le plan, qui diminue (augmente), en valeur absolue, lorsque l'épaisseur du Co augmente pour les systèmes Ir/Co/Pt (Ir/Co/Pt). Notons que $K_{\perp}$ est significativement plus élevée que $K_{\perp 2}$ et, par conséquent, la PMA dans ces systèmes est gouvernée par l'anisotropie uniaxiale $K_{\perp}$.

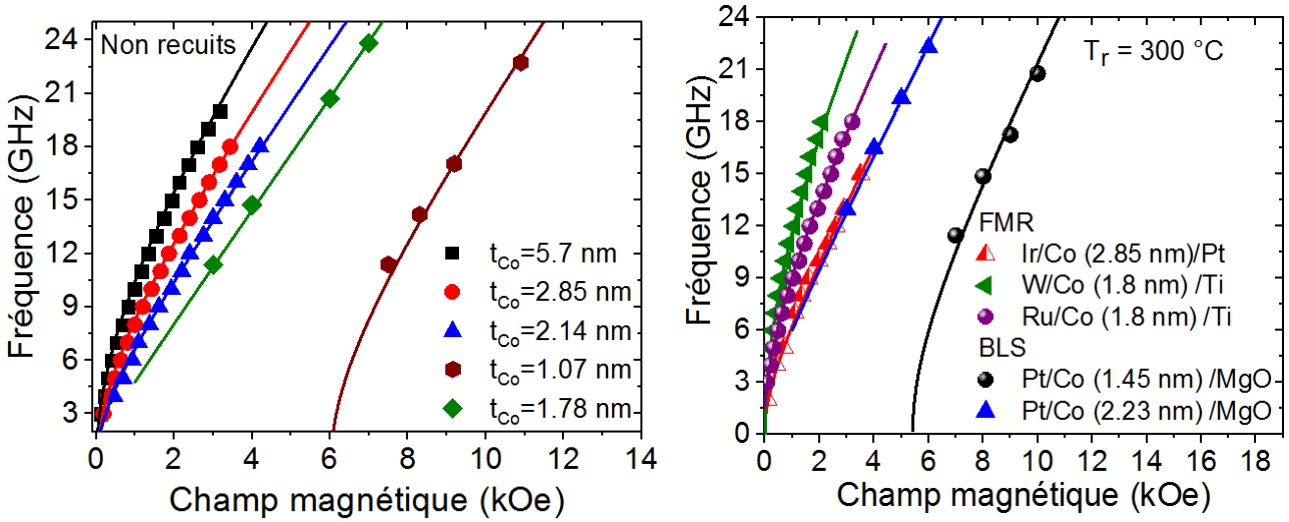

FIGURE 4.6 – A droite : variations de la fréquence en fonction du champ magnétique appliqué dans le plan pour les échantillons non recuits de Pt/Co(t_{Co})/Pt. La BLS a été utilisée pour t_{Co} = 1.07 nm et 1.87 nm et la FMR pour les plus grandes épaisseurs. A gauche : variations de la fréquence en fonction du champ magnétique appliqué dans le plan pour différents échantillons non recuits. Les symboles font référence aux données expérimentales et les lignes sont les ajustements utilisant l'équation 2.31 ou 2.17.

En raison du faible signal FMR pour les films de Co plus minces, il n'a pas été possible de déterminer les valeurs de $K_{\perp 2}$ pour de tels films et par conséquent, nous nous concentrerons uniquement sur la dépendance en épaisseur de la constante d'anisotropie uniaxiale perpendiculaire de premier ordre $K_{\perp}$ qui peut être déterminée par la mesure de M_{eff}. Cette dernière est généralement déduite de la variation de fréquence en fonction du champ magnétique appliqué, en combinant les techniques FMR et BLS.

Cependant, comme nous l'avons déjà mentionné et pour économiser la durée des mesures (un grand nombre d'échantillons est utilisé), nous avons limité l'étude de M_{eff} par BLS aux films de Co les plus minces ($t_{Co} < 2.1$ nm) et nous avons utilisé la technique FMR pour des échantillons plus épais, car la variation de fréquence en fonction du champ magnétique appliqué est facilement et rapidement obtenue par cette technique (voir section 2.4.4).

Nous précisons également qu'aucune différence significative n'a été observée entre les valeurs de M_{eff} déduites de la BLS et de la FMR. Par conséquent, des mesures dynamiques (BLS et FMR) sous un champ magnétique appliqué dans le plan, où la contribution de $K_{\perp 2}$ à la fréquence f_{SW} s'annule, ont été effectuées. Les mesures BLS ont été effectuées à un vecteur d'onde faible ($k_{sw} = 4.1\ \mu m^{-1}$) pour éviter le décalage de fréquence induit par l'iDMI. L'aimantation effective est ainsi obtenue à partir des ajustements des données expérimentales de la BLS en utilisant l'équation 2.31 et des mesures FMR de la dépendance en champ de la fréquence de précession du mode uniforme, par l'équation 2.17, en

considérant une faible anisotropie uniaxiale dans le plan et en supposant que le champ magnétique appliqué est suffisant pour saturer l'aimantation dans le plan ($\varphi_H = \varphi_M$).

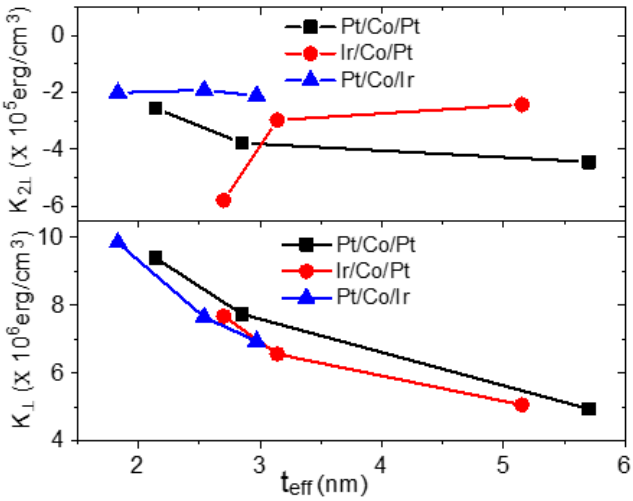

FIGURE 4.7 – Constantes d'anisotropie perpendiculaire du second ordre ($K_{\perp 2}$) et uniaxiale ($K_{\perp}$) en fonction de l'épaisseur effective des films de Co pour les systèmes Pt/Co/Pt, Pt/Co/Ir et Ir/Co/Pt. Les lignes sont utilisées comme guides pour les yeux.

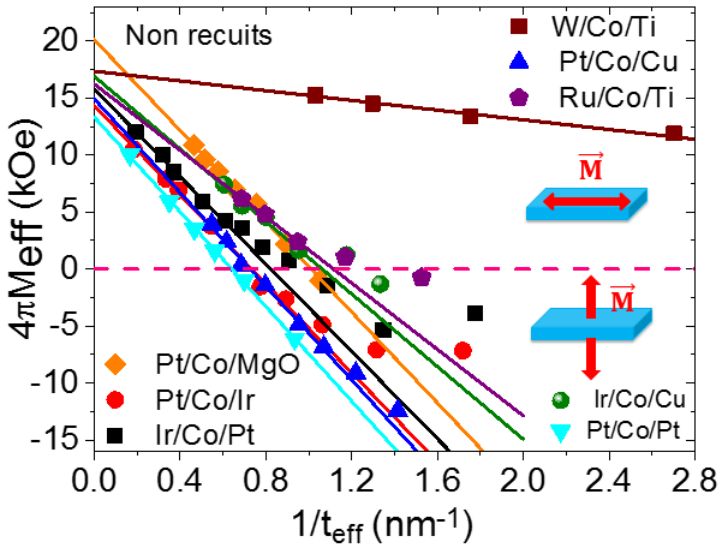

FIGURE 4.8 – Aimantation effective ($4\pi M_{eff}$) en fonction de l'inverse de l'épaisseur effective des films de Co pour les systèmes non recuits. Les symboles se réfèrent aux données expérimentales tandis que les lignes sont les ajustements linéaires. La ligne pointillée horizontale à zéro est utilisée pour séparer les régions d'épaisseur où les échantillons sont spontanément aimantés perpendiculairement au plan ($4\pi M_{eff}$ négative) ou dans le plan ($4\pi M_{eff}$ positive).

Les figures 4.8 et 4.9 montrent les valeurs de M_{eff} déduites des mesures FMR et BLS pour les échantillons non recuits et recuits, respectivement. Les valeurs positives et négatives de M_{eff} font référence aux systèmes spontanément aimantés dans le plan (in-plane magnetization, IPM) ou hors du plan (out-of-plane magnetization, OPM), respectivement. L'épaisseur critique de Co séparant les régions IPM et OPM dépend du

système : par exemple, l'épaisseur maximale pour laquelle l'aimantation est spontanément hors du plan (axe facile perpendiculaire) est $t_{Co} = 1.5$ nm et $t_{Co} = 1.3$ nm pour les systèmes Pt/Co/Pt et Pt/Co/Cu non recuits, respectivement. M_{eff} diminue linéairement avec $1/t_{eff}$, confirmant l'existence d'une anisotropie perpendiculaire d'interface.

Néanmoins, une déviation prononcée du comportement linéaire pour les couches minces de Co est observée pour les empilements incluant par exemple, Ir/Co/Pt, Pt/Co/Ir et Ru/Co/Ti, suggérant l'existence de deux régimes. La déviation du comportement linéaire pour les films de Co les plus minces est habituelle pour les films minces magnétiques. Elle pourrait provenir de la dégradation de l'interface pour les films les plus minces de Co, de la croissance cohérente et incohérente du Co induite par des contraintes dues aux désaccord des paramètres de maille entre le Co et les sous-couches ou les couches de couvertures [22]. Elle pourrait également être attribuée à la diminution de la température de Curie [243] ou à l'épaisseur de la couche magnétique inférieure à la rugosité de l'interface [244]. En raison de ces différentes origines pour le régime des films de Co les plus minces, nous ne considérerons que le régime des couches de Co les plus épaisses, où une dépendance linéaire est clairement observable. L'ajustement par l'équation 3.2 de la dépendance de $M_{eff}(1/t_{eff})$ pour les plus grandes épaisseurs de Co a été utilisé pour obtenir les constantes d'anisotropie perpendiculaire de surface K_s et de volumique K_v. Ces constantes sont représentées dans le tableau 4.2 pour les différents empilements non recuits et recuits.

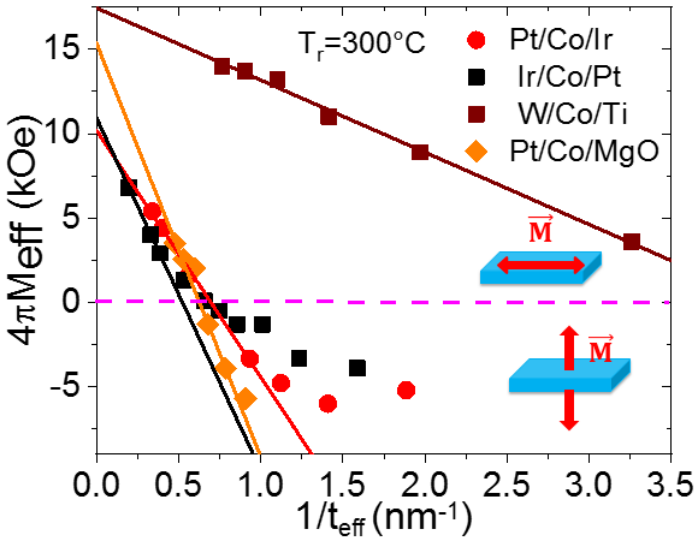

FIGURE 4.9 – Aimantation effective ($4\pi M_{eff}$) en fonction de l'inverse de l'épaisseur effective des films de Co pour les systèmes recuits. Les symboles se réfèrent aux données expérimentales tandis que les lignes sont les ajustements linéaires. La ligne pointillée horizontale à zéro est utilisée pour les régions d'épaisseur où les échantillons sont spontanément aimantés perpendiculairement au plan ($4\pi M_{eff}$ négatif) ou dans le plan ($4\pi M_{eff}$ positif).

La constante K_s est positive pour tous les systèmes. Pour les échantillons non recuits, K_s est la plus grande pour les structures de Pt/Co/Pt, Ir/Co/Pt et Pt/Co/Ir et en bon accord avec les valeurs rapportées par Lau et al. [236]. Notons que les valeurs de K_s listées dans le tableau 4.2 ne permettent pas de déterminer la contribution de chaque interface. Cependant, nous pouvons discuter qualitativement ces valeurs en comparant les systèmes basés sur le Pt et/ou l'Ir. Ainsi, une comparaison entre ces systèmes permet de déduire que

les contributions des interfaces inférieures Ir/Co et Pt/Co à K_s sont les plus importantes et que celles de Co/Cu et Co/MgO sont significativement plus faibles. Pour cette dernière interface, la microscopie électronique en transmission à haute résolution a révélé qu'elle est assez floue et que sa contribution dans la PMA est négligeable [239].

En ce qui concerne la structure W/Co/Ti, les interfaces W/Co et Co/Ti produisent de faibles anisotropies de surface. Enfin, en considérant l'empilement à base de Ru/Co/Ti, nous déduisons que l'interface Ru/Co induit de grandes anisotropies de surface, de manière similaire aux interfaces Pt/Co et Ir/Co.

Système	K_s (erg.cm^{-2})		K_v ($\times 10^7$erg.cm^{-3})		D_s ($\times 10^{-7}$erg.cm^{-1})	
	Non recuit	300°	Non recuit	300°	Non recuit	300°
Pt/Co/Ir	1.38 ± 0.1	1 ± 0.08	0.24 ± 0.0024	0.47 ± 0.0054	-0.76 ± 0.07	-0.53 ± 0.04
Ir/Co/Pt	1.43 ± 0.14	1.42 ± 0.18	0.22 ± 0.022	0.42 ± 0.06	1.05 ± 0.08	0.77 ± 0.05
Pt/Co/Cu	1.25 ± 0.14		0.21 ± 0.025		-1.05 ± 0.08	
Pt/Co/MgO	1.1 ± 0.1	1.67 ± 0.2	-0.35 ± 0.05	0.12 ± 0.017	-0.95 ± 0.06	-1.17 ± 0.08
W/Co/Ti	0.12 ± 0.01	0.24 ± 0.02	-0.145 ± 0.018	-0.19 ± 0.02		
Ir/Co/Cu	1.03 ± 0.15		-0.037 ± 0.06			
Ru/Co/Ti	0.87 ± 0.1		-0.07 ± 0.01			
Pt/Co/Pt	1.42 ± 0.08		0.266 ± 0.025			

TABLE 4.2 – Paramètres obtenus à partir des meilleurs ajustements des courbes de $4\pi M_{eff}(1/t_{eff})$ et de $D_{eff}(1/t_{eff})$, en utilisant différentes couches de couvertures et sous-couches en contact avec le film de Co.

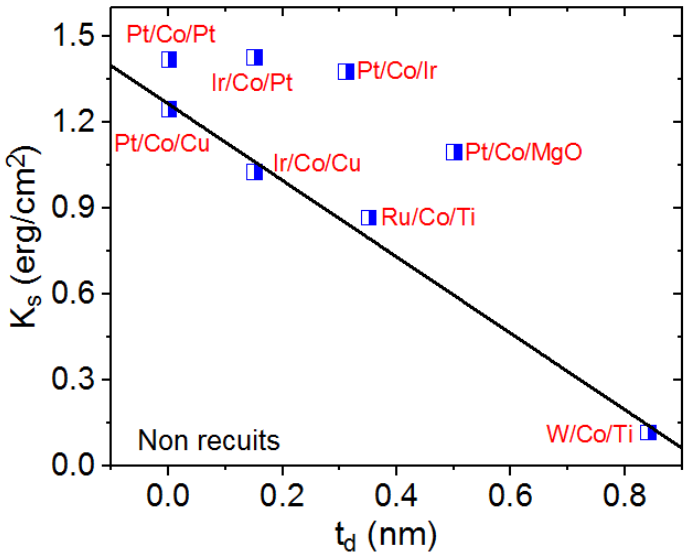

FIGURE 4.10 – Variations de la constante d'anisotropie de surface K_s en fonction de l'épaisseur de la couche magnétique morte t_d pour les échantillons non recuits. Les symboles font référence aux données expérimentales pour chaque empilement tandis que la ligne représente l'ajustement linéaire pour les systèmes recouverts de Cu ou de Ti.

Pour clarifier encore plus quelle interface est la plus impliquée dans la couche morte et K_s, nous avons tracé K_s de tous les systèmes non recuits en fonction de t_d comme indiqué dans la figure 4.10. Nous remarquons que pour les systèmes recouverts de Ti ou Cu, la variation de K_s montre une dépendance linéaire décroissante en fonction de t_d : K_s diminue

avec l'augmentation de t_d. Cette corrélation suggère que pour ces systèmes, la contribution significative à la fois à t_d et à K_s est induite principalement par l'interface inférieure avec le Co et que celle de l'interface supérieure est faible. Ce qui est cohérent avec l'absence d'une couche magnétique morte à l'interface de Co/Cu due à l'immiscibilité du Cu et du Co. Pour le reste des systèmes incluant des matériaux HM aux deux interfaces avec Co, aucune corrélation entre t_d et K_s n'est observée : alors que K_s semble être à peu près constant, t_d change de manière significative. Ceci suggère que les interfaces supérieures et inférieures contribuent différemment à t_d et K_s. Cela confirme à nouveau que le Pt n'induit pas de couche morte alors que la couche de couverture d'Ir contribue davantage à t_d. En effet, contrairement aux atomes légers du Cu et du Ti, les atomes lourds tels que l'Ir et le Pt devraient diffuser davantage dans le Co.

Pour le système Pt/Co/MgO, alors que la couche morte est induite par l'interface avec MgO, K_s résulte principalement de l'interface Pt/Co et donc, comme le montre la figure 4.10, ce système ne peut pas être comparé aux deux autres pour étudier la corrélation entre t_d et K_s. Une telle constatation a également été mise en évidence par Shen et al. [245] dans des systèmes MgO/CoFeB/Ta avec une épaisseur variable de Ta : une relation inverse entre K_s et t_d a été observée et attribuée à la diffusion du Ta.

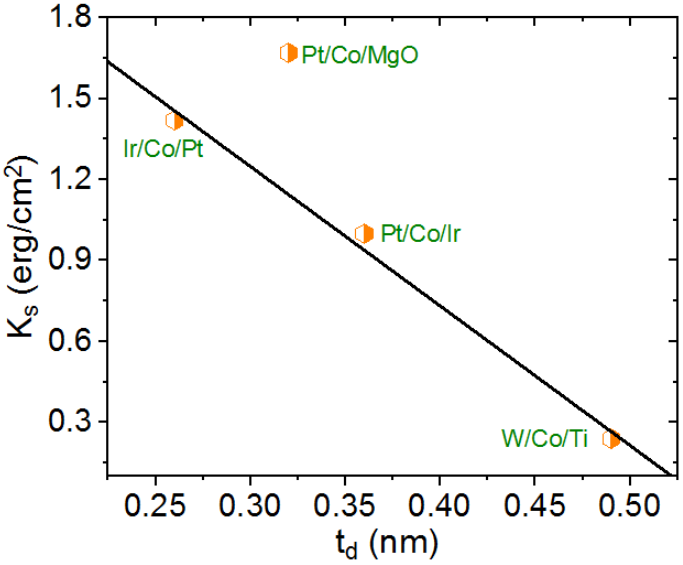

FIGURE 4.11 – Variations de la constante d'anisotropie de surface K_s en fonction de l'épaisseur de la couche magnétique morte t_d pour les systèmes recuits. Les symboles font référence aux données expérimentales pour chaque empilement.

Après recuit, l'anisotropie de surface pour le système Pt/Co/MgO augmente ainsi que son aimantation à saturation. Comme nous l'avons suggéré ci-dessus, ceci est probablement dû à la diffusion des atomes d'oxygènes interpénétrés dans la couche de Co vers l'interface Co/MgO pendant le recuit pour former une interface plus nette [239]. Le recuit diminue K_s dans les échantillons de Pt/Co/Ir, suggérant une dégradation des interfaces Pt/Co et Co/Ir. Cependant, puisque seule l'interface inférieure contribue essentiellement à K_s, il est alors plus probable que la dégradation se produit à l'interface Pt/Co. De plus, si l'interdiffusion du Co et du Pt augmente avec le recuit beaucoup plus que celle du Co et d'Ir, K_s pour le système Ir/Co/Pt devrait être moins affectée, comme le montre le tableau 4.2. Cette hypothèse est confirmée par la figure 4.11 qui montre une dépendance linéaire de K_s en fonction t_d, pour les systèmes recuits d'Ir/Co/Pt, Pt/Co/Ir , W/Co/Ti

et Pt/Co/MgO. Une fois de plus, l'empilement de Pt/Co/MgO ne peut être comparé aux autres systèmes suggérant que les mécanismes contribuant à K_s sont différents, à savoir que l'interface de Co/MgO contribue largement à K_s, grâce à l'amélioration de cette interface après recuit. Enfin, pour l'empilement de W/Co/Ti, le recuit réduit la couche morte et augmente l'anisotropie de surface. Nous pensons qu'après recuit l'interface W/Co devient significativement plus définie que celle des échantillons non recuits et par conséquent, K_s augmente. La PMA observée dans ces différents systèmes étudiés ici est très probablement due à l'hybridation électronique du Co avec les différents matériaux HM utilisés dans cette étude.

Considérons maintenant l'anisotropie de volume K_v. Premièrement, nous remarquons que les systèmes Pt/Co/Pt, Ir/Co/Pt et Pt/Co/Ir ont une valeur de K_v similaire (environ 2.2×10^6 erg.cm^{-3}) qui est en bon accord avec les valeurs rapportées par Lau et al. [236] et comparables à l'anisotropie magnétocristalline du Co hexagonal ($K_{mac} = 5.1 \times 10^6$ erg.cm^{-3}). Par conséquent, l'anisotropie de volume est principalement due à la contribution magnétocristalline, c'est-à-dire qu'elle est liée à l'arrangement des atomes de Co. En effet, le cobalt massif est hexagonal et présente une grande anisotropie uniaxiale favorisant un alignement de l'aimantation le long de l'axe c. En ce qui concerne K_v, nous pouvons déduire que l'arrangement des atomes de Co dans Pt/Co/Pt est la plus proche de la structure massif avec l'axe c perpendiculaire au film. La valeur de K_v plus faible que la valeur du Co massif pourrait être attribuée à des défauts du film, comme des déformations, des désordres, ou la présence de certaines régions avec une structure fcc, puisque pour la structure fcc massive, la grande symétrie résulte en valeurs de K_v beaucoup plus faibles que pour une structure hcp. Nous remarquons également des valeurs de K_v beaucoup plus faibles pour les empilements Ru/Co/Ti, Ir/Co/Cu et Pt/Co/Cu et le changement de signe pour certains systèmes. Les valeurs négatives et élevées (en valeur absolue) de K_v pour le Pt/Co/MgO et W/Co/Ti, ayant les couches magnétiques mortes les plus épaisses, sont très probablement dues à l'interdiffusion dans le volume du film de Co. La réduction et éventuellement le changement de signe indiquent que l'arrangement des atomes de Co n'est plus celui de la forme massive. Le recuit améliore K_v, ce qui suggère l'amélioration de l'arrangement des atomes du Co. De plus, le changement du signe de K_v (il devient positif) pour Pt/Co/MgO après recuit, est probablement dû à la diffusion des atomes d'oxygène interpénétrés dans la couche de Co vers l'interface de Co/MgO.

4.4.6 Interaction iDMI

Nous avons également utilisé la BLS, dans la configuration de DE, pour étudier l'iDMI dans tous les échantillons. La figure 4.12 montre des spectres typiques enregistrés à $k_{sw} = 20.45$ μ.m^{-1}, où la différence en fréquence (ΔF) entre les raies Stokes et anti-Stokes définit l'amplitude de l'iDMI. Ainsi, chaque raie est ajustée par une lorentzienne, ce qui permet de relever les fréquences f_{Stokes} et $f_{anti-Stokes}$. Pour plus de clarté et pour l'observation directe de ΔF entre les raies Stokes et anti-Stokes, les ajustements par des lorentziennes correspondant à un champ magnétique négatif sont également représentés. A noter que pour la fréquence des raies Stokes et anti-Stokes, nous observons une dépendance de leur largeur et de leur intensité en fonction du recuit et de l'échantillon. On peut ainsi observer par exemple une amélioration significative du rapport signal sur bruit pour les systèmes recuits de Pt/Co/MgO et Pt/Co/Ir. De plus, une variation significative de la moyenne de la largeur de raie (Stokes et anti-Stokes) à mi-hauteur δF est observée. Par exemple, pour le film de Co de 1.25 nm d'épaisseur, dans le système de Pt/Co/MgO, δF diminue de 8

GHz pour le film non recuit à 4.9 GHz après recuit. Cette observation est en accord avec les tendances observées ci-dessus confirmant la diffusion des atomes d'oxygène interpénétrés dans la couche de Co vers l'interface Co/MgO pendant le recuit pour former une interface mieux définie. Cependant, δF augmente de 3.7 GHz pour l'échantillon Ir/Co (1.07 nm)/Pt non recuit à 7 GHz pour l'échantillon recuit, ce qui est en bon accord avec l'augmentation de l'épaisseur de la couche morte pour le système Ir/Co/Pt (voir tableau 4.1). On peut également noter la plus grande largeur de raie pour l'empilement Pt/Co/Cu par rapport à Ir/Co/Cu en raison de la contribution plus élevée au pompage de spin de l'interface Pt/Co par rapport à l'interface Ir/Co. Nous concluons donc que le recuit induit une amélioration de la qualité pour les échantillons de Pt/Co/MgO et probablement une dégradation de la qualité du système Ir/Co/Pt, ce qui est en bon accord avec les observations VSM.

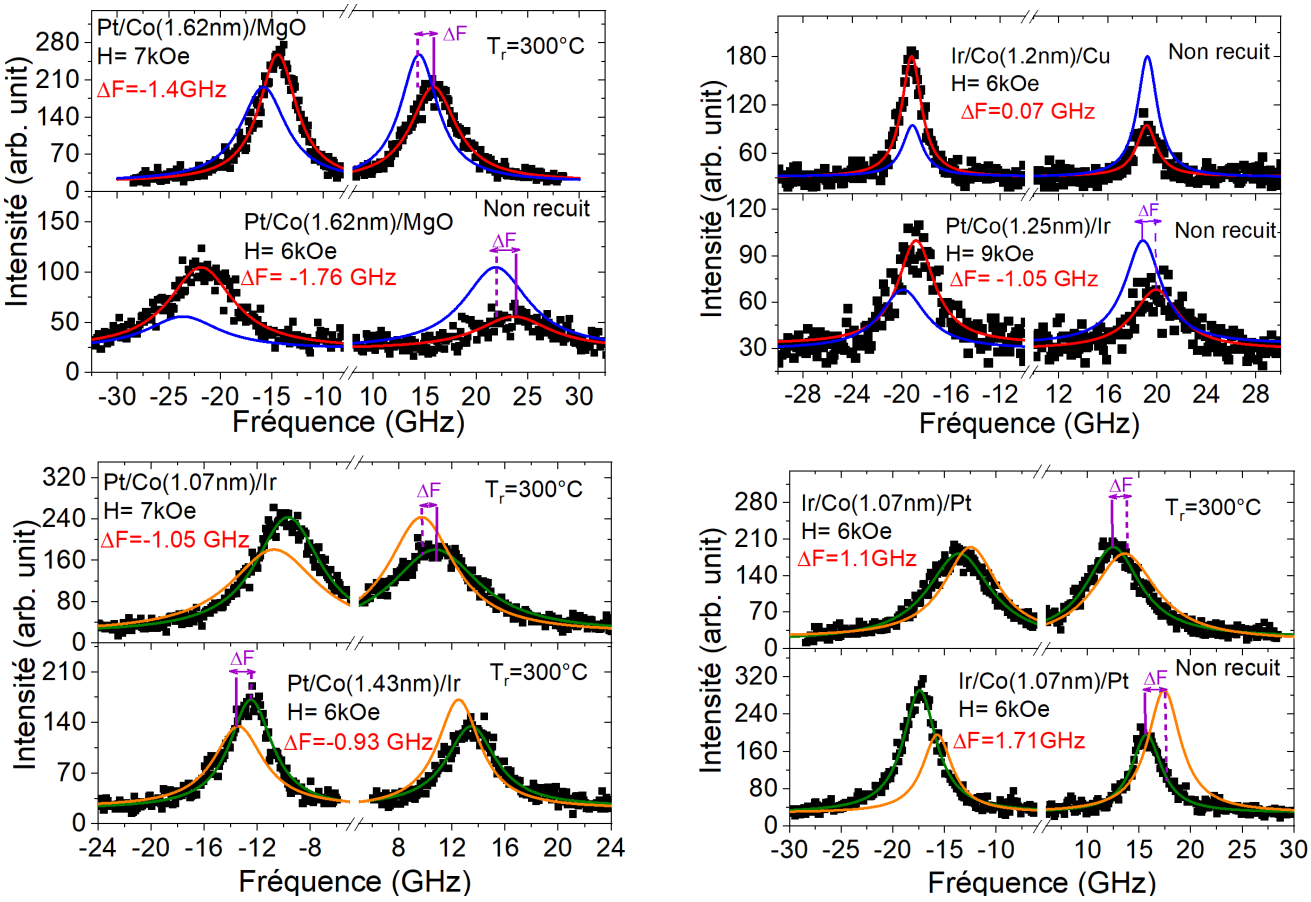

FIGURE 4.12 – Spectres BLS mesurés pour différents systèmes à base de Co, non recuits et recuits à 300 °C, avec diverses sous-couches et couches de couverture, mesurés à différentes valeurs de champ magnétique appliqué dans le plan et à un vecteur d'onde caractéristique $k_{sw} = 20.45\ \mu.m^{-1}$. Les symboles font référence aux données expérimentales et les lignes sont des ajustements par des lorentziennes. Les ajustements correspondant à des champs appliqués négatifs et positifs sont présentés pour la comparaison directe des fréquences des raies Stokes et anti-Stokes.

Les spectres BLS ont également révélé que les fréquences des raies Stokes et anti-Stokes sont différentes (non-réciprocité des ondes de spin), en particulier lorsque différents matériaux sont utilisés comme couche de couverture ou sous-couche. Des anisotropies de surface différentes aux interfaces supérieure et inférieure du Co peuvent entraîner un

décalage de fréquence non-réciproque uniquement pour les films de Co plus épais (au-delà de 10 nm) [246]. Par conséquent, ΔF observée pour les films les plus minces de Co est très probablement due à l'iDMI. Elle est négative (positive) lorsque le Pt est utilisé comme sous-couche (couche de couverture) (voir figure 4.12) en accord avec le mécanisme d'échange indirect à trois sites [88]. Cette inversion de signe par rapport à l'ordre de l'empilement confirme l'origine interfaciale de l'iDMI et sa nature asymétrique. Les variations de $\Delta F(k_{sw})$ pour les systèmes à base de Co ont été mesurées pour tous les échantillons afin de déterminer la constante effective de l'iDMI (D_{eff}), par ajustement linéaire à l'aide de l'équation 2.30.

La figure 4.13 montre que les valeurs obtenues de D_{eff} varient linéairement en fonction de $1/t_{eff}$ comme prévu théoriquement. Néanmoins, ici encore, une déviation du comportement linéaire est observée lorsque l'épaisseur effective de Co s'approche de 1 nm : deux régimes avec des pentes différentes peuvent être distingués comme cela a été révélé pour M_{eff}. On remarque que cette déviation de la linéarité est moins significative pour le système recuits à base de Pt/Co/Ir, contrairement aux échantillons non recuits où la dépendance en épaisseur de D_{eff} a montré une plus grande déviation [222]. Ceci confirme une fois de plus l'amélioration de la qualité des échantillons de Pt/Co/Ir et la dégradation de ceux à base de Ir/Co/Pt. Comme nous l'avons déjà mentionné, pour la dépendance de D_{eff} en fonction de l'épaisseur du Co, nous nous concentrerons sur les films de Co les plus épais pour déterminer la constante iDMI de surface (D_s) à partir de l'ajustement linéaire de D_{eff} ($1/t_{eff}$), dont les valeurs de D_s obtenues sont résumées dans le tableau 4.2.

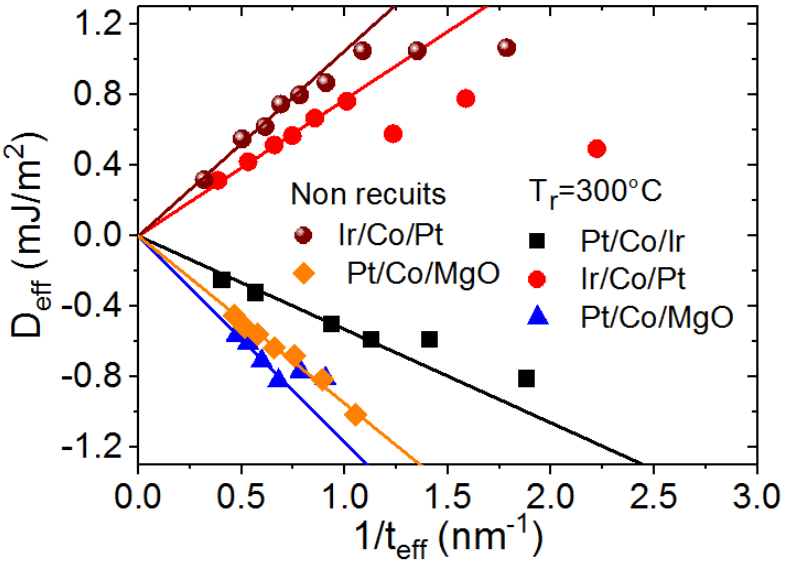

FIGURE 4.13 – Dépendance de D_{eff} en fonction de $1/t_{eff}$ pour différents systèmes non recuits et recuits à 300°C à base de Co. Les droites font référence à l'ajustement linéaire.

Tous d'abord, nous commencerons par discuter des systèmes non recuits . Les plus grandes valeurs de l'iDMI sont obtenues pour les échantillons à base de Pt/Co/Cu et Ir/Co/Pt ($|D_s|= 1.05 \times 10^{-7}$ erg.cm^{-1}). D_s diminue (en valeur absolue) jusqu'à la valeur 0.76×10^{-7} erg.cm^{-1} pour le système Pt/Co/Ir. L'absence d'iDMI pour le Pt/Co/Pt confirme la symétrie de ce système et suggère que les interfaces Pt/Co et Co/Pt ont des contributions absolues égales, en accord avec Ajejas et al. [119]. Malgré la présence de W et Ir qui sont des métaux lourds, l'iDMI disparaît pour les systèmes Ir/Co/Cu et W/Co/Ti probablement en raison de la qualité des interfaces W/Co et Ir/Co. Le Cu n'est pas sus-

ceptible de produire d'iDMI et en comparant les valeurs de D_s pour Pt/Co/Cu et pour Ir/Co/Pt, nous déduisons que l'interface Ir/Co ne contribue pas à l'iDMI. Considérons maintenant que les deux interfaces de Pt/Co/Y et Ir/Co/Y (où Y =Pt, Cu, Ir et MgO) sont suffisamment éloignées l'une de l'autre pour qu'elles apportent des contributions différentes à l'iDMI [119]. Ainsi, l'iDMI totale peut s'exprimer par $D_s^{Pt/Co/Y} = D_s^{Pt/Co} + D_s^{Co/Y}$ ou $D_s^{Ir/Co/Y} = D_s^{Ir/Co} + D_s^{Co/Y}$ pour les systèmes Pt/Co/Y et Ir/Co/Y, respectivement. Puisque pour tous les échantillons de système Pt/Co/Y (respectivement Ir/Co/Y), le processus de croissance était identique jusqu'à la couche de Co, nous pouvons supposer que la constante iDMI à l'interface Pt/Co (respectivement Ir/Co) ne change pas d'un système à l'autre. Par conséquent, en considérant que $D_s^{Co/Cu} = 0$ et que l'intensité de l'iDMI est nulle pour le système Pt/Co/Pt, nous déduisons que $D_s^{Pt/Co} = -1.05 \times 10^{-7}$ erg.cm^{-1}, $D_s^{Co/Pt} = 1.05 \times 10^{-7}$ erg.cm^{-1} et $D_s^{Ir/Co} = 0$. Ceci est en accord avec la valeur obtenue pour le système Ir/Co/Pt ($D_s = 1,05 \times 10^{-7}$ erg.cm^{-1}) et avec la disparition de l'iDMI dans les échantillons à base de Ir/Co/Cu. Il convient de mentionner que la valeur obtenue pour $D_s^{Pt/Co}$ est en bon accord avec celle rapportée par Ajejas et al. [119]. Cependant, l'absence d'iDMI à l'interface de Ir/Co n'est pas en accord avec l'observation expérimentale rapportée par Kim et al. [164]. Il est alors utile de mentionner que l'iDMI n'est pas seulement déterminée par la nature intrinsèque de l'interface mais aussi par sa structure atomique réelle. L'iDMI est donc sensible au désordre, aux défauts et à l'arrangement des atomes aux interfaces qui varient de manière significative en fonction des paramètres d'élaboration de l'échantillon, comme la technique de dépôt, la sous-couche et la couche de couverture.

Enfin, pour les échantillons à base de Pt/Co/Ir et Pt/Co/MgO, nous observons une iDMI plus faible comparée à celle du système Pt/Co/Cu. Dans le cas du MgO, nous pouvons supposer que les atomes d'oxygène introduits à l'intérieur de la couche de Co pendant le dépôt dégradent l'iDMI. L'iDMI plus faible du Pt/Co/Ir pourrait être attribuée à une contribution de l'interface supérieure de Co/Ir, estimée à $D_s^{Co/Ir} = 0.29 \times 10^{-7}$ erg.cm^{-1} ($D_s^{Co/Ir} = D_s^{Pt/Co/Ir} - D_s^{Pt/Co}$). Le même signe de l'iDMI pour les interfaces de Co/Pt et Co/Ir est en bon accord avec l'observation rapportée par Kim et al. [164]. Ainsi, pour vérifier l'hypothèse selon laquelle, dans nos échantillons, l'interface Ir/Co n'induit pas d'iDMI contrairement à l'interface de Co/Ir, nous avons déposé l'échantillon Ta (2.2 nm)/Ir (1.35 nm)/Co (1.4 nm)/Ir (1.35 nm)/Al (2 nm). La dépendance de $\Delta F(k_{sw})$, présentée dans la figure 4.14, révèle un signe positif, suggérant que l'iDMI est principalement induite par l'interface supérieure de Co/Ir, ce qui confirme à nouveau que les interfaces Co/Ir et Co/Pt ont un signe similaire et que l'iDMI résulte de l'interface supérieure de Co/Ir. A partir de l'ajustement linéaire des données expérimentales de la figure 4.14, nous avons donc obtenu $D_{eff} = 0.23$ erg.cm^{-2} ce qui correspond à $D_s^{Co/Ir}$ =0.32 $\times 10^{-7}$ erg.cm^{-1}. Notons que cette valeur est en accord avec celle calculée ci-dessus.

La différente contribution des interfaces Ir/Co et Co/Ir à l'iDMI dans nos échantillons peut être dû à une morphologie différente des interfaces puisque l'iDMI est sensible aux arrangements atomiques à l'interface. Nous rappelons également que la couche morte (interdiffusion) est plus grande lorsque l'Ir est déposé sur du Co. De plus, l'iDMI dépend du degré d'hybridation entre les orbitales 5d du matériau HM et 3d du métal ferromagnétique [247]. En effet, l'interdiffusion peut favoriser l'alliage avec le matériau HM augmentant ainsi le remplissage de la bande 5d de l'Ir (et de l'iDMI à l'interface Co/Ir), ce qui peut expliquer la différence d'iDMI entre les interfaces Ir/Co et Co/Ir.

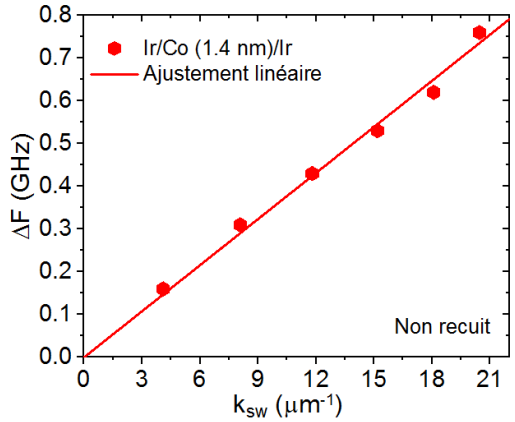

FIGURE 4.14 – Dépendance de $\Delta F(k_{sw})$ du système Ta(2.2nm)/Ir(1.35 nm)/Co(1.4nm)/Ir (1.35 nm)/Al(2 nm) déposé sur un substrat de Si. Les symboles représentent les données expérimentales et la droite correspond à l'ajustement linéaire.

Discutons maintenant de l'effet du recuit. Dans le cas du système Pt/Co/MgO, l'augmentation de l'iDMI a la même origine que les augmentations observées du M_s et K_s : les atomes d'oxygène quittent la couche de Co pendant le recuit. En effet, la diffusion des atomes d'oxygène interpénétrés de la couche de Co recuite vers l'interface Co/MgO améliore sa qualité [239] et pousse l'oxygène vers l'interface avec le Co. Par conséquent, la formation de l'interface Co/O est la source de la contribution iDMI, qui est responsable de l'augmentation de l'iDMI pour le Pt/Co/MgO recuit. Cette contribution des oxydes métalliques à l'iDMI a été démontrée expérimentalement par Chaves et al. [248] qui ont attribué l'origine microscopique de cet effet à la présence d'un champ de Rashba à l'interface Co/O qui contrôle également la PMA. De plus, la contribution d'une interface ferromagnétique/oxyde a également été démontrée par Nembach et al. [109] qui ont rapporté que l'interface CoFe/oxyde renforce l'iDMI totale dans le système Pt/CoFe/oxyde. Cette iDMI est attribuée à une augmentation de l'hybridation à l'interface ainsi qu'au transfert de charge qui augmente l'asymétrie de la structure électronique à l'interface. Le signe négatif de l'iDMI induite par l'interface d'oxyde dans Pt/CoFe/oxyde est en bon accord avec notre observation pour les échantillons à base de Pt/Co/MgO. Enfin, la diminution de D_s avec le recuit pour les systèmes à base de métaux (Pt/Co/Ir et Ir/Co/Pt) est en bon accord avec les résultats rapportés précédemment [102].

PMA et iDMI sont liées à l'interaction spin-orbite à l'interface et sont sensibles à l'ordre des couches, aux défauts, à la rugosité, aux degrés d'oxydation et à l'arrangement des atomes aux interfaces. Les effets de certains paramètres sur l'iDMI ont été étudiés théoriquement par Zimmermann et al. [249]. Ils ont notamment introduit dans un premier temps un mélange chimique d'atomes à l'interface Co/Pt, puis dans un second temps, ils ont modifié l'interface Co/Pt en la saupoudrant de divers éléments chimiques comme le Ru, Pd, Cu...Une forte diminution de l'iDMI est observée lorsque la concentration des ces poudres augmente. Notons que les deux paramètres étudiées par Zimmermann et al. [249] dépendent également de la température de recuit. Cependant, étant donné que la seule information disponible sur l'effet du recuit dans nos échantillons concerne l'interdiffusion et le mélange aux interfaces, il semble que la diffusion entre les couches à travers les interfaces et la dégradation de l'interface résultant du recuit soient probablement la cause de la dégradation mesurée de la PMA, de M_s et de l'intensité de l'iDMI.

4.5 Interaction iDMI, pompage de spin et anisotropie magnétique perpendiculaire dans les multicouches à base de Pt/Co/W

Dans cette partie, nous étudions les trois effets SOC d'interface dans les multicouches à base $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(t_{Co})/W(1.5\text{ nm})]_N$ en fonction du nombre de répétitions N. Une attention particulière est donnée à l'iDMI, peu étudiée dans les empilements en multicouches.

4.5.1 Préparation des échantillons

Ces échantillons ont été élaborés via la collaboration du laboratoire LSPM avec le Prof. Ioannis Panagiotopoulos et son équipe du département de sciences des matériaux et d'ingénierie, Université de Ioannina en Grèce,

Les films multicouches de $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(t_{Co})/W(1.5\text{ nm})]_N$ ont été déposées, à température ambiante sur des substrats de Si(100) thermiquement oxydés, par pulvérisation magnétron en utilisant un système de dépôt MANTIS multisource. Le nombre de répétitions de la multicouche a été varié jusqu'à 7 (N = 1, 2, 3, 5 et 7). Les cibles de Co, W (7.62 cm de diamètre) et Pt (5.08 cm de diamètre) étaient en géométrie confocale, c'est-à-dire qu'elles pointaient à un angle de 45° par rapport au plan (horizontal) du substrat, qui est en rotation pendant le dépôt. La distance entre la cible et le substrat est de 15 cm. Avant le dépôt, la pression était à 5×10^{-7} Torr et la pression du gaz d'argon (Ar) pendant le dépôt était de 3.5 mTorr. Le film de Co (avec 1 nm $\leq t_{Co} \leq$6 nm) a été déposé à une vitesse de 0.48 Å/s en appliquant une puissance continue de 60 W, le tungstène à 0.6 Å/s sous 100 W de courant continu et le Pt a été élaboré à une vitesse de 0.53 Å /s en utilisant une puissance RF de 120 W.

Les propriétés magnétiques statiques des échantillons ont été sondées à l'aide de la VSM. La structure des couches a été étudiée par des mesures de reflectivité de rayons X (XRR). De plus, la résonance ferromagnétique a été utilisée pour déterminer le rapport gyromagnétique, la PMA et l'amortissement de Gilbert, pour les échantillons de $t_{Co} > 2$ nm tandis que la BLS a été employée pour étudier l'iDMI, la PMA et l'amortissement magnétique dans les échantillons où $t_{Co} \leq 2$ nm.

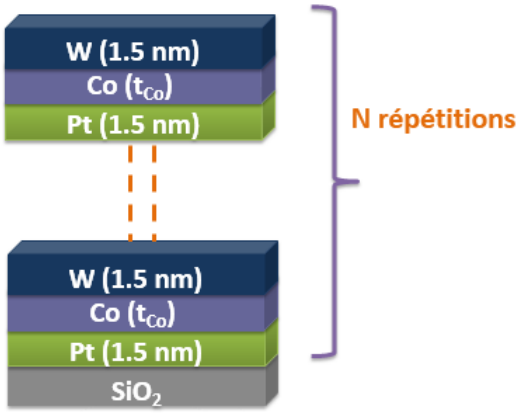

FIGURE 4.15 – Structure en multicouches à base de $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(t_{Co})/W(1.5\text{ nm})]_N$. L'épaisseur du film de Co varie de 1 à 6 nm avec N = 1, 2, 3, 5 et 7.

4.5.2 Propriétés structurales

Les épaisseurs des couches et la rugosité de l'interface ont été estimées à partir de l'analyse des diagrammes XXR sur un diffractomètre D8 Advance Bruker en utilisant un rayonnement Cu-Kα et un faisceau parallèle issu d'un miroir de Göbel. La figure 4.16 montre les diagrammes XRR obtenus pour $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(1.5\text{ nm})/W(1.5\text{ nm})]_N$ (figures de gauche) et $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(1\text{ nm})/W(1.5\text{ nm})]_N$ (figures de droite). Le caractère multicouche des échantillon peut être mis en évidence par l'existence de pics de Bragg, jusqu'au quatrième ordre, correspondant à l'épaisseur de la tricouche répétée. Ces diagrammes ont été ajustés en utilisant les mêmes paramètres pour toutes les répétitions d'un seul empilement Pt/Co/W, à l'exception de la dernière couche superficielle W pour laquelle on a laissé l'épaisseur et la densité varier librement afin de tenir compte des effets de contaminations de surface.

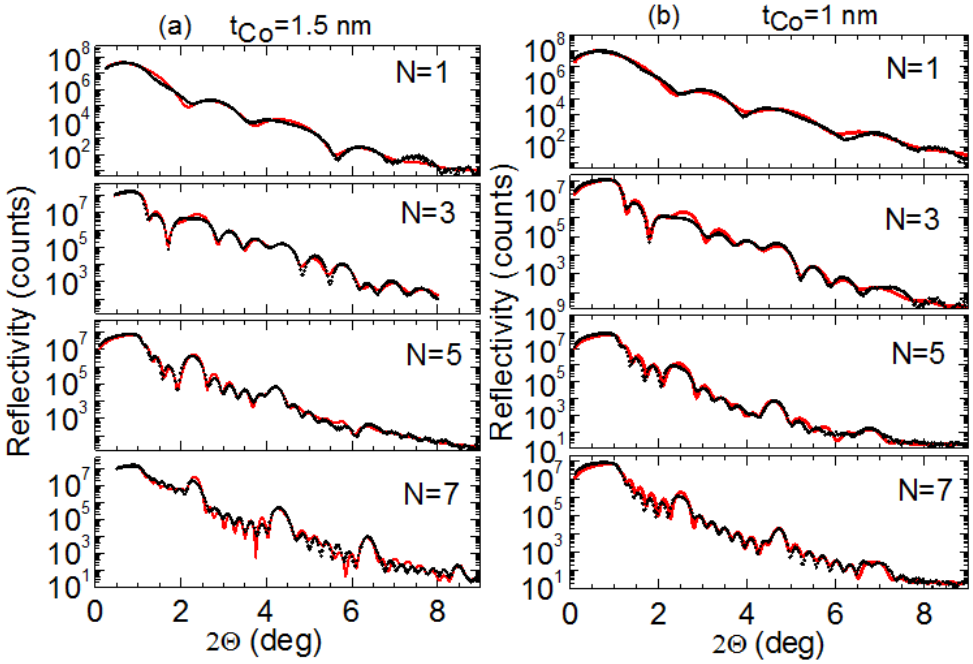

FIGURE 4.16 – Diagrammes de réflectivité des rayons X de (a) $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(1.5\text{ nm})/W(1.5\text{ nm})]_N$ (à gauche) et $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(1\text{ nm})/W(1.5\text{ nm})]_N$ (à droite) mesurés avec le rayonnement Cu-Kα. Les données expérimentales sont représentées par des lignes noires et l'ajustement réalisé avec le logiciel "GenX" par des lignes rouges.

Les épaisseurs mesurées étaient proches des valeurs nominales, mais le plus intéressant sont les valeurs des paramètres de rugosité de l'interface, qui sont résumées dans le tableau 4.3. Comme la majorité des éléments pulvérisés forme des alliages (Pt ave Co, W avec Co et W avec Pt), la principale contribution à la rugosité pourrait être attribuée à l'interdiffusion entre le Co, Pt et W. Par exemple, Honjo et al. [250] ont utilisé différentes conditions de pulvérisation pour le tungstène, et l'interdiffusion est toujours substantielle par rapport à l'épaisseur nominale. Ceci peut être lié à la formation de couches magnétiquement morte à l'interface W/Co comme cela a été rapporté auparavant [251] et comme il sera montré plus tard. Les valeurs de rugosité d'interface varient dans la gamme 0.5-0.9 nm à l'exception des échantillons N = 1 pour lesquels l'ajustement a donné des valeurs inférieures (de 0.31 à 0.36 nm). De plus, la rugosité des différentes interfaces, présentée dans la figure 4.17 en

fonction de N pour une épaisseur de Co de 1.5 nm, montre une augmentation rapide avec N pour les deux premières tricouches et une augmentation plus lente pour les grandes valeurs de N.

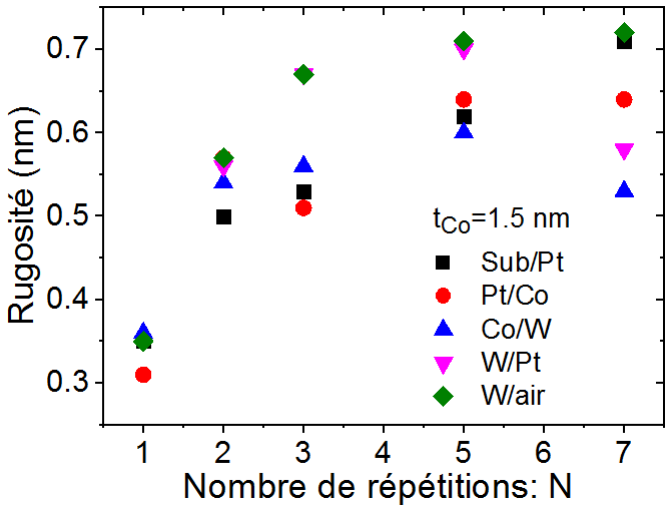

FIGURE 4.17 – Rugosité des différentes interfaces obtenue par mesures XRR pour les multicouches $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(1.5\text{ nm})/W(1.5\text{ nm})]_N$ en fonction du nombre de répétitions N.

	$[Pt(1.5\text{ nm})/Co(1.5\text{ nm})/W(1.5\text{ nm})]_N$					$[Pt(1.5\text{ nm})/Co(1\text{ nm})/W(1.5\text{ nm})]_N$			
Interface	N=1	2	3	5	7	1	3	5	7
Sub/Pt	0.35	0.5	0.53	0.62	0.71	0.37	0.47	0.61	0.72
Pt/Co	0.31	0.57	0.51	0.64	0.64	0.82	0.84	0.87	0.86
Co/W	0.36	0.54	0.56	0.6	0.53	0.46	0.46	0.63	0.79
W/Pt		0.56	0.67	0.7	0.58		0.62	0.46	0.41
W/air	0.35	0.57	0.67	0.71	0.72	0.88	0.97	0.92	0.98

TABLE 4.3 – Paramètres de rugosité des interfaces pour les multicouches $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(1.5\text{ nm})/W(1.5\text{ nm})]_N$ et $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(1\text{ nm})/W(1.5\text{ nm})]_N$ avec différents nombres de répétitions. Toutes les valeurs sont en nanomètre.

Cette évolution de la rugosité suggère une amélioration des interfaces avec le nombre de répétitions N. En effet, si toutes les interfaces étaient équivalentes, la rugosité totale devrait varier linéairement avec le nombre de répétitions. Cependant, selon la figure 4.17 le taux d'augmentation de la rugosité est strictement réduit lorsque le nombre de répétitions N est supérieur à 2. Par conséquent, la rugosité des interfaces supérieures est donc inférieure à celle des interfaces inférieures. Nous concluons donc à l'amélioration de la qualité de l'interface. Comme on le verra plus loin, des tendances similaires sont observées pour d'autres propriétés magnétiques, ce qui suggère une évolution des interfaces et une corrélation possible entre toutes ces grandeurs. Une explication possible de cette tendance est le processus de croissance : les propriétés de chaque couche de Co sont principalement influencées par les couches précédemment déposées, et la structure d'une couche dépend davantage des couches précédemment déposées que des couches suivantes. Dans notre cas, la premiére couche de Co est déposée sur Pt comme pour une multicouche simple Co/Pt pour laquelle aucune couche magnétique morte n'a été observée, tandis que les autres couches de Co sont déposées sur W/Pt.

Nous avons également utilisé la diffraction des rayons X en incidence rasante (GIXRD) pour sonder les propriétés structurales des multicouches. Aucune différence entre les échantillons avec des différents nombres de répétions N n'a été observée. Seul un large pic autour de $2\theta = 40°$ domine les diagrammes XRD, qui couvre la gamme qui inclut Pt (111), α-W(110), β-W(210) et hcp-Co(100). Par conséquent, nous ne pouvons pas détecter d'importants changements dans la texture.

4.5.3 Propriétés statiques

La figure 4.18 montre la dépendance du moment magnétique à saturation par unité de surface ($M_s \times t_{Co}$) en fonction de l'épaisseur du Co (t_{Co}) pour N = 1, 2, 3, 5 et 7, respectivement. Les valeurs de M_s pour les couches les plus épaisses de Co (pour N = 3 et N = 5) sont indisponibles en raison des contraintes expérimentales. La dépendance linéaire par rapport à t_{Co} et l'intersection non nulle avec l'axe des abscisses suggèrent ainsi l'existence d'une couche magnétique morte.

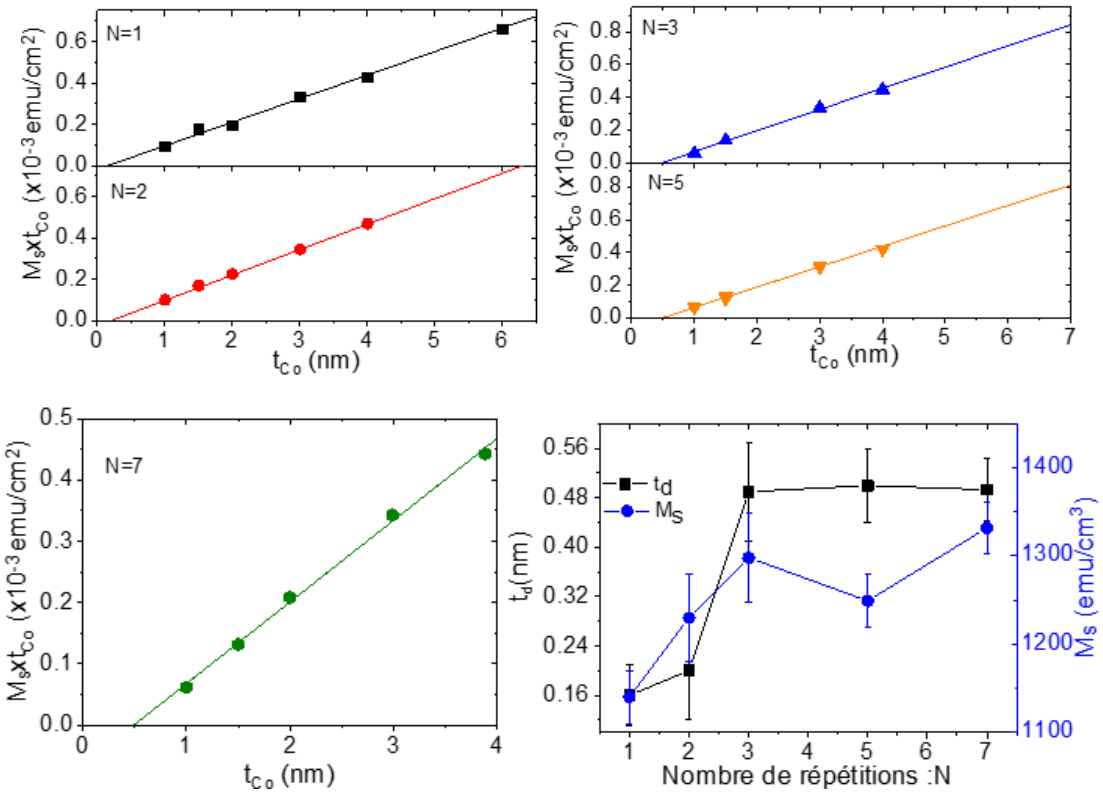

FIGURE 4.18 – Moment magnétique à saturation par unité de surface en fonction de l'épaisseur de Co (t_{Co}) dans les multicouches de $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(t_{Co})/W(1.5\text{ nm})]_N$, où N= 1, 2, 3, 5 et 7. Les symboles font référence aux mesures VSM et les les lignes continues sont les ajustements linéaires. En bas, à droite : dépendance de M_s et t_d en fonction du nombre de répétitions N des multicouches. Les symboles font référence aux données expérimentales, et les lignes continues sont utilisées comme guides des yeux.

Les valeurs obtenues de M_s et t_d (par ajustement linaire des courbes dans la figure 4.18) et présentées en fonction de N, sur la même figure 4.18, montrent que ces dernières augmentent avec N et restent pratiquement constantes pour N $\geq$ 3, suggérant qu'il n'y a pas de changement significatif dans les propriétés des interfaces et du volume à partir

de N $\geq$ 3. En raison du processus de croissance, les propriétés de chaque couche de Co sont principalement influencées par les couches précédemment déposées et non par celles qui ont été déposées par-dessus. Par conséquent, nous déduisons également que les deux premières tricouches individuelles de Pt/Co/W sont de moindre qualité.

Comparés aux multicouches, nous n'avons observé aucune couche morte pour les systèmes Pt/Co/Pt et Pt/Co/Cu (voir [222]). De plus, la formation de cette couche magnétiquement inactive à l'interface W/Co a été rapportée par Spasova et al. [251] et par Kolesnikov et al. [252]. Ils ont notamment montré que la couche intermédiaire de W dans les échantillons à base de Ru/Co/W/Ru favorise l'augmentation de la couche magnétique morte. Ils ont conclu que l'augmentation de l'épaisseur de W de 0.1 à 0.35 nm conduit à la croissance d'une couche magnétique morte à l'interface Co/W de 0.2 à 0.58 nm. De plus, Petford-Long et al. [253] ont observé une région non magnétique à l'interface Co/W en utilisant la microscopie électronique à transmission à haute résolution. Par conséquent, trés probablement, la couche magnétique morte observée dans les structures Pt/Co/W est principalement due à la diffusion atomique du W dans la couche de Co pendant le processus de dépôt par pulvérisation.

4.5.4 Facteur gyromagnétique

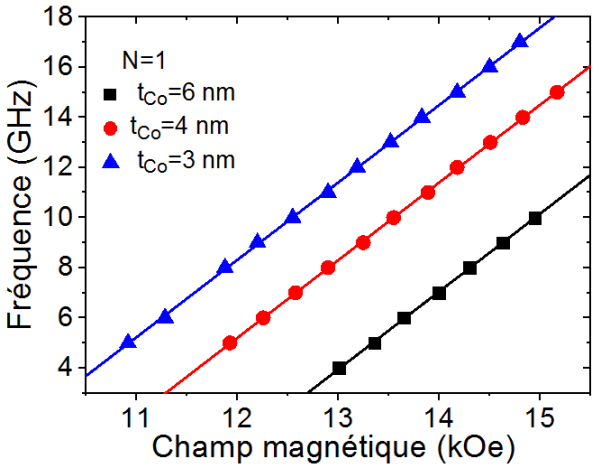

FIGURE 4.19 – Variations de la fréquence du mode de précession uniforme en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan des échantillons. Les symboles se réfèrent aux données expérimentales et les droites sont les ajustements par l'équation 2.16.

L'objectif principal dans la suite de cette partie, est d'étudier la PMA, l'amortissement de Gilbert et l'iDMI en fonction des épaisseurs de Co et du nombre de répétitions en utilisant la BLS et la FMR. Néanmoins, pour la détermination des constantes caractérisant ces phénomènes d'interface, la valeur du rapport gyromagnétique $\gamma/2\pi$ est nécessaire. Cette valeur peut être obtenue précisément à l'aide de la technique FMR par l'étude de la variation de la fréquence du mode de précession uniforme en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan du film (voir figure 4.19). Le rapport gyromagnétique $\gamma/2\pi$ est directement donné par la pente de l'ajustement linéaire (par l'équation 2.16) de ces données conduisant à $\gamma/2\pi$ = 31 GHz/T (g = 2.21), qui s'avère être principalement indépendant de l'épaisseur de Co. Cette valeur sera utilisée pour tous

les systèmes étudiés ici, elle est cependant légèrement supérieure à la valeur du Co massif ($g = 1.83$) [242].

4.5.5 Anisotropie magnétique

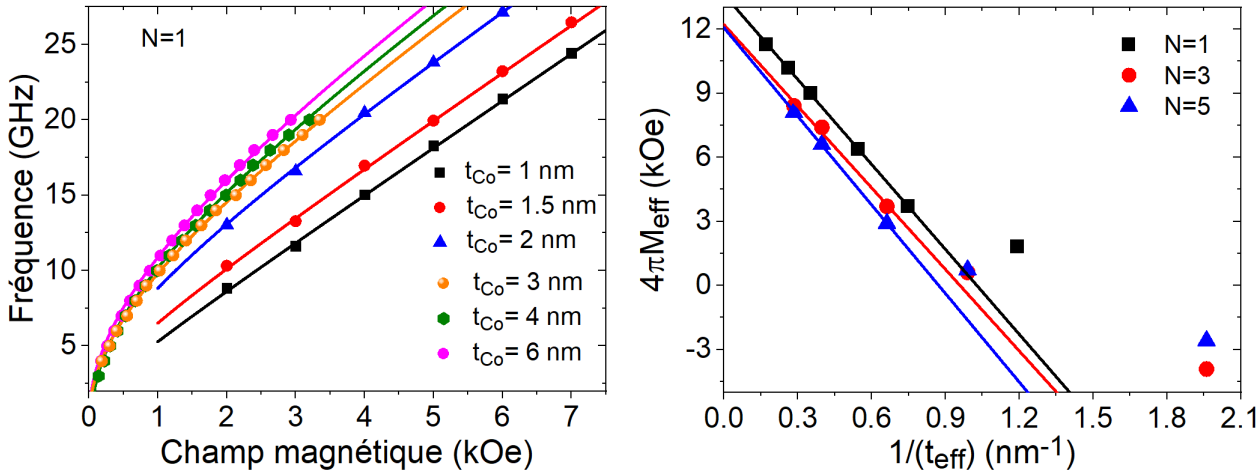

FIGURE 4.20 – A gauche : variation de la fréquence du mode de précession uniforme en fonction du champ magnétique appliqué dans le plan pour un système simple de type Pt/Co(t_{Co})/W (N = 1). Les symboles renvoient aux données expérimentales et les droites sont des ajustements en utilisant les équations 2.17 et 2.31, afin d'extraire les valeurs de M_{eff}. A droite : aimantation effective ($4\pi M_{eff}$) en fonction de $1/t_{eff}$ pour les multicouches $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(t_{Co})/W(1.5\text{ nm})]_N$ avec N = 1, 3 et 7. Les symboles se réfèrent aux données expérimentales, tandis que les droites sont des ajustements.

Le champ d'anisotropie perpendiculaire peut être déterminé à partir de l'étude de la dépendance en champ de la fréquence ($F_{\parallel}$) du mode de précession uniforme ($k_{sw} = 0$) ou non uniforme ($k_{sw} \neq 0$) en utilisant respectivement la technique FMR ou la technique BLS (en configuration DE). Nous avons donc combiné ces deux techniques pour mesurer la dépendance en champ de la fréquence du mode de précession uniforme (en utilisant la FMR pour $t_{Co} > 2$ nm) et la dépendance en champ de la fréquence moyenne des raies Stokes et anti-Stokes (en utilisant la BLS pour $t_{Co} \leq 2$ nm) pour chaque multicouche. La figure 4.20 (à gauche) illustre $F_{\parallel}(H)$ pour N=1 et pour différentes épaisseurs de Co. Afin d'extraire les valeurs de M_{eff}, les données expérimentales ont été ajustées en utilisant les équations 2.17 (en introduisant une anisotropie uniaxiale dans le plan) et 2.31 pour les mesures FMR et BLS, respectivement.

La dépendance de $4\pi M_{eff}$ en fonction de $1/t_{eff}$ est représentée sur la figure 4.20 (à droite) pour N = 1, 3 et 5. Un écart par rapport au comportement linéaire pour une épaisseur nominale de Co inférieure à 1.5 nm est observé pour toutes les multicouches, suggérant l'existence de deux régimes. Cet écart par rapport au comportement linéaire est fréquemment rapporté pour les films minces magnétiques et pourrait être attribué à différentes causes, comme la faible épaisseur de la couche magnétique qui devient inférieure à la rugosité de l'interface, à l'interdiffusion [244], à une diminution de la température de Curie [243], ou à la croissance cohérente et incohérente de Co [22], comme mentionné ci-dessus. Dans ce cas, ce régime non linéaire pour les plus faibles épaisseurs de Co (inférieur à 1.5 nm) pourrait être dû à une dégradation de l'interface. Par conséquent, la détermination

des constantes d'anisotropie de surface K_s et de volume K_V est obtenue à partir de l'ajustement en utilisant l'équation 3.2 pour les données où $t_{Co} > 1.5$ nm.

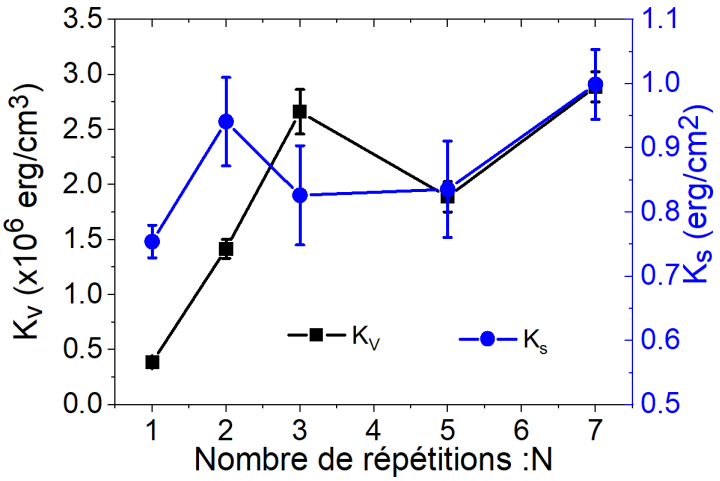

FIGURE 4.21 – Dépendance des constantes d'anisotropie de surface K_s et de volume K_V en fonction du nombre de répétitions N pour les multicouches $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(t_{Co})/W(1.5\text{ nm})]_N$. Les symboles font référence aux données expérimentales et les lignes sont utilisées comme guides pour les yeux.

Les constantes d'anisotropie de surface K_s et de volume K_V obtenues, en fonction du nombre de répétitions N, sont présentées sur la figure 4.21. Les valeurs positives de K_s et de K_V pour toutes les multicouches favorisent ainsi la direction perpendiculaire de l'aimantation. K_s est en bon accord avec les valeurs 0.73 erg.cm^{-2} [234] et 0,9 erg.cm^{-2} [254], obtenues pour l'interface de Co/Pt déposée par pulvérisation cathodique, suggérant ainsi que cette anisotropie de surface est principalement induite par les interfaces Pt/Co dans ces multicouches.

D'après la figure 4.21, K_s et K_V ont des comportements différents en fonction de N : alors que la variation de K_s reste modérée (0.8–1 erg.cm^{-2}) et ne montre pas de tendance régulière avec N, une forte dépendance (0.38–2.9 $\times 10^6$ erg.cm^{-3}) est observée pour la constante K_V. L'absence de la régularité dans le comportement de K_s pourrait être attribué à l'erreur relativement importante dans son estimation. Néanmoins, pour N = 1, K_s est significativement plus faible par rapport aux autres valeurs de N, suggérant une amélioration de la qualité de l'interface pour N > 1. En outre, il convient de rappeler le comportement similaire de K_V, de la rugosité, t_d et de M_s en fonction de N, indiquant une amélioration du volume d'échantillon et de la qualité de l'interface. On note que la légère diminution de K_V pour N = 5, reflète la plus petite valeur de M_s mesurée pour cette multicouche. Comme nous l'avons mentionné ci-dessus, l'existence d'une couche magntique morte peut être considérée comme limitée aux trois premières tricouches de Pt/Co/W puisque l'épaisseur totale de la couche morte augmente linéairement pour N ≤3 et reste constante pour N plus élevé. Cela pourrait expliquer la meilleur qualité du volume et les plus grandes valeurs de K_V lorsque N >3.

4.5.6 Amortissement de Gilbert

Nous avons également étudié l'amortissement non local induit par pompage de spin. Nous avons ainsi utilisé la FMR en combinaison avec le BLS pour mesurer la dépendance

en fréquence (pour $t_{Co} > 2$ nm) et en champ (BLS pour les films de Co les plus minces) de la largeur de raie à mi-hauteur, comme le montre la figure 4.22 pour N = 1 ou pour $t_{Co} = 4$ nm. Le coefficient d'amortissement de Gilbert α a ensuite été déterminé à partir des ajustements des données expérimentales à l'aide des équations 2.21 et 2.32 pour les mesures FMR et BLS, respectivement. A noter que la grande barre d'erreur des valeurs BLS de coefficient d'amortissement dans la figure 4.22 par rapport aux données FMR, est probablement due aux spectres BLS de moindre qualité même après un long temps d'accumulation du fait que les ondes de spin sondées sont thermiquement excitées.

En considérant que le coefficient d'amortissement total est donné par $\alpha = \alpha_{Co} + \alpha_{pumping}$ où α_{Co} est la constante d'amortissement de Gilbert du Co massif et $\alpha_{pumping}$ est l'amortissement supplémentaire introduit par l'effet de pompage de spin, l'ajustement des données expérimentales de la figure 4.23 (à gauche) par l'équation 2.34 donne $\alpha_{Co} \approx (7.8 \pm 2) \times 10^{-3}$. Cette valeur est légèrement inférieure à celle du Co massif ($\alpha_{Co} = 10^{-2}$) [255] et se situe dans la gamme des valeurs ($5 \times 10^{-3} - 8.5 \times 10^{-3}$) rapportée par Tokaç et al.[256] pour le Co massif de structure hcp et fcc. Cette valeur de α_{Co}, qui est en bon accord avec celle du Co hcp ($\alpha_{Co} = 8 \times 10^{-3}$) rapportée par Devolder et al. [257], suggère que les films de Co de ces échantillons sont de structure hcp.

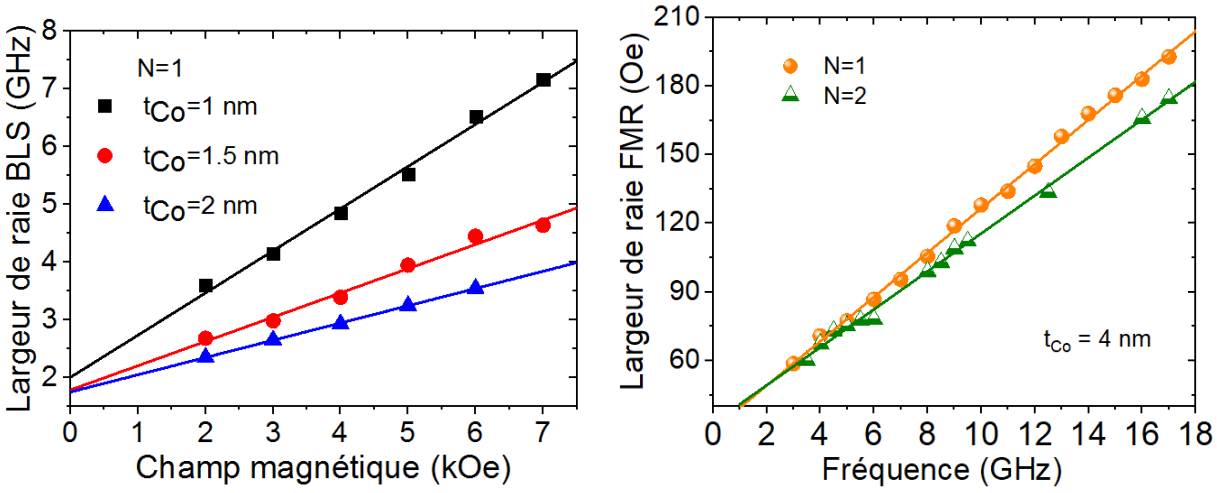

FIGURE 4.22 – A gauche : largeur de raie fréquentielle à mi-hauteur mesurée par BLS à partir de la largeur de raie moyenne des raies S et aS en fonction du champ magnétique appliqué dans le plan du système $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(t_{Co})/W(1.5\text{ nm})]_N$ (N = 1). A droite : demie-largeur à mi-hauteur mesurée par FMR en fonction de la fréquence de résonance pour un champ magnétique appliqué dans le plan pour un échantillon de $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(4\text{ nm})/W(1.5\text{ nm})]_N$ avec différents nombres de répétitions N.

La contribution due au pompage de spin $\alpha_{pumping}$ est également obtenue à partir de l'ajustement par l'équation 2.34 des données expérimentales de la figure 4.23. La valeur de la conductance par mixage de spin $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ extraite ainsi de la pente donne $g_{eff}^{\uparrow\downarrow} = 54.5 \pm 5.4$ nm^{-2}. Cette valeur est en bon accord avec la valeur reportée par Czeschka et al. [258], dans le cas d'une interface de Co/Pt. Il convient de mentionner la faible valeur de $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ de l'interface de CoFeB/W (2.35 nm^{-2}) [259] comparée à celle du CoFeB/Pt (50.7 nm^{-2}) [260] ce qui suggère un effet de pompage de spin plus faible dans les empilement à base de W. Par conséquent, nous déduisons que la valeur obtenue de $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ est principalement due à l'interface de Co/Pt, et nous pensons que cette valeur est sous-estimée en raison de la moindre qualité des multicouches avec N < 3. Pour vérifier cela, la dépendance du

coefficient d'amortissement de Gilbert en fonction de N est représentée sur la figure 4.23 (à droite) pour $t_{Co} = 4$ nm. On observe à nouveau une corrélation avec le comportement de t_d, la rugosité, M_s et l'anisotropie. Le renforcement de l'amortissement avec l'augmentation de N peut être lié à un plus grand effet de pompage de spin dû à une meilleure qualité des multicouches pour N ≥ 3.

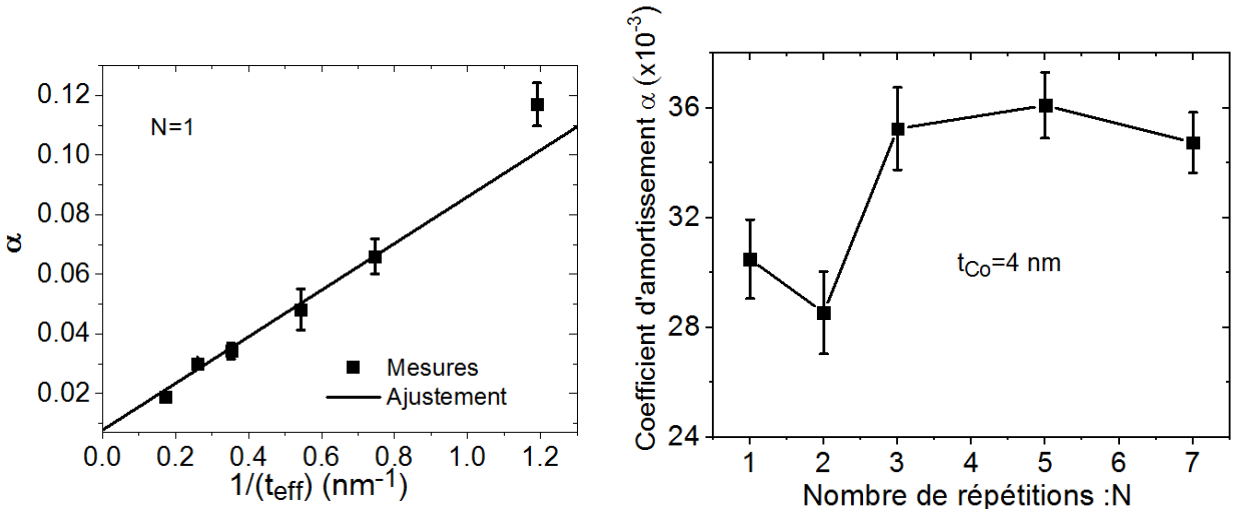

FIGURE 4.23 – A gauche : coefficient d'amortissement de Gilbert en fonction de l'inverse de l'épaisseur effective des films de Co ($1/t_{eff}$) dans le système $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(t_{Co})/W(1.5\text{ nm})]_N$ (N = 1). Les symboles se réfèrent aux données expérimentales, et la droite est l'ajustement linéaire. A droite : variation du coefficient d'amortissement de Gilbert en fonction du nombre de répétitions pour une épaisseur de Co de 4 nm. Les symboles se réfèrent aux données expérimentales et les lignes sont utilisées comme guides des yeux.

4.5.6.1 Interaction iDMI

La technique BLS a également été utilisée pour étudier la dépendance de la constante iDMI en fonction de N. Pour cela, la différence de fréquence entre les raies Stokes et anti-Stokes ($\Delta F = F_S - F_{aS}$) a été mesurée en fonction du vecteur d'onde de spin k_{sw}, comme le montre la figure 4.24 pour certaines multicouches avec différentes épaisseurs de Co et répétitions N. L'ajustement de ces données expérimentales avec l'équation 2.30 permet de déterminer la constante iDMI, D_{eff}. Leurs évolutions en fonction de N sont illustrées à la figure 4.25 pour des films de Co les plus minces, où un comportement similaire à celui des différentes grandeurs étudiées ci-dessus peut être observé pour des films relativement épais, comme prédit théoriquement.

Théoriquement, les calculs précis de la fréquence des ondes de spin pour les multicouches avec iDMI ont été présentés précédemment par Bouloussa et al. [261]. Une expression explicite de la fréquence est donnée pour les empilements constitués d'une répétition de tricouches identiques. Ces calculs montrent que la différence des fréquences des raies Stokes et anti-Stokes ne dépend pas du nombre de répétitions des tricouches identiques [261]. Nous nous attendions donc à une différence de fréquence identique pour toutes les multicouches avec différents N. La variation observée avec N prouve que certaines tricouhes ont des propriétés différentes.

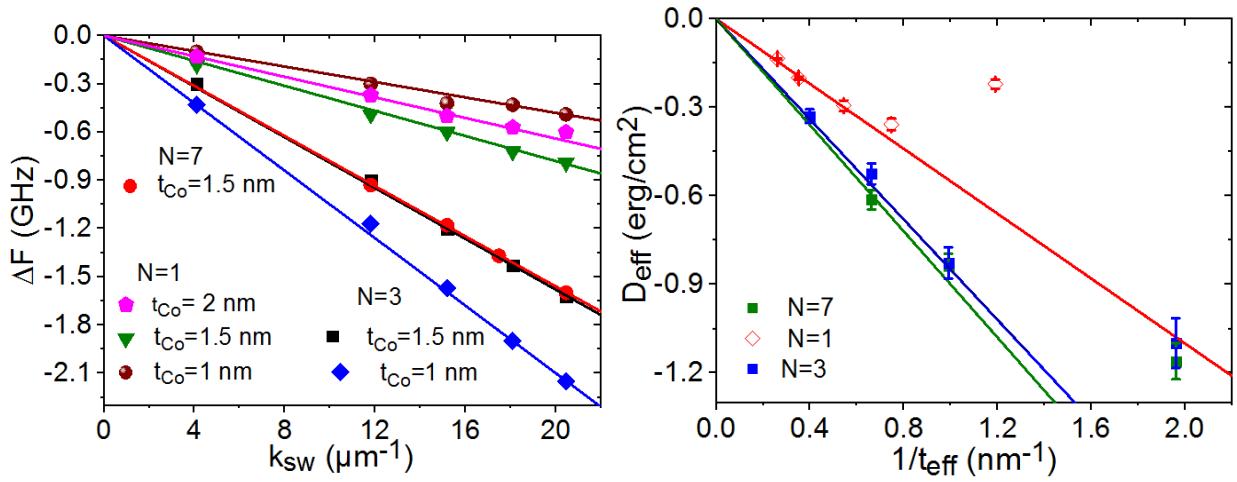

FIGURE 4.24 – A gauche : dépendance en vecteur d'onde k_{sw} de la différence de fréquence ΔF (symboles) pour les échantillons $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(t_{Co})/W(1.5\text{ nm})]_N$ avec N = 1, 3 et 7. Les droites se réfèrent aux ajustements linéaires. A droite : variation des constantes iDMI en fonction de l'inverse de l'épaisseur effective des films de Co pour les multicouhes de $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(t_{Co})/W(1.5\text{ nm})]_N$ avec N = 1, 3 et 7.

L'évolution du D_{eff} en fonction de $1/t_{eff}$ est représentée à droite sur la figure 4.24 pour trois valeurs différentes de N (N = 1, 3 et 7). Nous remarquons à nouveau la déviation de la linéarité, lorsque l'épaisseur nominale de Co approche 1.5 nm. La dépendance plus lente de D_{eff} pour des films de Co plus minces est aussi très probablement due à la dégradation de la qualité de l'interface des couches de Co les plus minces.

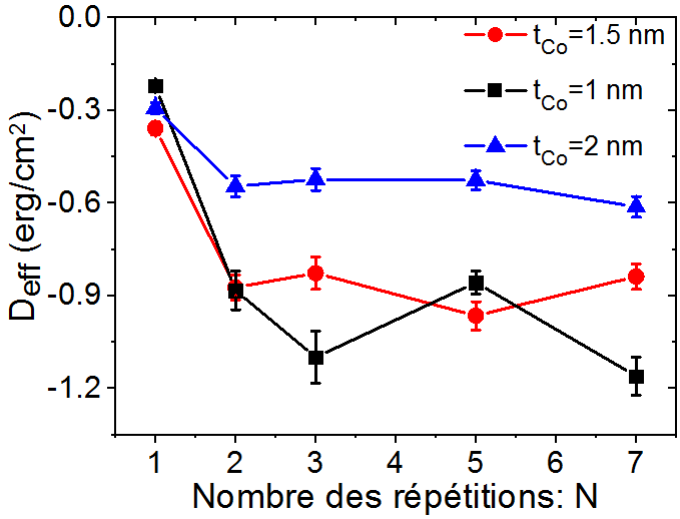

FIGURE 4.25 – Variation de la constante effective d'iDMI D_{eff} en fonction du nombre de répétitions N pour différentes épaisseurs de Co, dans les multicouches de $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(t_{Co})/W(1.5\text{ nm})]_N$ avec N = 1, 2, 3, 5 et 7.

Par ajustement linéaire des données de la figure 4.24 dans la gamme d'épaisseur du Co où la dépendance théorique attendue de D_{eff} : $D_{eff} = D_s/t_{eff}$ (pour $t_{Co} > 1.5$ nm) est vérifiée, nous avons obtenu $D_s = (-0.55 \pm 0.02) \times 10^{-7}$ erg/cm, $(-0,85 \pm 0.02) \times 10^{-7}$ erg/cm et $(-0.9 \pm 0.02) \times 10^{-7}$ erg/cm, respectivement pour N = 1, 3, et 7. Les résultats obtenus pour la tricouche individuelle (N = 1) de Pt/Co/W sont en bon ac-

cord avec ceux obtenus par Lin et al. [262], où une valeur très faible de -0.19 ± 0.05 erg.cm^{-2} [$D_s = (-0.34 \pm 0.02) \times 10^{-7}$ erg/cm] a été mesurée pour l'empilement de Pt/Co (1,8 nm)/W. Cependant, elle est sensiblement inférieure à celle mesurée pour le système Pt/Co/Cu [222] et à celle obtenue par Park et al. [263] pour le systéme de Ta/Pt/Co (0.9 nm)/W/Pt. Néanmoins, comme nous l'avons mentionné ci-dessus et d'après les calculs précédents sur les multicouches [261], la constante iDMI ne dépend pas du nombre de répétitions des tricouches identiques (c'est-à-dire ayant des propriétés magnétiques identiques). Par conséquent, pour N $\geq$ 3, les constantes iDMI de surface obtenues (-0.9×10^{-7} erg/cm), bien qu'étant légèrement inférieures à celles obtenues par Park et al. (-1.33×10^{-7} erg/cm), coïncident pratiquement avec la valeur rapportée pour les échantillons à base de Pt/Co/Cu [222]. Ceci suggère que le film de W ne contribue très probablement pas à l'iDMI dans ces multicouches. Comme nous l'avons mentionné ci-dessus, il est utile de rappeler que l'iDMI dépend des conditions de dépôt de l'échantillon et des techniques d'élaboration et que la variation considérable de ses valeurs rapportées par différents groupes pour des systèmes apparemment identiques n'est pas étonnante. En effet, l'iDMI est déterminée par la nature intrinsèque de l'interface mais aussi par sa structure atomique réelle aux interfaces, qui est influencée par les paramètres d'élaboration de l'échantillon, telles que la technique de dépôt et la sous-couche. Cela peut expliquer la différence entre les tricouches individuelles de Pt/Co/Cu [222] et de Pt/Co/W actuelles ; deux différentes machines de pulvérisation ont été utilisées pour leur élaboration : une géométrie planaire pour le Pt/Co/Cu et une géométrie confocale dans la seconde ; typiquement, la configuration planaire donne une meilleure uniformité du film.

4.6 Conclusion chapitre

Des films ultra minces de Co de différentes épaisseurs ont été préparés par pulvérisation cathodique sur des substrats de Si/SiO_2.

Dans la première partie de ce chapitre, nous avons utilisé différentes couches de couverture et sous-couches (MgO, W, Pt, Ru, Ti et Ir). Les mesures par VSM ont été utilisées pour déterminer l'aimantation à saturation et l'épaisseur de la couche magnétique morte. La FMR combinée à la BLS, en la configuration DE, ont permis de révéler l'existence d'un terme de second ordre de PMA et d'étudier la dépendance de l'aimantation effective en fonction de l'inverse de l'épaisseur effective des films de Co, en plus de l'iDMI. L'analyse des mesures BLS et FMR montre que l'aimantation effective et la constante iDMI des systèmes non recuits et recuits varient linéairement en fonction de l'inverse de l'épaisseur effective du Co, avec une déviation prononcée du comportement linéaire pour les films de Co les plus minces. Le comportement linéaire de l'aimantation effective pour les films de Co les plus épais est dû à l'existence d'une anisotropie magnétique perpendiculaire uniaxiale d'interface qui dépend des sous-couches et des couches de couverture. De plus, nous avons montré que les interfaces Co/Ir et Ir/Co contribuent différemment à l'iDMI totale : alors que la contribution de Ir/Co disparaît, l'interface Co/Ir présente une faible constante d'iDMI dont le signe est identique à celle de l'interface de Co/Pt. Le recuit à 300 °C augmente à la fois l'anisotropie magnétique perpendiculaire d'interface et l'iDMI pour le système Pt/Co/MgO en raison de la diffusion des atomes d'oxygène interpénétrés dans la couche de Co vers l'interface Co/MgO et à la formation de l'interface Co/O.

Dans la seconde partie, des multicouches de $[Pt(1.5\text{ nm})/Co(t_{Co})/W(1.5\text{ nm})]_N$, avec le nombre de répétitions N et l'épaisseur de Co variables ont été étudiées. Les mesures de réflectivité des rayons X ont été utilisées pour étudier la rugosité de l'interface et

pour déterminer l'épaisseur des films de Co. Les mesures VSM ont clairement montré une amélioration des couches magnétiques avec l'augmentation du nombre de répétitions N : l'épaisseur totale de la couche morte augmente linéairement avec N pour N $\leq$3 et reste constante pour N plus élevé. De plus, l'anisotropie magnétique de volume, déterminée à partir des mesures FMR et BLS augmente également avec N. Ces mesures révèlent également l'existence de deux régimes pour la variation du champ effectif d'anisotropie perpendiculaire en fonction de l'épaisseur effective du Co : pour des épaisseurs nominales de Co supérieures à 1.5 nm, le champ effectif d'anisotropie varie linéairement avec l'inverse de l'épaisseur effective , tandis que pour les échantillons plus minces, la variation du champ d'anisotropie suit des tendances différentes. En dehors des mesures de fréquence, l'analyse des largeurs de raie montre une variation linéaire du coefficient d'amortissement avec l'inverse de l'épaisseur effective. Cette caractéristique était liée au pompage de spin. La contribution de ce dernier au coefficient d'amortissement suit la même tendance que l'anisotropie magnétique et augmente avec l'amélioration de l'interface au fur et à mesure que N croît. Enfin, les mesures BLS ont permis d'évaluer les constantes iDMI de surface à partir de la différence en fréquence entre les raies Stokes et anti-Stokes. Si les multicouches étaient composées de séquences aux propriétés identiques, la différence de fréquence mesurée (entre les raies Stokes et anti-Stokes) ne dépendrait pas de N. L'augmentation observée de cette différence de fréquence avec N est en accord avec les tendances de l'anisotropie, de pompage de spin et les propriétés statiques magnétiques : plus N est grand, meilleures sont les propriétés d'interface. Cette étude sur des empilements constitués de tricouches superposées réitérées ouvre la possibilité d'améliorer la qualité de l'interface et les propriétés associées tels que l'anisotropie perpendiculaire, le pompage de spin et l'iDMI.

Chapitre 5

Investigation de la corrélation entre les effets d'interface liés au SOC dans les systèmes à base de CoFeB

Ce chapitre présente l'étude de la corrélation entre l'anisotropie magnétique perpendiculaire, la constante d'amortissement et l'interaction iDMI d'interface dans les systèmes à base de CoFeB. Deux catégories d'empilement ont été élaborées : CoFeB/X (où X = Pt, Cu/Pt, Ta/Pt et W/Al) et Ta/CoFeB(1,5 nm)/Y/Pt (où Y = Cu, Ta, MgO). Pour la première catégorie, aucune corrélation entre ces effets SOC n'a été observée en raison de leurs origines différentes, tandis que la seconde catégorie a permis de mettre en évidence une corrélation linéaire entre les constantes d'iDMI, PMA et de la conductance par mixage de spin.

5.1 Introduction

La spintronique a ouvert la voie à de nouveaux effets et à des dispositifs futuristes basés sur la manipulation et le contrôle du spin au moyen de champs électrique et magnétiques et courant électriques. Les phénomènes spintroniques se produisent lorsque les concepts des ingénieries magnétique (spin), des semi-conducteurs (charge électrique) et de lumière se chevauchent. Afin de cibler des applications en spintronique, plusieurs matériaux ont été étudiés au cours de ces dernières décennies, où les matériaux ferromagnétiques à anisotropie perpendiculaire ont été largement utilisés dans des domaines tels que le stockage d'information et les capteurs magnétiques.

Ainsi, pour les futurs MRAMs et pour obtenir une magnétorésistance tunnel (TMR) élevée, aussi bien qu'une manipulation facile de la résistance dans les jonctions tunnel magnétiques (MTJ), des matériaux ferromagnétiques doux avec des interfaces de plus faible rugosité sont nécessaires. Des rapports TMR très élevés jusqu'à 180% ont déjà pu être atteints avec des barrières tunnel en MgO et des électrodes en Fe déposées par épitaxie par jets moléculaire (MBE). Un autre progrès a été réalisé en remplaçant le Fe par l'alliage de CoFeB, ce qui a permis d'augmenter le rapport TMR jusqu'à 600% à température ambiante [51]. En effet, l'alliage CoFeB a suscité un intérêt particulier à cause de ses excellentes propriétés ferromagnétiques et sa forte polarisation de spin ($\sim$ 65%) [264], mieux adaptées à la plupart des applications. Il peut offrir un rapport magnétorésistif important lorsqu'il est utilisé comme électrode ferromagnétique avec une

barrière de MgO dans les MTJs [38]. De plus, son aimantation spontanée peut être dans le plan ou hors du plan, selon l'épaisseur du film, la structure en multicouches (sous-couche et couche de couverture, ainsi que leurs épaisseurs) et le processus de recuit.

Par ailleurs, dans les structures à base de film de CoFeB, la combinaison de l'iDMI qui stabilise des parois de domaine chirales de type Néel et de l'effet Hall de spin, a abouti à une vitesse de propagation des parois de domaines étonnamment grande [95, 229]. En effet, il a été observé que les vitesse et la direction du mouvement des parois de domaine dépendent de l'intensité de l'iDMI et peuvent être contrôlées par l'ingénierie d'interface, en concevant des empilement à base de HM/CoFeB ultra minces. Enfin, d'un point de vue technologique, ces structures sont d'une grande importance, en raison de leur énorme potentiel dans le contrôle du mouvement des parois de domaines par courant électrique, pour le développement d'un nouveau type de mémoires magnétiques à haute densité et performances, que nous avons déjà appelée "les mémoires racetrack" [229]. Une compréhension plus approfondie des mécanismes de l'iDMI dans de telles structures et une estimation précise de son intensité et de son signe sont donc cruciales pour des dispositifs spintronique efficaces.

Nous proposons dans ce chapitre, d'étudier les effets SOC d'interface et leur corrélation, dans les héterostuctures à base de CoFeB amorphe non recuit. En effet, il est bien connu que le SOC est nécessaire pour induire et renforcer la PMA, l'iDMI et l'amortissement induit par pompage de spin. Cependant, il n'est pas la seule interaction responsable de leur existence. Ces trois phénomènes liés à l'interface et au SOC peuvent se comporter différemment selon la nature du matériau HM, son emplacement dans le système et les détails de l'ensemble de l'empilement du système. Par ailleurs, si les origines et la physique de la PMA et du pompage de spin sont plus ou moins connues, une image physique simple de l'iDMI reste encore à définir et plusieurs questions fondamentales méritent d'être clarifiées, comme la portée de cette interaction ainsi que les monocouches atomiques d'interface impliquées dans cette interaction. D'un point de vue théorique, les réponses à ces questions sont plus ou moins établies, cependant, les procédures d'élaboration peuvent introduire des défauts qui ne sont pas pris en compte dans les calculs publiés jusqu'à présent [94]. De plus, ces trois effets d'origine commune, sont sensibles aux désordres, à l'hybridation orbitale autour du niveau de Fermi, aux détails de la structure électronique et à la disposition des défauts et des atomes aux interfaces. De plus, la contrainte induite par un substrat, une sous-couche [106] ou par la variation de la concentration du film ferromagnétique [265] peuvent influencer l'iDMI et la PMA.

En conclusion, on peut donc s'attendre à une corrélation entre ces trois effets d'interface liés au SOC. Cette corrélation entre chaque deux phénomènes de ces trois effets a déjà été étudiée dans certains systèmes [216, 255, 266], mais l'investigation de la corrélation simultanée entre ces trois phénomènes interfaciaux est toujours manquante.

Dans la première partie de ce chapitre, nous présentons l'étude des ces trois effets SOC dans les empilement à base de $CoFeB(t_{CFB})/X$ (X = Pt, Cu/Pt, Ta/Pt et W/Al). Nous démontrons qu'aucune corrélation entre ces phénomènes d'interface n'a été observée. Ceci est dû de leurs origines différentes dans de tels systèmes où la nature de la couche de couverture varie. Nous avons donc eu recours à la seconde catégorie à base de $Ta/CoFeB(1.5\,\mathrm{nm})/Y/Pt$ (où Y = Cu, Ta, MgO) qui a permis de mettre en évidence une corrélation linéaire entre les constantes iDMI, PMA et de la conductance par mixage de spin.

5.2 Préparation des échantillons

Les échantillons ont été élaborés via la collaboration du LSPM avec le centre de supraconductivité, spintronique et sciences de surfaces de l'université de Cluj-Napoca en Roumanie (Dr. Mihai Gabor et son équipe).

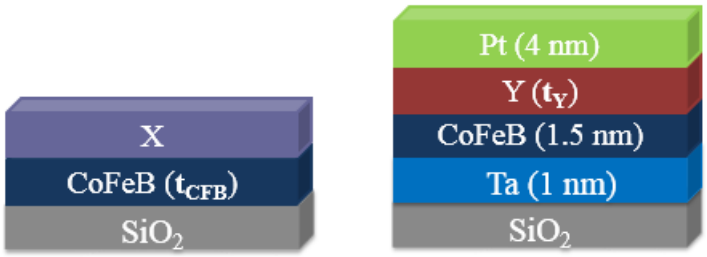

FIGURE 5.1 – Structure des échantillons à base de CoFeB. Deux catégories d'empilements sont étudiées. A gauche : films de CoFeB (d'épaisseur variable t_{CFB}) recouverts de différentes couches X (X= Pt(4 nm), Cu(2 nm)/Pt(4 nm), W(2 nm)/Al(1.5 nm) ou Ta(1 nm)/Pt (4 nm)). A droite : couche d'espacement Y (Y=MgO, Ta ou Cu) introduite entre le film de CoFeB ($t_{CFB} = 1.5$ nm) et la couche de Pt (4 nm)

Tous les échantillons ont été déposés à température ambiante sur des substrats de silicium thermiquement oxydé (Si/SiO_2) dans un système de pulvérisation magnétron ayant une pression inférieure à 2×10^{-8} Torr. Les couches métalliques ont été déposées par pulvérisation cathodique sous une pression d'argon de 1 mTorr. La vitesse de dépôt était d'environ 6 nm/min pour toutes les couches à l'exception des films de W qui ont été déposés à une vitesse beaucoup plus faible, 1.6 nm/min, afin de faciliter la formation de la phase β [267]. La couche MgO a été déposée par pulvérisation cathodique en mode RF, sous une pression d'argon de 10 mTorr, à une vitesse d'environ 2 nm/min.

Les échantillons sont classés en deux catégories. Dans la première catégorie, l'épaisseur du $Co_{20}Fe_{60}B_{20}$ (t_{CFB}) étant variable jusqu'à 12 nm (1 nm $\leq t_{CFB} \leq$ 12 nm). Les films de CoFeB sont ensuite recouverts de différentes couches : Pt(4 nm), Cu(2 nm)/Pt(4 nm), W(2 nm)/Al(1.5 nm) ou Ta(1 nm)/Pt (4 nm). Ainsi, les couches de couverture ont été modifiées dans le but de moduler les effets d'interface mentionnés ci-dessus (PMA, iDMI et amortissement) pour d'étudier toute corrélation entre eux. A noter que toutes les couches de CoFeB pour cette catégorie ont été déposées directement sur Si/SiO_2, à l'exception des échantillons recouverts de Ta (1 nm)/Pt (4 nm), où un film de Ta de 1 nm d'épaisseur a été inséré entre le substrat et le film de CoFeB pour améliorer la rugosité du substrat et l'adhérence des couches suivantes.

La deuxième catégorie d'échantillons est constituée de : Ta(1 nm)/CoFeB (1.5 nm)/couche intercalaire/Pt(4 nm). L'épaisseur de la couche de CoFeB a été maintenue constante et des couches intercalaires d'épaisseurs variables comprises entre 0 et 2.4 nm ont été insérées entre les films de CoFeB et de Pt. Nous avons choisi 3 types de matériaux comme couches intercalaires : un oxyde comme MgO, un métal léger tel que le Cu et un métal lourd le Ta. Ainsi, l'utilisation de différentes couches intercalaires est une autre méthode employée pour ajuster les paramètres interfaciaux (PMA, iDMI et amortissement). Les divergences entre les manières dont les deux catégories d'échantillons affecteront ces paramètres seront discutées tout au long de ce chapitre.

Nous étudions ainsi en première ligne "l'effet de l'épaisseur de CoFeB" puis dans la seconde partie de ce chapitre, "l'effet de la couche intercalaire". Pour cela, les propriétés

magnétiques statiques des échantillons ont été étudiées à l'aide de la VSM. Le rapport gyromagnétique, l'amortissement et la PMA ont été déterminés par FMR, tandis que la BLS a été utilisée pour étudier principalement l'iDMI dans tous les échantillons et la PMA dans les échantillons où le signal FMR est trop faible.

5.3 Effet de l'épaisseur de CoFeB

5.3.1 Propriétés statiques

Nous commençons par déterminer l'aimantation à saturation et l'épaisseur de la couche magnétique morte par mesures VSM. La dépendance du moment magnétique surfacique à la saturation ($M_s \times t_{CFB}$) en fonction de l'épaisseur de CoFeB est illustrée sur la figure 5.2. Les valeurs obtenues après ajustement linéaire sont présentées dans le tableau 5.1.

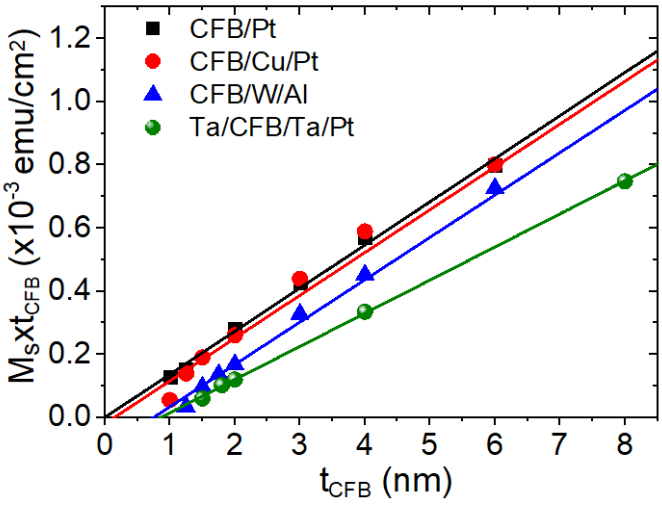

FIGURE 5.2 – Variation du moment magnétique à saturation par unité de surface en fonction de l'épaisseur de CoFeB des systèmes avec différentes couches de couverture. Les symboles font référence aux mesures VSM et les droites sont des ajustements linéaires.

Systme	M_s (emu/cm^3)	t_d (nm)
CoFeB/Pt	1366 ±50	0
CoFeB/Cu/Pt	1356 ± 55	0.15±0.03
CoFeB/W/Al	1342 ± 40	0.75±0.08
Ta/CoFeB/Ta/Pt	1050 ±15	0.86±0.08

TABLE 5.1 – Aimantation à saturation M_s et épaisseurs de la couche magnétique morte t_d pour les échantillons à base de CoFeB d'épaisseur variable, obtenues à partir des meilleurs ajustements des dépendances du moment magnétique à saturation par unité de surface en fonction des épaisseurs des films de CoFeB.

Globalement, les valeurs de M_s se situent aux alentours de 1350 emu/cm^3 pour les échantillons recouverts par Pt, Cu/Pt et W/Al, ce qui est en bon accord avec les valeurs rapportées pour le système Ta/CoFeB/MgO [268]. Ainsi, M_s ne semble pas être affectée par la couche de couverture. Cependant, M_s diminue significativement pour les

échantillons de Ta/CoFeB/Ta/Pt ($M_s = 1050 \pm 15$ emu/cm^3), en accord avec les valeurs mesurées par Wang et al. [269], dans les systèmes à base de CoFeB ($Co_{60}Fe_{20}B_{20}$). Les auteurs ont notamment observé une plus faible aimantation à saturation dans les structures à base de Ta/CoFeB/Ta par rapport aux échantillons avec des couches de couverture comme le Ru (Ru/CoFeB/Ru).

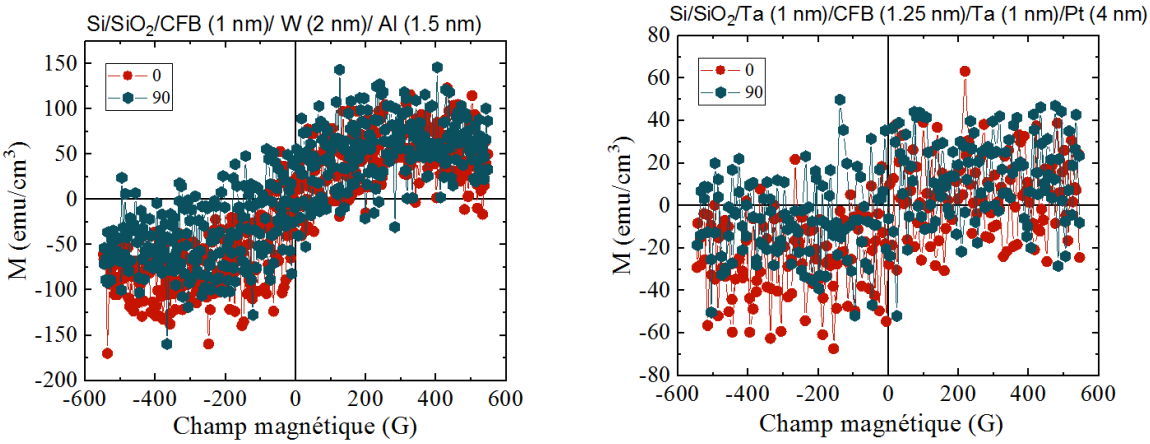

FIGURE 5.3 – Cycles d'hystérésis mesurés par VSM (avec un champ magnétique appliqué dans le plan à un angle de 0° et 90° par rapport à un des bords du substrat), pour les échantillons Ta/CoFeB (1.25 nm)/Ta et CoFeB (1 nm)/W. Les cycles montrent clairement la nature paramagnétique des films de CoFeB confirmant l'existence des couches magnétiques mortes épaisses pour ces échantillons.

Contrairement à M_s, l'épaisseur de la couche morte est plus sensible à la nature de la couche de couverture. On constate que le film de CoFeB présente la couche magnétique morte la plus épaisse de (0.86 ± 0.08) nm dans le système Ta/CoFeB/Ta/Pt, tandis que le système de CoFeB/Pt ne présente aucune couche morte. De plus, t_d =(0.15 ± 0.03) nm et t_d =(0.75 ± 0.08) nm ont été obtenues pour les empilements de CoFeB/Cu/Ta et CoFeB/W/Al, respectivement. Les couches magnétiques mortes épaisses mesurées dans les systèmes Ta/CoFeB/Ta/Pt et CoFeB/W/Al sont en bon accord avec la valeur rapportée par Wang et al. [269] et Skowronski et al. [270]. Elles ont été également confirmées par le caractère paramagnétique des échantillons à ≈ 1 nm d'épaisseur de CoFeB lors de la mesure de leur cycle d'hystérésis comme le montre la figure 5.3. Cette couche morte est très probablement due aux mélanges et à l'interdiffusion aux interfaces CoFeB. Cela peut être causait par le fait que le Ta et le W, qui sont des métaux lourds, lorsqu'ils sont pulvérisés sur le Fe ou le Co, causent davantage d'interdiffusion en raison de leur poids atomique plus élevé par rapport à un métal normal (léger). En effet, Jang et al. [271] ont rapporté que l'épaisseur de la couche morte, provenant du mélange aux interfaces pendant le dépôt, pour l'interface supérieure de CoFeB/Ru est légèrement plus grande que celle de l'interface inférieure de Ru/CoFeB de 0.04 nm (dans un échantillon de Ru/CoFeB/Ru) ; ceci est probablement dû au poids atomique plus grand du Ru, comparé au CoFeB. De plus, ils ont observé que lorsque le Ta est situé au-dessus de la couche de CoFeB, l'interface supérieure CoFeB/Ta présente une couche magnétique morte plus épaisse (de 0.12 nm) que l'interface supérieure CoFeB/Ru, ce qui s'explique également par le poids atomique plus élevé du Ta par rapport au Ru.

De même, Wang et al. [269] ont montré que la contribution de la couche de couverture de Ta à la couche magnétique morte est significativement plus élevée que celle de la sous-couche de Ta. On note aussi la valeur plus élevée du M_s pour les échantillons recouverts

de W par rapport à ceux recouverts de Ta. Ceci suggère de plus que pour les empilements de Ta/CoFeB/Ta/Pt, les grains magnétiques sont probablement découplés par la forte diffusion du Ta dans le film de CoFeB.

5.3.2 Facteur gyromagnétique

Un autre paramètre crucial pour améliorer la précision sur la détermination de ces trois effets interfaciales liés au spin-orbite est le rapport gyromagnétique.

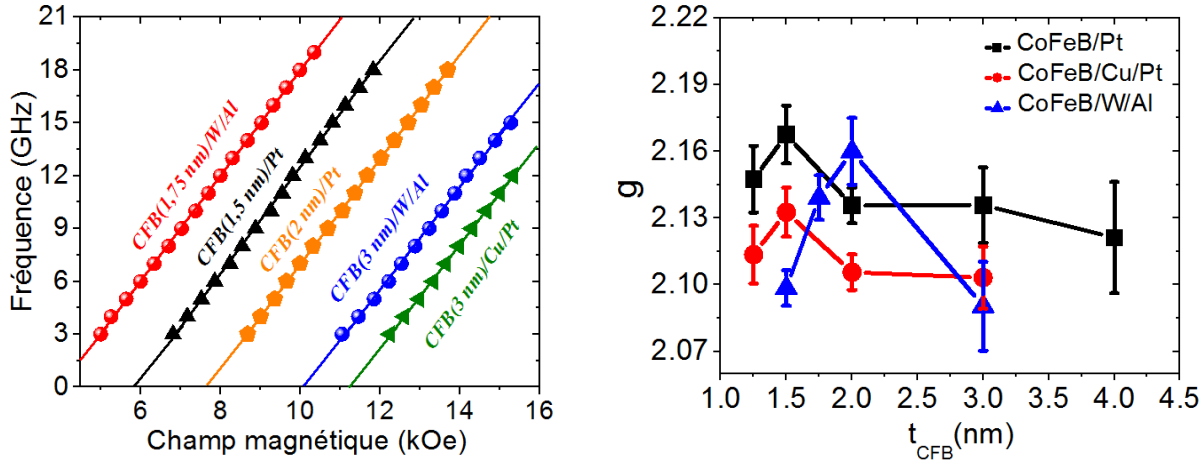

FIGURE 5.4 – A gauche : Variations de la fréquence du mode de précession uniforme en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan des échantillons à base de CoFeB/Pt, CoFeB/Cu/Pt et CoFeB/W/Al. Les symboles se rapportent aux données expérimentales et les droites sont des ajustements utilisant l'équation 2.16. A droite : facteur g en fonction des épaisseurs nominales de CoFeB pour les systèmes CoFeB/Pt (courbe en noire), CoFeB/Cu/Pt (courbe en rouge) et CoFeB/W/Al (courbe en bleue).

A partir de l'analyse des mesures FMR de la fréquence de précession du mode uniforme en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan, $\gamma/2\pi$ et par conséquent le facteur g de Landé sont déterminés, comme illustré sur la figure 5.4. A noter que pour les films de CoFeB les plus épais ($t_{CFB} > 4$ nm), $4\pi M_{eff}$ dépasse 12 kOe, ce qui est proche du champ magnétique maximal (15 kOe) qui peut être appliqué dans notre banc de mesure FMR. Par conséquent, il est impossible de réaliser des mesures dans toute la gamme de fréquences (3-20 GHz), pour lesquelles des champs magnétiques appliqués plus élevés sont nécessaires.

La figure 5.4 montre que tous les systèmes présentent une tendance similaire pour g : g augmente avec l'épaisseur de CoFeB pour les films les plus minces avant de diminuer pour $t_{CFB} > 1.5$ nm. Il faut noter la lente variation en épaisseur du facteur g pour les films épais de CoFeB (au-delà de 2 nm) et les valeurs plus élevées de g pour le système à base de CoFeB/Pt. Le facteur g, connu de dépendre de la composition, est fortement influencé par les effets de surface et d'interface, car il dépend de la symétrie locale [205]. De tels effets d'interface, dus à la symétrie d'inversion brisée à l'interface, peuvent conduire à de fortes augmentations du rapport entre le moment angulaire orbital et le moment angulaire de spin, qui gouverne le facteur g. Il n'est donc pas surprenant d'observer une dépendance de g à l'égard de l'épaisseur et une valeur plus élevée pour le système à base de CoFeB/Pt en raison de l'absence d'une couche magnétique morte.

5.3.3 Anisotropie magnétique perpendiculaire

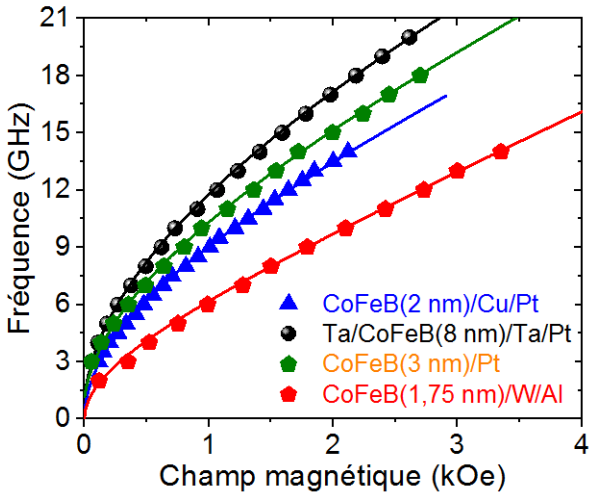

FIGURE 5.5 – Variations de la fréquence du mode de précession uniforme en fonction du champ magnétique appliqué dans le plan pour différents systèmes à base de CoFeB. Les symboles font référence aux données expérimentales et les lignes sont des ajustements utilisant l'équation 2.17.

La PMA peut être déterminée par l'étude de l'aimantation effective. Par conséquent, les fréquences du mode de précession uniforme en fonction du champ magnétique appliqué dans le plan ont été mesurées pour tous les échantillons en utilisant principalement la technique FMR, comme le montre la figure 5.5. Les valeurs de $4\pi M_{eff}$ sont obtenues à partir de l'ajustement des données expérimentales en utilisant un modèle (équation 2.17) basé sur de faibles anisotropies uniaxiales dans le plan. La figure 5.6 illustre la dépendance de $4\pi M_{eff}$ en fonction de l'inverse de l'épaisseur effective des films de CoFeB ($1/(t_{CFB}$ -t_d) = $1/t_{eff}$) pour les différents systèmes.

Une dépendance linéaire de l'aimantation effective sur toute la gamme des épaisseurs étudiées est observée pour le système de $Ta/CoFeB/Ta/Pt$, tandis que les autres systèmes montrent une déviation par rapport au comportement linéaire. Diverses origines de cette déviation fréquemment rapportée dans les films minces magnétiques ont été présentées dans la section 4.5.5. Par conséquent, nous nous intéresserons à la gamme d'épaisseur relativement importante où le comportement linéaire est observé pour toutes les structures et où l'anisotropie perpendiculaire $K_\perp$ obéit à l'équation 3.2. Les valeurs de K_s et de K_v obtenues à partir de l'ajustement linéaire de $4\pi M_{eff}$ ($1/t_{eff}$) sont résumées dans le tableau 5.2.

L'anisotropie de surface est à peu près constante pour les systèmes à base de $CoFeB/Pt$ ($K_s = 1.15 \pm 0.09$ erg.cm^{-2}), CoFeB/Cu/Pt ($K_s = 1.05 \pm 0.05$ erg.cm^{-2}) et $CoFeB/W/Al$ ($K_s = 1.1 \pm 0.05$ erg.cm^{-2}), tandis qu'elle diminue significativement pour le $Ta/CoFeB/Ta/Pt$ ($K_s = 0.39 \pm 0.02$ erg.cm^{-2}). Bien que le mécanisme exact causant cette diminution soit encore inconnu, il est probable que le SiO_2 thermiquement oxydé contribue à cette PMA d'interface et que la sous-couche de Ta découple le substrat SiO_2 et le film de CoFeB réduisant ainsi l'anisotropie d'interface, puisqu'elle améliore la rugosité du substrat. De toutes les manières, il convient de mentionner que cette constante d'anisotropie de surface est comparable à celle du $Ta/Pt/Co/AlO_x$ ($K_s = 1.1$ erg.cm^{-2}) [227] et à celle du système de $CoFeB/Pt$ où $K_s = 1.3$ erg.cm^{-2} [272].

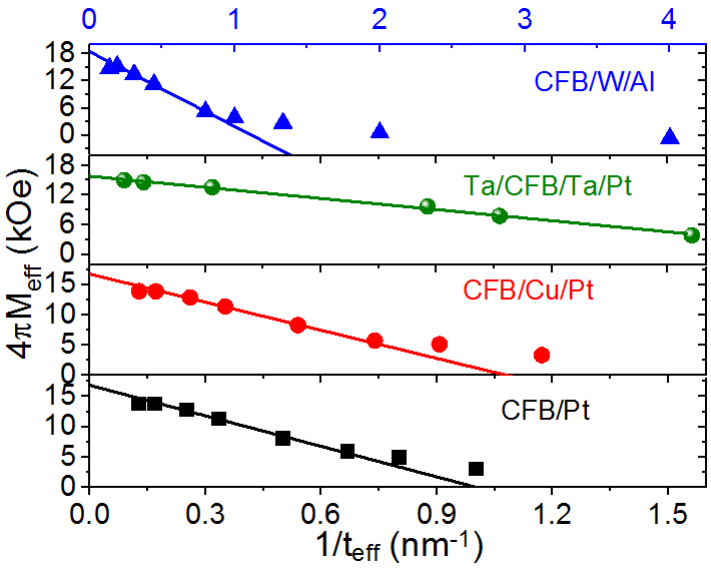

FIGURE 5.6 – Aimantation effective en fonction de l'inverse de l'épaisseur effective des films de CoFeB pour divers systèmes à base de CoFeB. Les valeurs de $4\pi M_{eff}$ ont été extraites de l'ajustement de mesures similaires de la figure 5.5. Les symboles font référence aux données expérimentales tandis que les droites sont des ajustements linéaires.

Système	K_s (erg.cm^{-2})	K_v($\times 10^6$ erg/cm^3)	α_{CFB}($\times 10^{-3}$)	$g^{\uparrow\downarrow}$ (nm^{-2})
CoFeB/Pt	1.15 ± 0.09	0.22 ± 0.012	4.2 ± 0.2	33 ± 2
CoFeB/Cu/Pt	1.05 ± 0.05	0.2 ± 0.01	4.3 ± 0.2	15.95 ± 1
CoFeB/W/Al	1.1 ± 0.05	-1.05 ± 0.1	4.1 ± 0.13	8 ± 0.7
Ta/CoFeB/Ta/Pt	0.39 ± 0.02	-1.38 ± 0.1	6 ± 0.3	14 ± 0.8

TABLE 5.2 – Paramètres obtenus à partir des meilleurs ajustements de $4\pi M_{eff}$ $(1/t_{eff})$ et de α $(1/t_{eff})$ pour des films minces de CoFeB déposés sur des substrats de Si en utilisant différentes couches de couvertures.

En contraste avec K_s, l'anisotropie de volume est négative pour les systèmes $Ta/CoFeB/Ta/Pt$ [K_v = -(1.38 ± 0.1) $\times 10^6$ erg/cm^3] et $CoFeB/W/Al$ [K_v = -(1.05 ± 0.1) $\times 10^6$ erg/cm^3]. Pour les échantillons $CoFeB/Pt$ [K_v = (0.2 ± 0.01) $\times 10^6$ erg/cm^3] et $CoFeB/Cu/Pt$ [K_v = (0.22 ± 0.012) $\times 10^6$ erg/cm^3], les valeurs de K_v sont faibles et très proches. Nous remarquons que les valeurs de K_v pour les échantillons présentant une faible couche magnétique morte ($CoFeB/Pt$ et $CoFeB/Cu/Pt$) et une plus grande t_d ($Ta/CoFeB/Ta/Pt$ et $CoFeB/W/Al$) sont différentes. Nous déduisons ainsi que l'anisotropie de volume est probablement influencée par l'interdiffusion aux interfaces, plus marqués dans les structures avec le Ta ou le W comme matériau HM.

5.3.4 Pompage de spin et amortissement de Gilbert

Par le biais de la FMR, nous avons étudié la dépendance en épaisseur de l'amortissement de Gilbert induit par pompage de spin pour tous les systèmes. En effet, dans une technique FMR, la précession de l'aimantation de la couche FM injecte un courant de spin dans la couche NM adjacente. Le courant de spin pompé est pourrait être dépolarisé à l'interface (en raison du SOC interfacial) et seule une partie du courant de spin se propage

dans la couche NM où ce courant de spin subit une dissipation partielle ou totale. Cette dissipation du courant de spin à l'interface ou/et dans le matériau NM est accompagnée d'une perte de moment cinétique dans la couche FM qui conduit à une augmentation de la constante d'amortissement de Gilbert. Comme le montre la figure 5.7, la mesure de la largeur de raie FMR (demi-largeur à mi-hauteur), permet de déduire directement l'amortissement de Gilbert à partir de la pente, où les données expérimentales sont ajustées par l'équation 2.21.

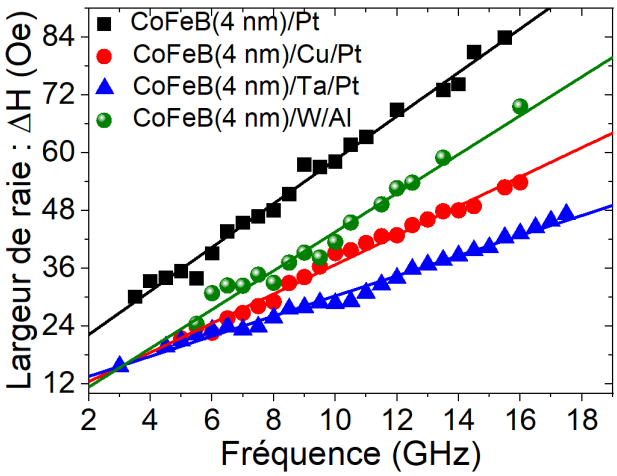

FIGURE 5.7 – Dépendance en fréquence de la demi-largeur à mi-hauteur de la raie FMR pour les systèmes à base de CoFeB d'épaisseur variable. Les symboles font référence aux données expérimentales et les droites sont des ajustements linéaires.

Les valeurs obtenues de α et leurs variations en fonction de $1/t_{eff}$ sont illustrées à la figure 5.8. Cette figure montre également une variation de la pente de α en fonction de chaque système étudié qui est due à l'effet du pompage de spin. α $(1/t_{eff})$ présente ainsi une augmentation considérable de l'amortissement de Gilbert pour les échantillons à base de $CoFeB/Pt$ par rapport aux autres systèmes. Après insertion des films de Cu et de Ta, les pentes diminuent de près de la moitié par rapport à celles des échantillons de $CoFeB/Pt$.

En effet, dans le système $CoFeB/Cu/Pt$, le courant de spin généré par la précession de l'aimantation du CoFeB doit traverser les interfaces CoFeB/Cu et Cu/Pt. En raison de la grande longueur de diffusion de spin de la couche de Cu (250 nm) [273], l'interface CoFeB/Cu n'induit pas une augmentation significative de l'amortissement car seule une partie du courant de spin peut traverser l'interface Cu/Pt et entrer dans la couche de Pt. Pour les systèmes de $Ta/CoFeB/Ta$ et $CoFeB/W$, la forte interdiffusion entre les films de CoFeB et Ta ou CoFeB et W entraîne une région d'interface relativement large et, par conséquent, l'interface peut annuler ou réduire le changement abrupt de potentiel où les électrons de conduction à travers l'interface de CoFeB/Ta ou de CoFeB/W sont moins diffusés, ce qui engendre de faibles pertes de spin à l'interface [274]. Par conséquent, deux facteurs sont essentiels pour obtenir une amélioration significative de l'amortissement : l'intensité de l'interaction spin-orbite et le gradient de potentiel à l'interface [274].

Afin de caractériser l'effet du pompage de spin, nous considérons que l'amortissement total est donné par $\alpha = \alpha_{CFB} + \alpha_{pumping}$, où α_{CFB} est la constante d'amortissement des films de CoFeB, et $\alpha_{pumping}$ est l'amortissement introduit par l'effet du pompage de spin.

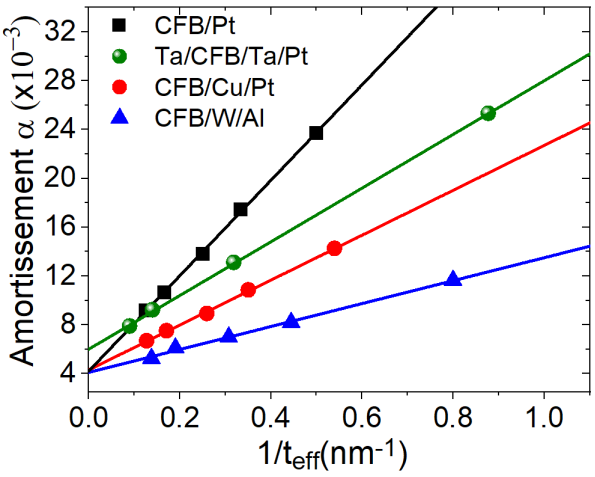

FIGURE 5.8 – Coefficient d'amortissement de Gilbert en fonction de l'inverse de l'épaisseur de CoFeB. Les symboles font référence aux données expérimentales et les droites sont les ajustements linéaires.

Ainsi, les données expérimentales de la figure 5.8 sont ajustées par l'équation 2.34 où la conductance effective par mixage de spin est extraite de la pente. Les valeurs obtenues de $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ et de α_{CFB} sont également présentées dans le tableau 5.2. Cet ajustement linéaire des données de la figure 5.8 donne $\alpha_{CFB} \approx 0.006$ pour le $Ta/CoFeB/Ta$ et 0.0042 pour les autres systèmes.

Une fois de plus, nous remarquons les caractéristiques différentes du système $Ta/CoFeB/Ta$. Son amortissement assez élevé par rapport aux autres empilements provient probablement du mélange et de l'interdiffusion du Ta dans le film de CoFeB. Pour $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$, la plus grande valeur a été mesurée pour le système à base de $CoFeB/Pt$ (33 ± 2 nm^{-2}), tandis que le $CoFeB/W/Al$ présente la valeur la plus faible (8 ± 0.7 nm^{-2}) malgré la nature HM du W. Comme mentionné précédemment, l'interface CoFeB/W relativement large due au mixage entre CoFeB et W a réduit considérablement l'efficacité du pompage de spin. En insérant le Cu et Ta entre les films de Pt et de CoFeB, $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ est égale à 15.95 ± 1 nm^{-2} et 14 ± 0.8 nm^{-2} respectivement, pour les systèmes de $CoFeB/Cu/Pt$ et $Ta/CoFeB/Ta/Pt$.

5.3.5 Interaction iDMI

Des spectres BLS, sous un champ magnétique saturant appliqué dans le plan avec un vecteur d'onde k_{sw} variable 4.1 μm$^{-1} \leq k_{sw}$ (≤ 20.45 μm^{-1}), ont été mesurés afin d'étudier l'iDMI dans ces systèmes. Les spectres typiques pour les films de CoFeB de 1.5 nm d'épaisseur avec différentes couches de couvertures sont représentés sur la figure 5.9 pour $k_{sw} = 20.45$ μm^{-1} où ils ont été ajustés par une fonction lorentzienne pour déduire ΔF. Seule la structure à base de $CoFeB/Pt$ présente une asymétrie significative entre les fréquences des raies Stokes et anti-Stokes, ce qui suggère que la constante iDMI (D_{eff}) n'est pas négligeable, contrairement aux autres systèmes où l'écart de fréquence tombe sous la barre d'erreur de notre BLS ($\pm$ 0.1 GHz). Cette fois-ci encore, malgré la brisure de symétrie d'inversion dans les structures des systèmes à base de $CoFeB/Cu/Pt$ et $CoFeB/W/Al$, il semble que le faible SOC à l'interface CoFeB/Cu et la mauvaise qualité de l'interface CoFeB/W, soient responsables de l'absence d'iDMI significative dans ces systèmes. En effet, la qualité de l'interface FM/NM doit être exempte de tout désordre, comme il a été constaté par Zimmermann et al. où l'interdiffusion aux interfaces réduisait

l'iDMI de 20 % dans le cas de l'interface Co/Pt [249]. Enfin, en raison de sa nature symétrique, on s'attend à ce que l'iDMI disparaisse dans le Ta/CoFeB/Ta/Pt puisqu'il n'y a pas de rupture de la symétrie d'inversion dans un tel système. En effet, les interfaces Ta/CoFeB et CoFeB/Ta ont un signe iDMI opposé et donc la constante iDMI totale est nulle ou indétectable.

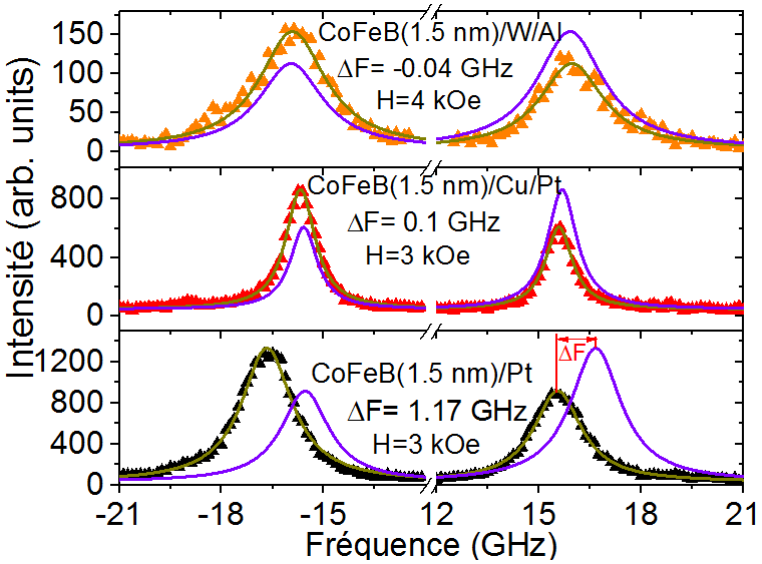

FIGURE 5.9 – Spectres BLS pour différents systèmes à base de CoFeB avec diverses sous-couches et couches de couverture, mesurés à différentes valeurs de champ magnétique appliqué dans le plan et à un vecteur d'onde $k_{sw} = 20{,}45\ \mu\text{m}^{-1}$. Les symboles font référence aux données expérimentales et les lignes sont des ajustements par des lorentziennes. Les ajustements correspondant à des champs appliqués négatifs (lignes violettes) sont présentés pour plus de clarté et pour la comparaison directe des fréquences des raies Stokes et anti-Stokes.

Les dépendances de ΔF en fonction de k_{sw} pour le système à base de CoFeB (t_{CFB})/Pt sont présentées sur la figure 5.10 (à gauche). Ces données ont été ajustées par l'équation 2.30, où D_{eff} déduite est représentée sur la même figure (5.10 à droite) en fonction de $1/t_{eff}$. Ici encore, une déviation du comportement linéaire est observée, très probablement due à la dégradation de l'interface CoFeB/Pt pour les films les plus minces. La valeur obtenue de la constante iDMI de surface ($D_{eff} = D_s/t_{eff}$) de $(1.25 \pm 0.03) \times 10^{-7}$ erg.cm^{-1} est en bon accord avec la valeur rapportée par Cho et al. [86] dans un empilement de $Pt/CoFeB/AlO_x$. Cette grande valeur est due au Pt qui induit un fort SOC à l'interface avec le film magnétique.

Revenons maintenant à l'objectif de cette étude, à savoir, la détermination de la corrélation entre les trois effets d'interface, c'est à dire entre PMA, iDMI et l'amortissement induit par pompage de spin représenté par $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$. Malheureusement, en raison de la faible (non mesurable) constante iDMI pour les empilements de $Ta/CoFeB/Ta/Pt$, $CoFeB/Cu/Pt$ et $CoFeB/W/Al$ (bien que Ta et W soient des matériaux lourd), cette corrélation ne peut pas être étudiée dans une telle combinaison de systèmes. Notons que l'iDMI est sensible aux arrangements atomiques à l'interface et dépend du degré d'hybridation entre les orbitales 3d du matériau FM et les orbitales 5d du matériau HM [247], ce qui peut expliquer la disparition d'iDMI pour certains systèmes. De plus, la variation de K_s en fonction de $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$, comme illustrée sur la figure 5.11 ne montre aucune corrélation

entre ces grandeurs pour les systèmes étudiés. En effet, tandis que $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ est déterminée par l'interface supérieur CoFeB/Pt, K_s semble contenir des contributions du substrat Si/SiO_2 puisque les échantillons de CoFeB/Pt, CoFeB/Cu/Pt et CoFeB/W/Al sont directement déposés sur SiO_2 et présentent des valeurs similaires d'anisotropie de surface. Par conséquent, la modulation de K_s, D_{eff} et de $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ en variant la sous-couche ou la couche de couverture, dans notre cas, ne semble pas être la meilleure méthode pour étudier leur corrélation puisque un seul matériau HM s'est avérée pouvoir induire l'iDMI à l'interface FM/HM. De plus, dans un tel système, faire varier la couche de couverture ou la sous-couche pourrait changer complètement les interfaces, la déformation, le degré du mélange, la rugosité, le degré d'hybridation orbitale et donc les origines et les mécanismes responsables de ces trois effets liés à l'interface et au SOC, ce qui rend difficile l'observation de toute corrélation entre ces effets.

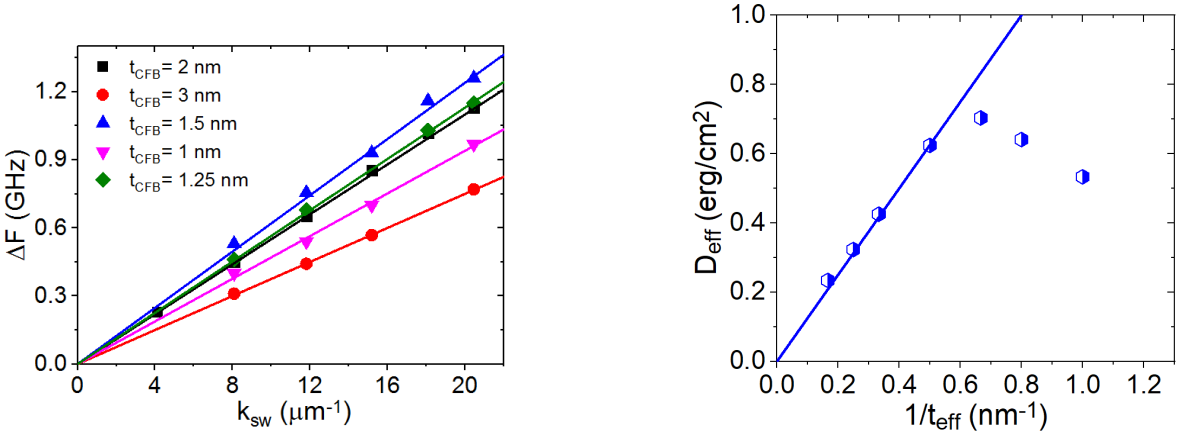

FIGURE 5.10 – A gauche : dépendance de la différence en fréquence (Stokes et anti-Stokes) ΔF des empilements de à base de CoFeB (t_{CFB})/Pt en fonction du vecteur d'onde (k_{sw}). Les symboles sont des données expérimentales mesurées par BLS et les droites sont des ajustements linéaires. A droite : dépendance de la constante effective d'iDMI (D_{eff}) du système CoFeB (t_{CFB})/Pt en fonction de l'inverse de l'épaisseur effective des films de CoFeB ($1/t_{eff}$). La droite fait référence à l'ajustement linéaire.

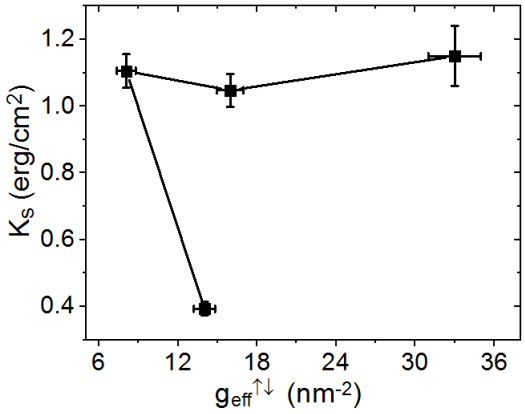

FIGURE 5.11 – Variation de la constante d'anisotropie perpendiculaire de surface (K_s) en fonction de la conductance effective par mixage de spin ($g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$). La ligne est utilisée comme guide pour les yeux.

Nous avons donc déposé des échantillons à base de $Ta/CoFeB/Pt$ afin d'étudier la corrélation entre ces trois effets SOC d'interface, en introduisant une couche de Cu, de Ta et de MgO entre les films de CoFeB et Pt. Nous avons ainsi fixé l'épaisseur des films de CoFeB tout en variant l'épaisseur des matériaux NM (Cu, Ta et MgO) afin d'étudier directement leurs effets sur l'iDMI, l'anisotropie perpendiculaire et l'amortissement induit par pompage de spin. La suite de ce chapitre sera consacrée à cette investigation.

5.4 Effet de la couche intercalaire

Comme nous l'avons déjà mentionné, pour la deuxième catégorie d'empilement, l'épaisseur du film de CoFeB à été fixée à 1.5 nm et une couche intercalaire X= Ta, Cu ou MgO, d'épaisseur variable, a été introduite entre les couches de CoFeB et Pt, dans la structure de $Ta/CoFeB/X/Pt$. L'interface CoFeB/Pt a été utilisée en raison de sa valeur élevée du SOC, où les constantes de PMA, iDMI et la conductance par mixage de spin sont parmi les meilleures valeurs mesurées.

Trois types de couches d'espacement ont été étudiés : métal léger (Cu), métal lourd (Ta) et oxyde (MgO). Dans ces systèmes, la contribution de l'interface inférieure avec le CoFeB (Ta/CoFeB) à l'iDMI, à l'amortissement et à la PMA est fixe et tout changement dans ces grandeurs résultera très probablement de la contribution de l'interface supérieure avec CoFeB : c'est à dire CoFeB/couche intercalaire/Pt. Par conséquent, l'origine de ces grandeurs pourrait être plus corrélée. Nous pensons donc que la modulation de ces trois effets liés au SOC par l'insertion d'une couche d'espacement entre Pt et CoFeB reste une méthode puissante pour étudier leur corrélation puisqu'elle simplifie leurs origines, en particulier pour la PMA, où les deux interfaces pourraient contribuer et pourraient changer en faisant varier l'épaisseur du CoFeB. De plus, outre l'utilisation du même système, cette procédure offre la possibilité de définir le nombre de plans atomiques d'interface impliqués dans ces trois interactions.

5.4.1 Propriétés statiques

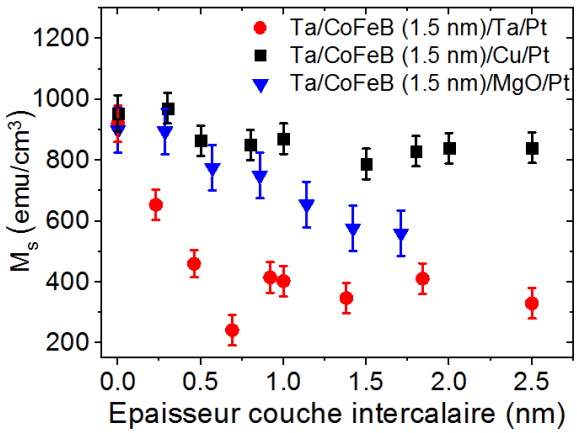

FIGURE 5.12 – Variations de l'aimantation à saturation (M_s) en fonction de l'épaisseur de la couche intercalaire pour les systèmes Ta/CoFeB (1.5 nm)/Ta (t_{Ta})/Pt, Ta/CoFeB (1.5 nm)/Cu (t_{Cu})/Pt et Ta/CoFeB (1.5 nm)/MgO (t_{MgO})/Pt. Les lignes sont utilisées comme guide des yeux.

L'aimantation à saturation a été mesurée par VSM pour les trois systèmes et elle est représentée sur la figure 5.12 en fonction de l'épaisseur de la couche d'espacement. Il est à noter qu'il s'agit d'une valeur nominale qui a été calculée en divisant le moment magnétique par le volume nominal du film de CoFeB. Nous remarquons la faible diminution du M_s avec l'augmentation de l'épaisseur du Cu par rapport aux autres couches intercalaires, Ta et MgO, probablement due à des moindres mélange et interdiffusion à l'interface CoFeB/Cu et à la diminution du PIM à l'interface Pt/CoFeB causée par l'insertion du film de Cu.

La diminution significative, dans le cas des couches intercalaires de Ta et MgO, est très probablement due à l'augmentation du mixage ou de l'oxydation (pour le film de MgO) dans le cas des plus grandes épaisseurs de Ta ou de MgO. Par exemple, M_s diminue de manière significative pour les épaisseurs de Ta jusqu'à 1 nm et reste à peu près constante au-delà de cette épaisseur.

5.5 Propriétés dynamiques

La BLS a été principalement utilisée pour cette deuxième partie, où les spectres ont été mesurés à un vecteur d'onde k_{sw}= 4.1 μm^{-1} et sous des champs magnétiques variables appliqués dans le plan, puis ajustés avec une lorentzienne pour extraire les fréquences et les largeurs de raie à mi-hauteur (δF) pour les raies Stokes et anti-Stokes. Pour annuler la contribution iDMI, les valeurs moyennes des fréquences et δF des lignes S et aS ont été considérées. Leurs dépendances en champ magnétique ont ensuite été ajustées à l'aide des équations 2.31 et 2.32, pour obtenir $4\pi M_{eff}$ et l'amortissement de Gilbert α, respectivement.

Les variations de M_{eff} en fonction de l'épaisseur de la couche intercalaire sont présentées sur la figure 5.13. Une tendance de M_{eff} opposé par rapport aux autres couches intercalaires est observée pour le Cu. L'aimantation effective augmente (diminue) avec l'augmentation de l'épaisseur de Cu (Ta), suggérant une diminution (augmentation) du champ d'anisotropie effectif perpendiculaire. La dépendance de M_{eff} en fonction de l'épaisseur du film de MgO, dans les structures $Ta/CoFeB/MgO(t_{MgO})/Pt$, montre une tendance différente : elle augmente significativement pour les épaisseurs de MgO les plus minces avant de diminuer pour les couches les plus épaisses. Nous concluons que puisque M_s dépend de l'épaisseur de la couche intercalaire, il faut prendre en considération la valeur de M_s pour chaque épaisseur de cette couche afin d'éviter toute conclusion inadéquate. Par conséquent, pour une analyse plus approfondie des mesures, la constante effective de la PMA ($K_{eff} = K_\perp$) a été déduite à partir de $4\pi M_{eff}$ à l'aide du M_s mesurée antérieurement et sera discutée dans la suite de cette partie.

Pour l'amortissement de Gilbert, nous avons considéré une augmentation de l'amortissement total par la quantité $\alpha_{pumping} = \frac{g\mu_b}{4\pi M_s t_{CFB}} g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ (où l'épaisseur fixe de CoFeB est égale à t_{CFB} =1.5 nm) traduisant la contribution du pompage de spin. Par conséquent, en utilisant les valeurs d'amortissement de Gilbert pour le CoFeB massif (α_{CFB}) obtenues à partir de la dépendance de α en fonction de l'épaisseur de CoFeB (voir partie précédente tableau 5.2), $\alpha_{pumping}$ et donc $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ ont été déduits. Pour l'iDMI, ΔF a été mesurée en fonction de k_{sw} afin d'extraire les valeurs de D_{eff}. Enfin, comme $\alpha_{pumping}$, ΔF et M_{eff} dépendent de M_s et en raison de la variation de cette dernière avec l'épaisseur des couches intercalaires, il est alors plus pratique de considérer K_{eff}, D_{eff} et $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ pour étudier la PMA, l'iDMI et l'amortissement induit par pompage de spin.

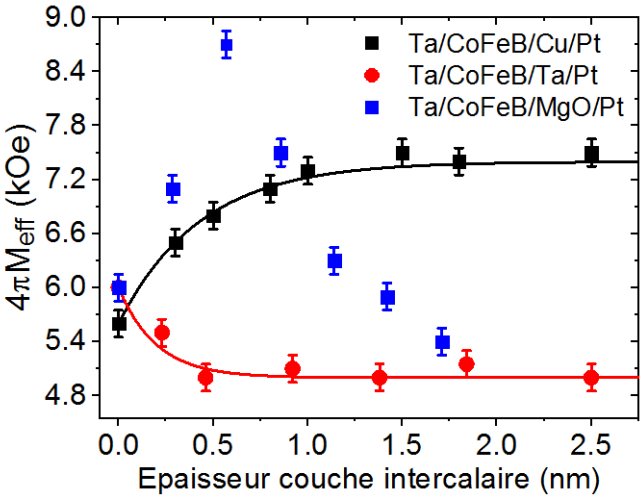

FIGURE 5.13 – Variations de l'aimantation effective (M_{eff}) en fonction de l'épaisseur de la couche intercalaire pour les systèmes $Ta/CoFeB(1.5\,\mathrm{nm})/Ta(t_{Ta})/Pt$, $Ta/CoFeB(1.5\,\mathrm{nm})/Cu(t_{Cu})/Pt$ et $Ta/CoFeB(1.5\,\mathrm{nm})/MgO(t_{MgO})/Pt$. Les lignes sont utilisées comme guide des yeux.

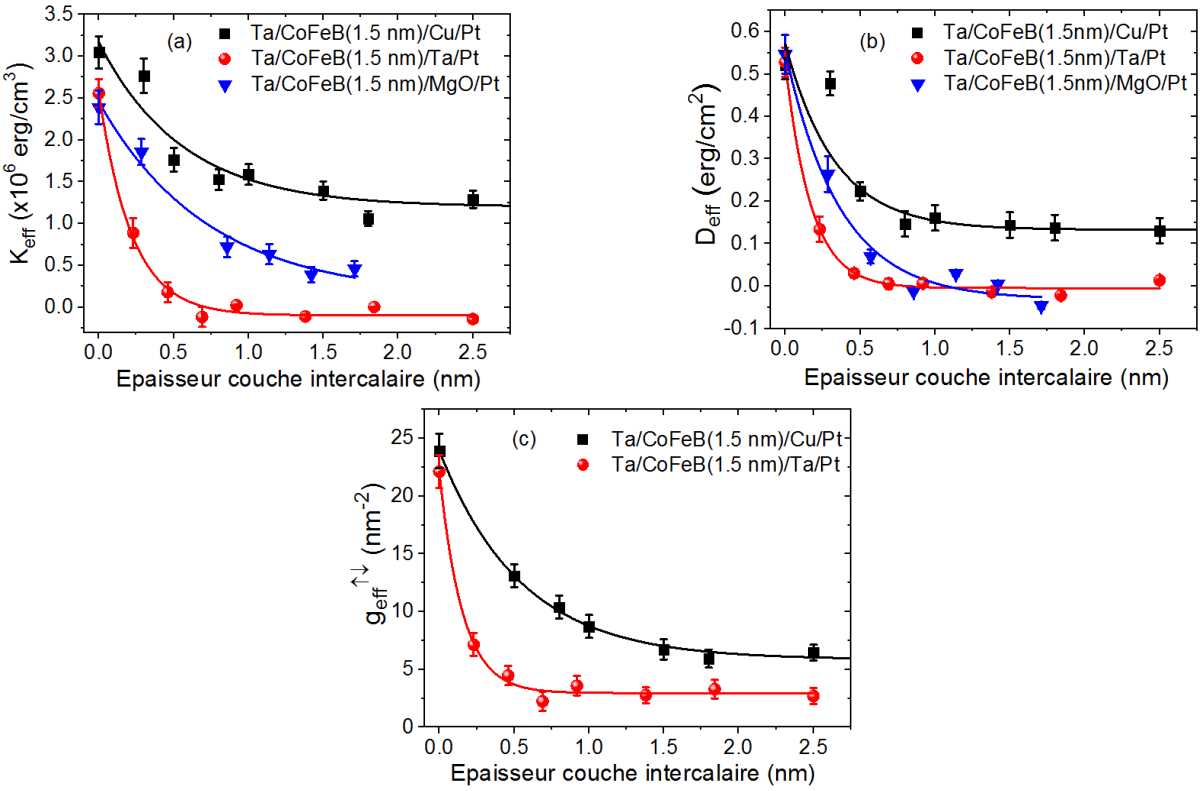

FIGURE 5.14 – Variations (a) de la constante effective d'anisotropie perpendiculaire K_{eff}, (b) de la constante effective d'iDMI (D_{eff}) et (c) de la conductance effective par mixage de spin $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ en fonction de l'épaisseur des couches intercalaires pour les systèmes $Ta/CoFeB(1.5\,\mathrm{nm})/Ta(t_{Ta})/Pt$, $Ta/CoFeB(1.5\,\mathrm{nm})/Cu(t_{Cu})/Pt$ et $Ta/CoFeB(1.5\,\mathrm{nm})/MgO(t_{MgO})/Pt$. Les symboles font référence aux données expérimentales et les lignes sont des ajustements avec une fonction exponentielle décroissante.

Les dépendances de K_{eff}, D_{eff} et $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ en fonction des épaisseurs des couches intercalaires sont illustrées dans la figure 5.14. Ces courbes montrent la même tendance : K_{eff}, D_{eff} et $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ diminuent avec l'augmentation de l'épaisseur de la couche intercalaire pour les trois structures, avant d'atteindre un plateau (une saturation) suggérant que ces effets proviennent principalement de l'interface CoFeB/Pt. En effet, seuls les atomes de Pt placés à proximité immédiate des atomes de CoFeB peuvent interagir ensembles et il est bien entendu que lorsque les atomes de Pt sont éloignés de l'interface par l'introduction de la couche intercalaire, l'interaction est alors assurée par les atomes de ces couches intercalaires, conduisant ainsi à des valeurs de K_{eff}, D_{eff} et $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ plus faibles par rapport à celles induites par l'interface CoFeB/Pt, comme le montre la figure 5.14. De plus, lorsque l'épaisseur de la couche d'espacement augmente, l'interdiffusion (le mixage), le degré d'hybridation et donc le SOC de l'interface changent. Par conséquent, les constantes K_{eff}, D_{eff} et $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ sont affectées en fonction de leur degré de dépendance en fonction de ces facteurs. Il est en effet bien connu, que la PMA est proportionnelle au carré de l'intensité du SOC [275], alors que l'iDMI est proportionnelle [276] au SOC.

Pour l'anisotropie perpendiculaire, la figure 5.14 illustre une lente variation de K_{eff} pour les couches intercalaires les plus épaisses. Pour ces épaisseurs intercalaires plus importantes, les valeurs de K_{eff} donnent une estimation de la constante d'anisotropie pour les systèmes $Ta/CoFeB/Ta$, $Ta/CoFeB/Cu$ et $Ta/CoFeB/MgO$. Nous remarquons que K_{eff} est significativement affectée par l'interface supérieure, puisque l'interface inférieure Ta/CoFeB est la même pour les trois systèmes. Ainsi, la différence entre les valeurs de K_{eff} pour les grandes épaisseurs des couches intercalaires donne K_{eff} introduite par les couches de Cu, Ta ou de MgO. La valeur la plus élevée de K_{eff} est obtenue pour CoFeB/Cu tandis que l'interface CoFeB/Ta montre un K_{eff} qui s'affaiblit pour les couches épaisses de Ta.

Dans le cas de l'iDMI, D_{eff} disparaît pour les couches épaisses de Ta et MgO alors qu'elle s'approche à 0.1 $\pm$ 0.02 erg.cm^{-2} pour $Ta/CoFeB/Cu/Pt$, comme le montre la figure 5.14. Cette valeur correspond probablement à la constante iDMI de l'interface Ta/CoFeB(1.5 nm) si l'on considère que la couche de Cu est suffisamment épaisse pour faire écran à la contribution du Pt à l'iDMI. Cependant, cette valeur est légèrement supérieure à celle rapportée par Lo Conte et al. (0.06 erg.cm^{-2}) [277], ce qui suggère que la couche de Cu de 2.5 nm d'épaisseur ne supprime probablement pas complètement la contribution du Pt à l'iDMI. Les interfaces Pt/CoFeB et Ta/CoFeB ont des signes opposés d'iDMI. En raison de la plus forte iDMI du CoFeB/Pt, toute contribution de l'interface CoFeB/Pt sera ajoutée à celle du Ta/CoFeB, augmentant ainsi l'iDMI totale. La valeur nulle de D_{eff} dans Ta/CoFeB/Ta/Pt pour le Ta le plus épais est compatible avec l'empilement symétrique et la nature asymétrique de l'iDMI, confirmant que la contribution du Pt à l'iDMI est complètement masquée par la couche de couverture du Ta.

Pour Ta/CoFeB/MgO/Pt, le comportement de D_{eff} en fonction de l'épaisseur du MgO révèle que D_{eff} s'annule ou elle est même négative pour des épaisseurs de MgO supérieures à 1 nm. Par conséquent, il semble que la contribution du MgO à l'iDMI soit similaire ou légèrement supérieure à celle de la couche inférieure de Ta mais de signe opposé : $D_{eff} > 0$ pour Ta/CoFB et $D_{eff} < 0$ pour CoFeB/MgO. Ce résultat est en bon accord avec la conclusion faite par Boulle et al. [137] qui ont montré par calculs pour Pt(111)/Co(3 ml)/MgO, qu'une iDMI significative est également présente à l'interface Co/O avec le même signe que celui de l'interface Pt/Co.

La conductance par mixage de spin en fonction des épaisseurs des couches intercalaires montre une décroissance rapide de $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ avant d'atteindre un plateau pour les épaisseurs

supérieures à 1.5 nm, dans le cas du Cu et à partir de 0.9 nm pour le Ta. $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ est aux alentours de 6.5 nm^{-2} pour les couches de Cu les plus épaisses dans le système $Ta/CoFeB/Cu/Pt$ tandis que pour les couches épaisses de Ta, $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ atteint quelques 3 nm^{-2}. Une fois de plus, nous pensons que la contribution de la couche de Pt n'est pas complètement éliminée par l'insertion du Cu, tandis que dans le cas du Ta, quelques nanomètre suffisent. Ceci expliquerait la décroissance plus rapide de $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ observée pour le système $Ta/CoFeB/Ta/Pt$ par rapport au $Ta/CoFeB/Cu/Pt$.

La figure 5.14 révèle également que les épaisseurs caractéristiques des décroissances de K_{eff}, D_{eff} et $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ dépendent à la fois de la nature de la couche intercalaire et de ces propriétés physiques. Nous avons alors ajusté de manière phénoménologique les données expérimentales des courbes de la figure 5.14 avec une fonction de décroissance exponentielle :

$$y(t) = A_0 + A_1 e^{-\frac{t_{espacement}}{\lambda}} \tag{5.1}$$

où A_0 et A_1 sont les paramètres d'ajustement pour comparer quantitativement les différents comportements et λ est l'épaisseur de décroissance caractéristique.

Les valeurs obtenues de λ pour chaque système et pour les trois constantes effectives sont résumées dans le tableau 5.3. Nous avons constaté que le Ta a fortement atténué ces grandeurs alors qu'elles sont modérément affectées par les couches de Cu et de MgO. Les plus petites épaisseurs caractéristiques de décroissance pour Ta sont probablement dues au fait que les spins diffusent davantage dans le Cu (en raison de sa grande longueur de diffusion des spins) et atteignent le Pt, contrairement au Ta qui raccourcit la longueur de diffusion des spins puisqu'il s'agit d'un métal lourd. En outre, le tableau 5.3 a révélé que, bien que les trois épaisseurs caractéristiques de décroissance pour une couche de couverture donnée soient comparables, il semble que l'iDMI soit légèrement plus localisée au niveau de la première ou des deux monocouches atomiques.

	Epaisseur caractéristique de décroissance λ (nm) pour :		
Couche intercalaire	K_{eff}	D_{eff}	$g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$
Ta	0.22 ± 0.02	0.16 ± 0.04	0.16 ± 0.02
Cu	0.56 ± 0.16	0.33 ± 0.08	0.52 ± 0.05
MgO	0.73 ± 0.2	0.6 ± 0.12	

TABLE 5.3 – Epaisseurs caractéristiques de décroissance déduites de l'ajustement des données expérimentales de la figure 5.14 par une fonction exponentielle décroissante.

Pour une analyse détaillée des données de la figure 5.14 et pour mettre en évidence toute corrélation entre les trois types d'interfaces et les effets reliés au SOC, nous avons tracé K_{eff} et $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ en fonction de D_{eff} comme le montre la figure 5.15 pour les trois couches intercalaires où des dépendances linéaires peuvent être observées entre ces trois effets SOC. L'étude de la corrélation entre ces trois termes d'énergie a de plus en plus attiré l'attention des chercheurs ces dernières années, tout en entrainant d'importantes contradictions. Cette recherche de corrélation s'est concentrée sur deux quantités à la fois et a impliqué la variation de divers paramètres de l'échantillon comme la température de recuit, l'épaisseur du film ferromagnétique, les épaisseurs des couches de couverture ou des sous-couches, etc. En effet, une corrélation non linéaire entre l'iDMI et la conductance par mixage de spin, attribuée aux processus de retournement de spin entre les états 3d et 5d, a été rapportée par Ma et al. [247] dans les systèmes X/Co/MgO et X/CoFeB/MgO, où X = Ta, W, Ir et Pt). De même, Zhu et al. [216] ont rapporté que la conductance par mixage

de spin varie approximativement comme le carré de la densité d'énergie d'anisotropie magnétique aux interfaces Pt/FM (où le FM = Co, CoFeB, Py) en raison de la contribution dominante de la diffusion à deux magnons à l'amortissement. D'autre part, aucune corrélation n'a été trouvée entre la PMA et α dans les multicouches de $Co_{90}Fe_{10}/Ni$ [278] alors qu'une relation linéaire entre ces quantités a été mise en évidence dans l'interface de Co/Pd [255], probablement due de l'hybridation d-d à l'interface. Pour la PMA et l'iDMI, Kim et al. [266] ont trouvé une corrélation différente entre K_s et D_{eff} dans Pt/Co/MgO et Pt/Co/Cu, mais en se basant sur la contribution individuelle des énergies magnétiques interfaciales à chaque interface, ils ont montré que la corrélation dépendait de l'interface. Ils ont notamment trouvé une corrélation positive pour l'interface Pt/Co et aucune corrélation significative entre K_s et D_{eff} pour l'interface Co/MgO, ceci suggère qu'à l'interface FM/Oxide, l'iDMI et la PMA sont d'origine différente, alors qu'elles partagent la même origine microscopique à l'interface HM/FM. De plus, une corrélation linéaire entre K_s et D_{eff} a été rapportée dans le système Pt/Co/AlO_x à partir de l'étude de la dépendance de ces deux quantités en fonction de l'épaisseur du Pt [279]. Il a été également démontré, en faisant varier l'épaisseur du W dans W/CoFeB/MgO, une relation linéaire entre K_s et D_{eff} [280].

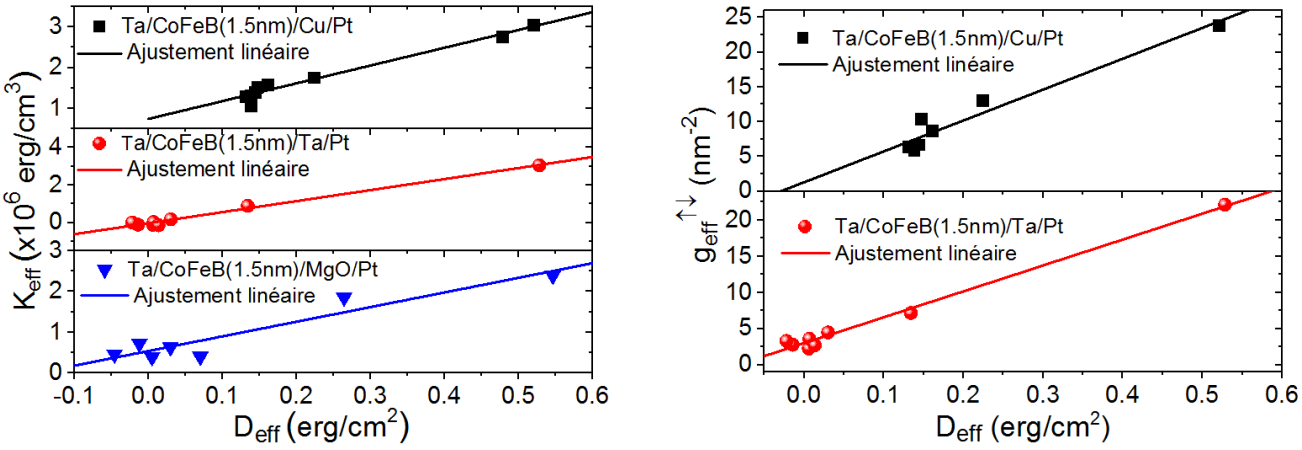

FIGURE 5.15 – Variations de la constante effective d'anisotropie perpendiculaire (à gauche) et de la conductance effective par mixage de spin (à droite) en fonction de la constante effective iDMI (D_{eff}) pour les empilements $Ta/CoFeB(1.5\,\text{nm})/Ta/Pt$, $Ta/CoFeB(1.5\,\text{nm})/Cu/Pt$ et $Ta/CoFeB(1.5\,\text{nm})/MgO/Pt$. Les symboles font référence aux données expérimentales et les droites sont des ajustements linéaires.

Revenons maintenant à la figure 5.15. Celle-ci révèle que l'intercepte vertical, lors de l'extrapolation de D_{eff} à zéro, dépend du système étudié et qu'il faut prendre en considération l'ensemble de l'empilement de chaque structure pour identifier son origine. A noter que dans le cas de K_{eff} et $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$, les contributions des deux interfaces avec le CoFeB doivent s'ajouter, alors que pour D_{eff} et en raison de la nature asymétrique de l'interaction iDMI, la contribution des deux interfaces peut s'annuler mutuellement, ce qui peut rendre l'iDMI infiniment faible (pour un système symétrique). Par conséquent, comme nous l'avons déjà mentionné, K_{eff} et $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ à l'origine (figure 5.15), sont liées à la contribution des interfaces supérieures. Les pentes des dépendances linéaires de K_{eff} en fonction de D_{eff} varient légèrement avec le type de couche de couverture : la valeur la plus élevée (5.8 nm^{-1}) a été obtenue pour Ta, tandis que des pentes plus faibles de 4.3 nm^{-1} et 3.6 nm^{-1} ont été déduites pour Cu et MgO, respectivement. Ces résultats

impliquent que l'origine principale de cette corrélation est liée à l'interface CoFeB/Pt qui est différemment affectée par la couche intercalaire.

Pour $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ (D_{eff}), le comportement des pentes est différent par rapport à ce qui a été déduit pour l'anisotropie effective. La pente en présence du Cu comme couche intercalaire est plus élevée que celle avec Ta, probablement due à la plus grande efficacité du pompage de spin à l'interface avec le Cu par rapport à celui avec Ta. Ceci est en bon accord avec la valeur de $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ à l'origine (lorsque $D_{eff} = 0$) pour Ta par rapport au Cu. La corrélation observée nous permet de conclure que l'iDMI, l'amortissement induit par pompage de spin et la PMA à l'interface supérieure proviennent du SOC induit par le matériau HM. Par conséquent, cette corrélation linéaire entre K_{eff}, D_{eff} et $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$, observée dans nos échantillons, suggère que la PMA, l'iDMI et l'amortissement magnétique impliquent les mêmes hybridations orbitales d'interface. Cependant, une relation quadratique entre la PMA et l'iDMI a est prédite par les théories de perturbation pour la PMA [275] et l'iDMI [276], puisque l'énergie de l'iDMI résulte du premier ordre du SOC, tandis que la PMA provient du second ordre, comme indiqué par Kim et al. [279]. De plus, la dépendance linéaire a été attribuée au fait que la variation de la PMA et/ou de l'iDMI n'est pas assez importante pour observer la dépendance quadratique [279]. Par conséquent, la gamme de variation de ces quantités permet seulement une forte corrélation linéaire entre les trois quantités physiques. Nos résultats établissent également une telle corrélation entre les trois quantités liées au SOC.

5.6 Conclusion chapitre

La dépendance en épaisseur de la PMA, de la constante iDMI et de l'amortissement de Gilbert des systèmes à base de CoFeB avec différentes sous-couches et couches de couverture a été étudiée en combinant les techniques VSM, BLS et FMR. En faisant varier l'épaisseur du film CoFeB pour chaque système, une forte iDMI a été mesurée pour le système à base de $CoFeB/Pt$, tandis qu'aucune iDMI significative n'a été détectée pour $CoFeB/Cu/Pt$, $Ta/CoFeB/Ta$ et $CoFeB/W/Al$. De plus, la constante PMA d'interface diffère légèrement pour $CoFeB/Pt$, $CoFeB/Cu/Pt$ et $CoFeB/W/Al$ et diminue significativement pour $Ta/CoFeB/Ta$. Par conséquent, l'étude de la corrélation entre PMA, iDMI et la constante d'amortissement n'a pas été possible, probablement en raison de la contribution supplémentaire de l'interface inférieure à la PMA et des différentes interfaces supérieures avec CoFeB. Par conséquent, différents mécanismes étaient impliqués dans la PMA, l'iDMI et l'amortissement, ce qui a rendu, toute corrélation difficile à déduire.

Cependant, en utilisant un système à base de Ta/CoFeB (1.5 nm)/Y/Pt, où plusieurs matériaux Y de couches intercalaires d'épaisseurs variables, insérés entre le Pt et CoFeB, une corrélation linéaire entre K_{eff}, D_{eff} et $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ a pu être mise en évidence. Cette dépendance linéaire qui peut résulter de l'étroite gamme de variation de la PMA et/ou de l'iDMI, est attribuée aux hybridations orbitales d'interface similaires impliquées dans la PMA, l'iDMI et l'amortissement induit par pompage de spin. Nous pensons donc que la modulation de ces trois effets d'interface liés au SOC par l'insertion d'une couche intercalaire entre le matériau HM et la couche ferromagnétique reste une méthode efficace pour étudier la corrélation entre ces effets. En effet, cette méthode simplifie leurs origines, particulièrement pour la PMA, où les deux interfaces pourraient contribuer et pourraient changer quand on fait varier l'épaisseur de la couche ferromagnétique.

Chapitre 6

Investigation des effets SOC d'interface dans les systèmes à base de matériaux ferromagnétique/oxyde de métal

Ce chapitre présente l'étude de la PMA, l'amortissement magnétique et l'iDMI, en fonction des épaisseurs des matériaux ferromagnétiques (Co ou $Co_8Fe_{72}B_{20}$), oxyde de métal (MO_x) (TaO_x ou PtO_x) et du recuit, dans les systèmes à base d'interface FM/MO_x. L'objectif de cette investigation est de démontrer l'effet de la présence d'oxygène (degré d'oxydation) sur les phénomènes SOC cités précédemment, particulièrement sur l'iDMI grâce à l'effet Rashba. Nous investiguons également une corrélation entre ces phénomènes.

6.1 Introduction

La découverte de la magnétorésistance géante (GMR) [1, 2] a conduit au développement de la spintronique, où les études dans ce domaine ont donné lieu à plusieurs avancées importantes. Avec la réduction de l'échelle des transistors CMOS, le besoin d'alternatives viables pour réduire les fuites d'énergie est devenu de plus en plus important. Les dispositifs à base de spin apparaissent comme l'une des approches les plus prometteuses pour résoudre ce problème. La jonction MTJs joue un rôle majeur dans le développement de la spintronique [55]. Elle présente une excellente scalabilité, une faible consommation d'énergie et une conservation d'information potentiellement longue sur la durée, particulièrement pour les dispositifs à anisotropie perpendiculaire. Les MTJs conviennent à plusieurs applications notamment dans le domaine de traitement et de stockage de données tels que les mémoires magnétiques et les convertisseurs analogiques-numériques par exemple [226]. En effet les mémoires non volatiles à base de MTJs "les MRAMs", ont montré des performances supérieures, en ce qui concerne de nombreuses caractéristiques pertinentes, telles que la consommation d'énergie. Ces mémoires telles que les STT-MRAMs, permettent un temps de rétention des données de dix ans et fonctionnent à des niveaux d'énergie extrêmement faibles [58].

Récemment, des progrès importants ont été réalisés dans la recherche sur les MTJs où l'on s'attend à ce que les MRAMs se transforment en produits commerciaux à grande échelle dans un avenir très proche. Historiquement, les premières MTJs étaient composées de deux couches ferromagnétiques séparées par une barrière tunnel tel que le AlO_x [48]. En remplaçant ce matériau amorphe par le MgO monocristallin, des taux TMR

très prometteurs pour des applications en MRAM et pouvant atteindre jusqu'à 1000% ont été prédits théoriquement [50] et vérifiés expérimentalement [51]. Cependant, l'intérêt pour les MRAM n'a augmenté de manière significative qu'après l'observation du renversement induit par le couple de transfert de spin (STT) dans les multicouhes à base de $(Co/Cu)_N$ [281], longtemps après la prédiction théorique de Slonczewski [29]. De plus, le développement des MTJs a connu une importante évolution que lorsque des matériaux à anisotropie perpendiculaire ont été utilisés dans les STT-MRAMs. En effet, la STT-MRAM avec PMA a une meilleure scalabilité par rapport à la STT-MRAM avec anisotropie dans le plan en termes de faible densité de courant critique de retournement en plus d'une stabilité thermique plus élevée [58].

En 2010, des calculs effectués par Shimabukuro et al. [282] ont prédit que l'hybridation des orbitales Fe-3d et O-2p pouvait introduire la PMA dans un système de MgO/Fe/MgO. La même année, Ikeda et al. [283] ont démontré la PMA dans des dispositifs MTJs à base de CoFeB-MgO. En effet, l'axe facile aimantation d'une couche de CoFeB est dans le plan pour des épaisseurs relativement importantes (plus de 1.5 nm environ) alors qu'il est orienté dans la direction hors du plan pour de plus faibles épaisseurs. Ainsi, la densité d'énergie du PMA du système CoFeB-MgO augmente avec la réduction de l'épaisseur du CoFeB. Cette densité de PMA obtenue pourrait supporter une taille de cellule mémoire aussi petite que 40 nm avec une stabilité thermique de 10 ans [283]. Ce système de CoFeB-MgO à anisotropie perpendiculaire combine ainsi une stabilité thermique suffisante, un faible courant de retournement et un signal TMR relativement élevé. Le fait de disposer de ces caractéristiques en même temps a constitué une véritable percée pour les STT-MRAMs.

Outre le facteur d'épaisseur de CoFeB, la PMA d'un système CoFeB-MgO dépend également des structures d'empilement et des conditions de dépôt et de traitement. En effet, Worledge et al. [284] ont trouvé qu'une sous-couche de Ta est essentielle pour obtenir de la PMA dans ce type de système. Ils ont notamment observé que les structures à base de sous-couche de Ru n'étaient pas favorables à l'obtention de PMA, malgré la même gamme d'épaisseur de CoFeB. Enfin, Meng et al.[130] ont montré que le processus de recuit est également une étape critique pour augmenter la PMA et doit être optimisé afin d'obtenir simultanément un bon taux TMR et un faible courant critique de retournement.

Toutes ces études montrent que les interfaces matériau ferromagnétique/oxyde de métal, en particulier l'interface CoFeB/MO_x (tels que TaO_x, HfO_x etc) sont au cœur des dispositifs spintroniques et pourraient être utilisées pour le développement des MTJs à anisotropie perpendiculaire dans les cellules STT-MRAMs. [231].

De récentes expériences ont aussi démontré que des couches minces ferromagnétiques avec PMA et une iDMI suffisamment grande favorisent des parois de domaines de type Néel avec une chiralité fixe. La combinaison de telles structures de parois de domaine chirales avec le couple spin-orbite permet un mouvement rapide de la paroi du domaine induit par un courant [285], où la chiralité et la vitesse de la paroi du domaine dépendent de l'amplitude de l'iDMI [286]. Par conséquent, il est nécessaire de comprendre comment contrôler le signe et l'amplitude de l'iDMI pour la conception des mémoires magnétiques des prochaines générations basées sur les parois de domaine et les skyrmions [138].

A ce jour, la plupart des travaux expérimentaux sur l'iDMI se sont limités aux interfaces FM/HM, où des métaux lourds tels que Pt, Ir et Ta sont utilisés pour induire l'iDMI [247]. L'utilisation de ces matériaux est également connue pour augmenter le coefficient d'amortissement α en raison du pompage de spin [216]. Il a été montré que la mobilité des parois de domaine, qui varie en fonction de $1/\alpha^2$, peut être considérablement amélio-

rée pour de faibles valeurs d'amortissement [287]. De plus, un amortissement important engendre une faible efficacité énergétique. Par conséquent, le maintien d'un faible amortissement est crucial pour le fonctionnement des dispositifs basés sur le mouvement des parois de domaine. Les interfaces FM/oxyde réduit significativement la contribution du pompage de spin à l'amortissement et sont donc une alternative potentielle aux métaux lourds. Enfin, sachant que l'iDMI attribuée à l'effet Rashba, pourrait exister également aux interfaces FM/oxyde (voir section 1.4.2.1), il serait fortement important de comprendre les mécanismes physiques, en particulier l'effet du taux d'oxygène et du recuit combinés avec différents types d'oxydes métalliques sur l'amplitude et le signe de l'iDMI.

Les interfaces FM/oxyde permettraient alors de disposer à la fois d'une forte PMA, d'un faible amortissement et et d'une iDMI modulable, ce qui rend ce type d'interface fortement intéressant pour les scientifiques.

6.2 Préparation des échantillons

Les échantillons étudiés dans cette dernière partie on été élaborés au laboratoire Spintec, université de Grenoble-Alpes, par le Dr. Hélène Béa et son équipe,via une collaboration avec LSPM.

Deux catégories d'échantillons ont été déposées, et sont classées en fonction de l'oxyde de métal utilisé, à savoir des échantillons à base de TaO_x et ceux à base de PtO_x. Ce choix de deux différents oxydes des métaux s'appuie sur la volonté d'étudier leurs effets sur les phénomènes SOC d'interface.

Les échantillons se classent ainsi en plusieurs séries comme suit (figure 6.1) :

- Si/SiO_2//Ta (3 nm)/CoFeB (t_{CFB})/TaO_x (0.8 nm)/ Al (0.5 nm) et Si/SiO_2//Ta (3 nm)/CoFeB (1.15 nm)/TaO_x (t_{Ta})/ Al (0.5 nm), où les épaisseurs des films de CoFeB (t_{CFB}) et de TaO_x (t_{Ta}) varient entre 0.8 nm $\leq t_{CFB} \leq$ 10 nm et 0.6 nm $\leq t_{Ta} \leq$ 1 nm , respectivement.
- Si/SiO_2//CoFeB (t_{CFB})/TaO_x (0.8 nm)/ Al (0.5 nm), où 2 nm$\leq t_{CFB} \leq$ 10 nm.
- Si/SiO_2//Pt (3 nm)/Co (t_{Co})/TaO_x (0.8 nm)/ Al (0.5 nm) et Si/SiO_2//Pt (3 nm)/Co (1.2 nm)/TaO_x (t_{Ta})/ Al (0.5 nm), où les épaisseurs des films de Co (t_{Co}) et de TaO_x varient entre 0.8 nm $\leq t_{Co} \leq$ 10 nm et 0.6 nm $\leq t_{Ta} \leq$ 1 nm , respectivement.
- Si/SiO_2//Pt (3 nm)/ Cu (t_{Cu})/ Co (1.2 nm)/TaO_x (0.8 nm)/ Al (0.5 nm), où l'épaisseur du film de Cu varie entre 0 et 2.4 nm.
- Si/SiO_2//Ta (3 nm)/CoFeB (1.5 nm)/PtO_x (t_{Pt})/Al (0.5 nm), où t_{Pt} varie entre 0.7 et 1.6 nm.
- Si/SiO_2//CoFeB (1.5 nm)/PtO_x (t_{Pt})/Al (0.5 nm), où t_{Pt} varie entre 0.7 et 1.6 nm.

Les séries d'échantillons dont les empilements sont présentés ci-dessous, ont été déposées à température ambiante sur des substrats de silicium thermiquement oxydé par pulvérisation magnétron à courant continu (DC). Pour la première série, les films de $Co_8Fe_{72}B_{20}$ (CoFeB) ont été déposés sur une sous-couche de Ta (3 nm). Les films de CoFeB ont ensuite été recouverts d'une couche de Ta d'épaisseur fixe (0.8 nm) ou variable selon le cas, qui sera oxydée dans une chambre de traitement (pression en oxygène de 150 mbar pendant 10 s). Pour la protection de la surface des oxydes, une couche d'Al est déposée par dessus pour tous les échantillons étudiés. Les échantillons ont ensuite été recuits à 225 ° C sous vide pendant 30 minutes afin d'améliorer l'anisotropie perpendiculaire. La

deuxième série est identique à la première, sauf que le film de CoFeB est directement déposé sur le substrat (sans sous-couche de Ta). L'objectif étant de déterminer la contribution de la couche d'oxyde et de la sous-couche de Ta dans les phénomènes d'interface étudiés.

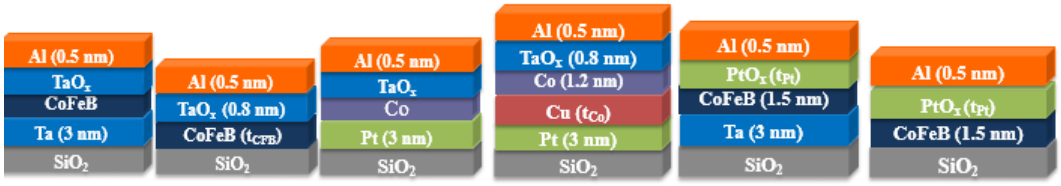

FIGURE 6.1 – Structure en empilement des échantillons à base de TaO_x et de PtO_x. Les épaisseurs des films ferromagnétiques et oxydes sont variables en plus de la couche de Cu introduite entre la sous-couche de Pt et le film de Co.

Pour la troisième et quatrième série, un film de Co est directement déposé sur une sous-couche de Pt (3 nm) et recouvert par une couche de TaO_x. Afin d'étudier la possibilité de moduler la PMA et l'iDMI, une couche de Cu d'épaisseur variable a été introduite entre le film de Pt et de Co (1.2 nm) pour la quatrième série d'échantillons. A noter que les films à base de Co n'ont pas été recuits afin d'éviter tout interdiffusion entre le Pt et le Co.

Dans le cas de deux dernières séries, les films de CoFeB (de 1.5 nm) ont été recouverts d'une couche de PtO_x à épaisseurs variables. Pour l'oxydation du Pt, un plasma d'oxygène avec une puissance de 10 W et une pression de 3×10^{-3} mbar ont été appliqués pendant 85 s. Les échantillons avec ou sans sous-couche de Ta (3 nm) ont été déposés en utilisant la même procédure. Afin d'étudier l'effet du recuit en plus de l'effet de la couche d'oxyde, une partie des échantillons a été recuite à 225 ° C. Nous obtenons ainsi quatre types d'échantillons à base de PtO_x : avec ou sans sous-couche de Ta, non-recuits et recuits.

Pour tous les échantillons, le dépôt est effectué dans une chambre avec un niveau de vide élevé (typiquement de l'ordre de plusieurs 10^{-8} mbar) afin d'obtenir une bonne qualité des matériaux déposés . Les épaisseurs déposées sont déterminées par le temps d'ouverture de la cache qui recouvre la cible. Les vitesses sont en moyenne comprises entre 0,03 et 0,1 nm/s, ce qui permet de déposer des couches aussi fines que quelques dixièmes de nanomètres. Pour les épaisseurs les plus minces, cela peut correspondre à un recouvrement partiel de la surface. La calibration des épaisseurs déposées est effectuée en utilisant des films d'une épaisseur typique de 30 nm pour avoir la plus faible erreur possible. L'épaisseur de ce film épais est mesurée en utilisant la réflectivité des rayons X. Pour une épaisseur de film de l'ordre de quelques nm, le temps de dépôt est de l'ordre de quelques dizaines de secondes, ce qui reste important par rapport au temps d'ouverture/fermeture des caches. Nous avons donc une précision suffisante sur le temps de dépôt. L'erreur typique d'épaisseur d'un échantillon donné est de quelques 5-10%. A noter que le système de pulvérisation est également équipé d'une chambre de traitement dans laquelle l'oxydation naturelle a lieu.

Dans la suite de ce chapitre, nous commencerons par présenter l'effet des épaisseurs des films ferromagnétiques sur les phénomènes SOC d'interface, puis dans la seconde partie nous détaillerons l'effet des épaisseurs des oxydes et du recuit.

6.3 Effet de l'épaisseur ferromagnétique

6.3.1 Propriétés statiques

Comme nous avons l'habitude de procéder, nous commençons par déterminer l'aimantation à saturation et l'épaisseur (t_d) de la couche magnétique morte via les mesures VSM. La figure 6.2 montre le moment magnétique à saturation par unité de surface en fonction des épaisseurs des matériaux ferromagnétiques. Rappelons qu'il s'agit des empilements de $Pt/Co\ (t_{Co})/\ TaO_x$, $Ta/CoFeB\ (t_{CFB})/\ TaO_x$ et de $CoFeB\ (t_{CFB})/\ TaO_x$.

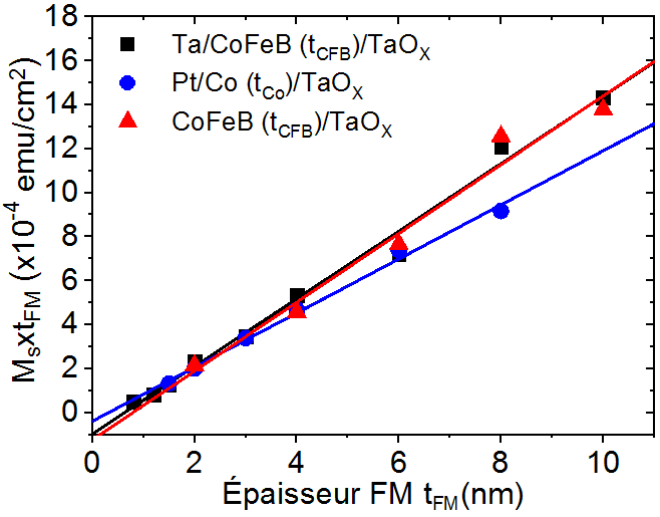

FIGURE 6.2 – Moment magnétique à saturation par unité de surface en fonction des épaisseurs des films ferromagnétiques dans les structures à base de $Pt/Co\ (t_{Co})/\ TaO_x$, $Ta/CoFeB\ (t_{CFB})/\ TaO_x$ et de $CoFeB\ (t_{CFB})/\ TaO_x$.

Les résultats obtenus indiquent que les valeurs de M_s pour les systèmes à base de CoFeB sont (1536 ± 60) emu/cm^3 et (1470 ± 50) emu/cm^3, dans le cas du $Ta/CoFeB/TaO_x$ et $CoFeB/TaO_x$, respectivement. Ces valeurs élevées de M_s sont très probablement dues à la composition du CoFeB qui est riche en Fe, connu pour avoir des valeurs élevées d'aimantation à saturation. De plus, la valeur de M_s pour le système avec la sous-couche de Ta est plus élevée que celle du $Co_{20}Fe_{60}B_{20}$ (M_s =1380 emu/cm^3) [268] et $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ (M_s = 1350 emu/cm^3) [288]. Ogasawara et al. [289] ont également démontré que la dépendance de M_s en fonction de la composition en Fe, dans le cas de $(Co_{1-x}Fe_x)_{80}B_{20}$ (avec x = 0.3-1), indique que l'aimantation à saturation est supérieure à 1500 emu/cm^3 pour toutes les valeurs de x étudiées. Une plus faible valeur de M_s est mesurée pour le système à base de Co (M_s =1230 ± 50) emu/cm^3. Cette faible valeur par rapport à celle du Co massif est très probablement attribuée à une oxydation partielle du Co à l'interface Co/TaO_x et à une contamination du volume de la couche de Co par l'oxygène. De plus, il a été démontré que pour le Pt/Co/MgO [239], les atomes d'oxygène peuvent migrer à travers l'interface dans le volume et contaminer la couche de Co, ce qui entraîne une diminution de la valeur de M_s qui est corrélée au degré de contamination par l'oxygène [222].

Pour la couche magnétique morte, t_d est estimée à (0.7 ± 0.1) nm, (0.71 ± 0.16) nm et (0.3 ± 0.1) nm pour les empilements de $Ta/CoFeB/TaO_x$, $CoFeB/TaO_x$ et $Pt/Co/TaO_x$, respectivement. Cette couche morte pourrait provenir du mélange de la couche de métal lourd (Pt ou Ta) et du film ferromagnétique (FM), de l'oxydation du

film FM lorsque la couche supérieure du matériau lourd est trop mince et du mélange du HM et de la couche FM lorsque le matériaux n'est pas suffisamment oxydé. Notons la valeur de t_d similaire pour les films de CoFeB avec ou sans sous-couche de Ta. Ceci pourrait également s'expliquer par l'interpénétration des atomes d'oxygène dans le CoFeB pendent l'oxydation du Ta. Il est également important de mentionner que le Fe est plus sensible à l'oxygène que le Co. Par conséquent, la couche morte plus élevée pour les structures à base de CoFeB est très probablement due à une oxydation plus importante à l'interface supérieure du CoFeB.

Après la détermination de t_d, nous considérons dans la suite l'épaisseur effective du CoFeB et du Co (t_{eff}) comme l'épaisseur nominale du FM moins l'épaisseur de la couche morte : $t_{eff} = t_{FM} - t_d$.

6.3.2 Propriétés dynamiques

6.3.2.1 Facteur gyromagnétique

$\gamma/2\pi$ est déduit à partir de l'ajustement linéaire des données expérimentales de la figure 6.3 avec l'équation 2.16.

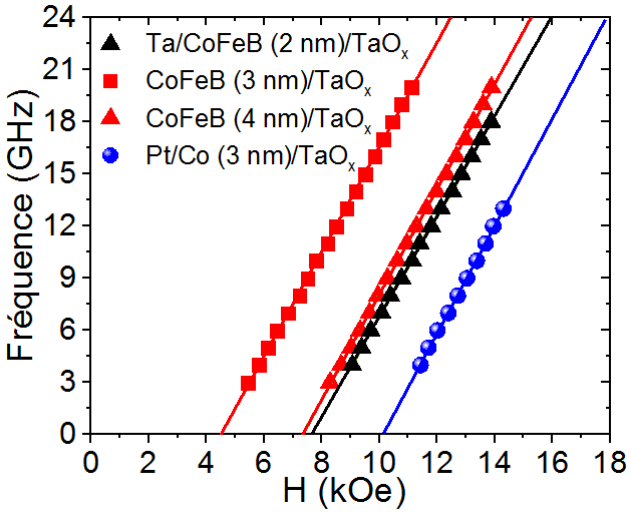

FIGURE 6.3 – Variation de la fréquence de précession uniforme en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan du film pour les système $Pt/Co\ (t_{Co})/\ TaO_x$, $Ta/CoFeB\ (t_{CFB})/\ TaO_x$ et de $CoFeB\ (t_{CFB})/\ TaO_x$. Les symboles sont les données expérimentales et les droites sont les ajustements par l'équation 2.16.

Les valeurs obtenues du facteur g sont de : 2.07 ± 0.01 ($\gamma/2\pi$ = 2.886 ± 0.014 MHz/Oe), 2.16 ± 0.1 ($\gamma/2\pi$ = 3.027 ± 0.12 MHz/Oe) et 2.22 ± 0.21 ($\gamma/2\pi$ = 3.10 ± 0.03 MHz/Oe), respectivement pour les échantillons de $Ta/CoFeB/TaO_x$, $CoFeB/TaO_x$ et $Pt/Co/TaO_x$. Nous observons une dépendance du facteur g en fonction de la présence ou non de la sous-couche de Ta, dans les échantillons à base de CoFeB. Sachant que ce facteur est connu pour être fortement influencé par les effets de surface et d'interface, car il dépend de la symétrie locale [205] et par conséquent il n'est pas surprenant d'observer cette dépendance.

A noter que pour les films très minces de Co et CoFeB (d'épaisseur inférieure à 2 nm), l'amplitude du signal FMR diminue énormément et le signal devient indétectable, le facteur g ne peut donc pas être déterminé. De plus, pour les films de Co et de CoFeB

les plus épais,dles champs de résonance élevés, au-delà de 15 kOe (champ magnétique appliqué maximal disponible dans notre banc MS-FMR), sont nécessaires pour obtenir des données expérimentales sur une gamme de fréquence suffisamment large pour déterminer précisément le facteur g. Par conséquent, les mesures du facteur g ont été restreintes à une gamme limitée d'épaisseur du film FM et les valeurs du facteur g mentionnées ci-dessus ont été utilisées pour toutes les épaisseurs des matériaux FM dans les systèmes correspondants.

6.3.2.2 Anisotropie magnétique

Dans cette section, l'investigation de l'anisotropie magnétique est présentée. D'abord, nous commençons par étudier l'anisotropie magnétique dans le plan des échantillons en mesurant la variation du champ de résonance en fonction de la direction du champ magnétique appliqué dans le plan par rapport aux bords du substrat (φ_H) à une fréquence fixe de 8 GHz. La figure 6.4 montre les dépendances angulaires typiques du champ de résonance pour les empilements $Ta/CoFeB/TaO_x$ et $Pt/Co/TaO_x$ avec différentes épaisseurs de film ferromagnétique et révèle une faible anisotropie uniaxiale dans le plan, dépendante de l'échantillon. Le champ d'anisotropie uniaxiale (H_u) est déterminé par l'ajustement des données de la figure 6.4 par l'équation 2.17. Les valeurs obtenues de H_u sont représentées sur la figure 6.5 en fonction de l'inverse de l'épaisseur effective des films ferromagnétiques. Ces variations révèlent que tandis que H_u du système $Ta/CoFeB/TaO_x$ reste essentiellement constant, un comportement linéaire clair peut être observé pour le système $Pt/Co/TaO_x$, suggérant une contribution interfaciale à cette anisotropie uniaxiale.

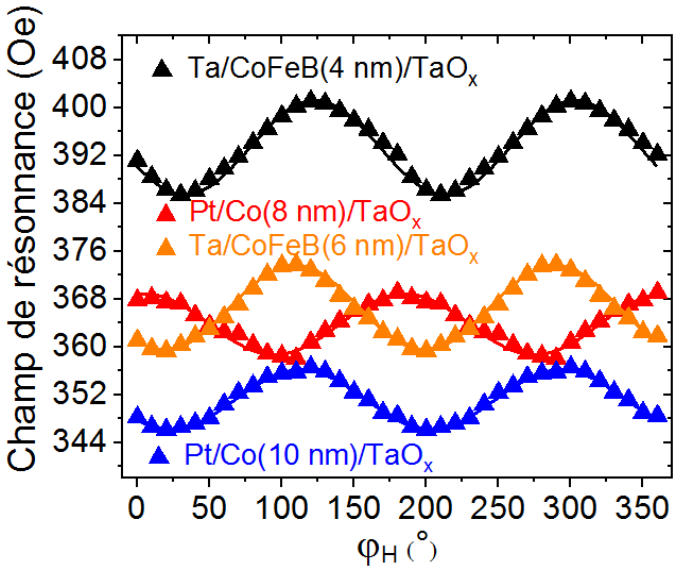

FIGURE 6.4 – Champ de résonance en fonction de la direction du champ magnétique appliqué dans le plan par rapport au bord du substrat (φ_H) mesuré à une fréquence de 8 GHz pour les systèmes $Pt/Co/TaO_x$ et $Ta/CoFeB/TaO_x$. Les symboles font références aux données expérimentales et les lignes sont les ajustements par l'équation 2.17.

La constante d'anisotropie uniaxiale de surface dans le plan 1.9×10^{-3}erg/cm^2 est en bon accord avec celle du $Co_{20}Fe_{60}B_{20}/Pt$ recuit [163]. L'origine de cette anisotropie uniaxiale d'interface n'est pas claire, cependant, étant donné qu'elle n'est observée que pour $Pt/Co/TaO_x$ et précédemment pour le $Co_{20}Fe_{60}B_{20}/Pt$, elle est très probablement induite par le Pt.

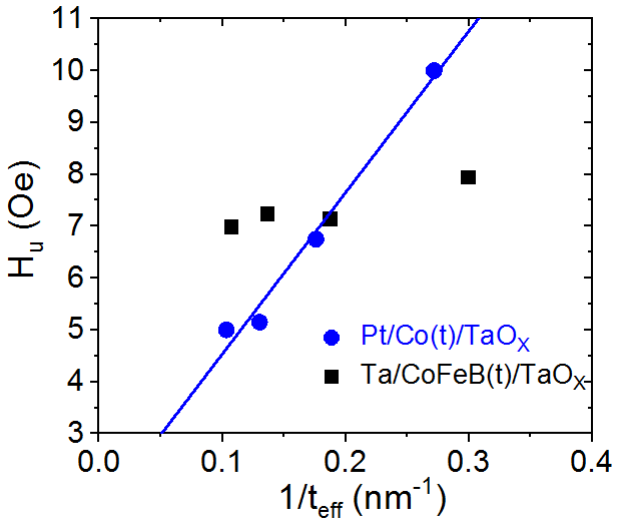

FIGURE 6.5 – Variations du champ d'anisotropie uniaxiale en fonction de l'inverse des épaisseurs effectives ($1/t_{eff}$) du CoFeB ou du Co pour les systèmes $Ta/CoFeB/TaO_x$ et $Pt/Co/TaO_x$. Les symboles sont les données expérimentales et la droite correspond à l'ajustement linéaire.

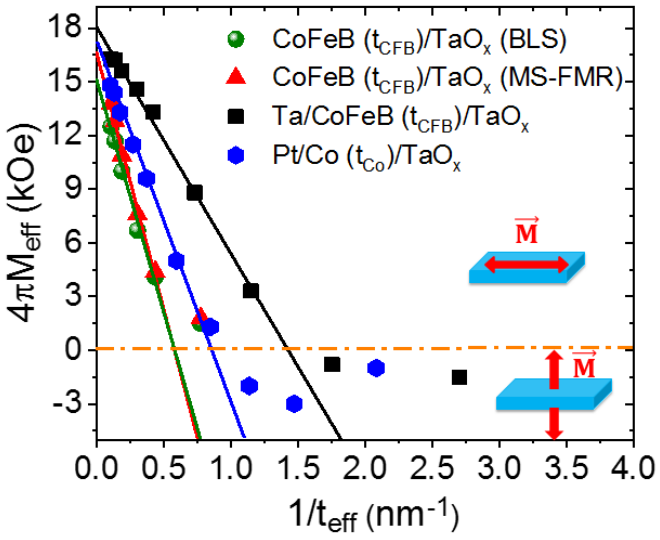

FIGURE 6.6 – Aimantation effective ($4\pi M_{eff}$) en fonction de $1/t_{eff}$. Les valeurs expérimentales ont été extraites de l'ajustement des mesures FMR ou BLS sous des champs magnétiques appliqués dans le plan. Les symboles font référence aux données expérimentales tandis que les droites sont les ajustements par l'équation 3.2.

Une fois que la direction de l'axe facile aimantation dans le plan est identifiée, la dépendance de la fréquence de précession en fonction du champ magnétique appliqué dans le plan a été mesurée pour chaque échantillon, puis ajustée avec l'équation 2.17 pour en déduire M_{eff} comme le montre la figure 6.6. A noter que ces mesures ont été réalisées en combinant les techniques FMR et BLS. M_{eff} a été déduite à partir de la FMR pour les échantillons les plus épais en utilisant la méthode décrite ci-dessus,, tandis que le calcul de la moyenne des fréquences Stokes et anti-Stokes a permis d'obtenir M_{eff} (pour les plus faibles épaisseurs films FM) en ajustant les données par l'équation 2.31.

La variation de l'aimantation effective en fonction de l'inverse de l'épaisseur effective des films FM est illustrée sur la figure 6.6. La dépendance linéaire de $M_{eff}(1/t_{eff})$ suggère l'existence d'une anisotropie magnétique de surface. De plus, nous remarquons la déviation de M_{eff} par rapport à la dépendance linéaire pour les plus faibles épaisseurs, très probablement en raison de la dégradation des interfaces des couches FM plus fines. Notons que les valeurs positives de M_{eff} correspondent à des films spontanément aimantés dans le plan , tandis que les valeurs négatives correspondent à des échantillons spontanément aimantés hors du plan. Pour le système $Ta/CoFeB/TaO_x$, la couche de CoFeB de 0.8 nm d'épaisseur n'a pas montré de signal BLS, suggérant qu'elle est paramagnétique ce qui est en bon accord avec l'épaisseur de la couche magnétique morte mesurée précédemment.

Les ajustements linéaires des données de la figure 6.6 par l'équation 3.2 ont été utilisées pour déterminer les constantes d'anisotropie perpendiculaire de surface K_s et de volume K_v. Les valeurs obtenues sont présentées dans le tableau 6.1. Il est à noter que pour les échantillons à base de $CoFeB/TaO_x$, les constantes d'anisotropie ont été déduites à la fois des mesures FMR et BLS. La plus grande valeur de K_s est obtenue pour les échantillons à base de $CoFeB/TaO_x$, $K_s = (2.1 \pm 0.16)$ erg/cm^2 et $K_s = (1.9 \pm 0.17)$ erg/cm^2 à partir des mesures FMR et BLS respectivement. La légère différence entre ces deux valeurs (environ 10%) est probablement due à la différence dans la gamme des champs magnétiques appliqués dans les deux techniques, lors de la mesure de la dépendance en champ de la fréquence et à d'autres paramètres inconnus impliqués dans l'ajustement des données BLS pour obtenir M_{eff}. Enfin, l'anisotropie de surface pour les échantillons $Pt/Co/TaO_x$ ($K_s = 1.22 \pm 0.06$ erg/cm^2) est plus élevée par rapport à celle des systèmes $Ta/CoFeB/TaO_x$ ($K_s = 0.97 \pm 0.09$ erg/cm^2), très probablement en raison de la meilleure qualité de l'interface Pt/Co qui présente une couche morte plus fine que les échantillons à base de $Ta/CoFeB/TaO_x$. De plus, la plus grande valeur de K_s pour les échantillons de $CoFeB/TaO_x$ par rapport à ceux de $Ta/CoFeB/TaO_x$ confirme la dégradation de l'anisotropie d'interface par l'ajout de la sous-couche de Ta. Cette valeur plus élevée de K_s pour $Si/SiO_2/CoFeB/TaO_x$ pourrait provenir de la rugosité induite par le substrat. En effet, les mesures de microscopie à force atomique pour le substrat Si/SiO$_2$ et le Si/SiO$_2$/Ta (3nm) (figure 6.7) ont montré que la rugosité a diminué de 0.278 nm à 0.175 nm après la croissance de la couche de Ta sur le substrat. Une telle rugosité pourrait créer des champs démagnétisants dans le plan, réduisant l'anisotropie de forme et favorisant ainsi une PMA d'interface plus élevée pour le CoFeB déposé directement sur le Si/SiO$_2$.

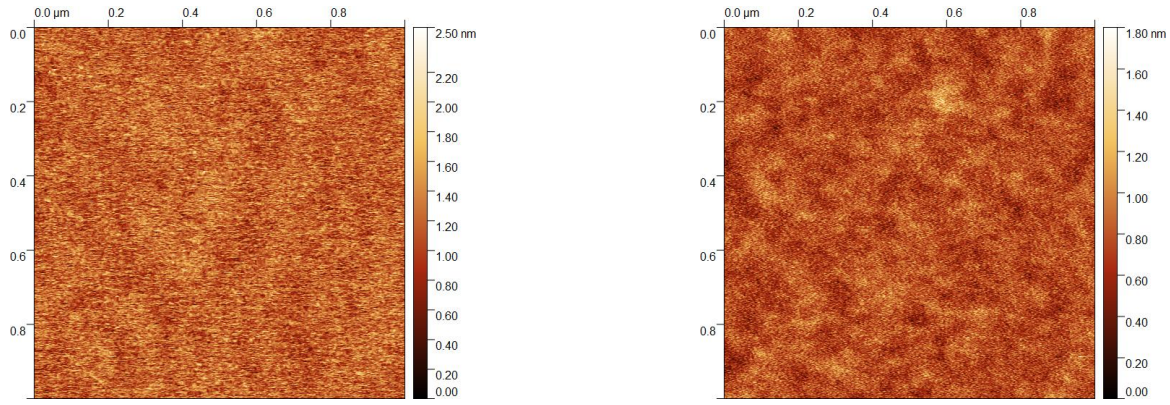

FIGURE 6.7 – Images de microscopie à force atomique, à gauche pour le substrat Si/SiO$_2$, à droite pour une couche de 3 nm de Ta déposée sur le Si/SiO$_2$.

La contribution à l'anisotropie de volume (K_v) pour les échantillons $CoFeB/TaO_x$ est estimée à K_v = (1.39 ± 0.1) ×10^6 erg/cm^3 et à K_v = (2.5 ± 0.1) ×10^6 erg/cm^3 à partir des mesures FMR et BLS respectivement. K_v est négative pour le $Pt/Co/TaO_x$ [K_v = -(0.89 ± 0.04) ×10^6 erg/cm^3], renforçant l'axe de facile aimantation dans le plan. Cette valeur de K_v, plus faible (en valeur absolue) que l'anisotropie magnétocristalline du Co hexagonal (K_v = 5.3 ×10^6 erg/cm^3), [290] et son signe négatif pourraient être attribués à des défauts dans le film, comme des déformations ou à des désordres, dûs à l'interdiffusion dans le volume du film de Co. De plus, la valeur positive de K_v [K_v =(0.95 ± 0.05) ×10^6 erg/cm^3] obtenue pour $Ta/CoFeB/TaO_x$, est comparable à celle du Fe-bcc massif (0.45 × 10^6 erg/cm^3) [291].

Système	K_s (erg/cm^2)	K_v(×10^6 erg/cm^3)	$g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$(nm^{-2})	α_{FM}(×10^{-3})
$Pt/Co/TaO_x$	1.22 ± 0.06	-0.89 ± 0.04	30.05 ± 2.3	8.40 ± 0.34
$Ta/CoFeB/TaO_x$	0.97 ± 0.09	0.95 ± 0.05	14.5 ± 1.2	3.1 ± 0.2
$CoFeB/TaO_x$	2.1 ± 0.16	1.39 ± 0.1	16.4 ± 2.1	2.1 ± 0.4

TABLE 6.1 – Paramètres obtenus à partir des meilleurs ajustements des dépendances en épaisseurs effectives, de l'aimantation effective et de l'amortissement des systèmes à base de CoFeB et de Co.

6.3.2.3 Amortissement de Gilbert

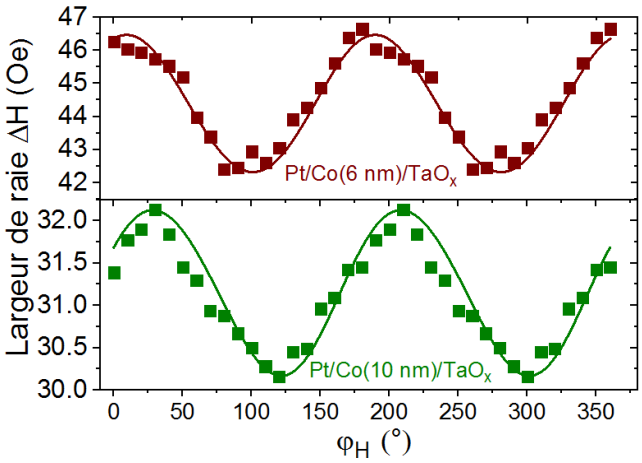

FIGURE 6.8 – Dépendance de la demi-largeur FMR à mi-hauteur ΔH en fonction de la direction du champ magnétique appliqué dans le plan par rapport au bord de l'échantillon (φ_H), mesurée à une fréquence de 8 GHz pour les systèmes Pt/Co(10 nm)$/TaO_x$ et Pt/Co(6 nm)$/TaO_x$. Les symboles font référence aux données expérimentales tandis que les lignes sont les ajustements via l'équation 2.18.

L'amortissement magnétique est également étudié par la FMR. Pour cela, la demi-largeur à mi-hauteur ΔH des raies FMR est mesurée en fonction de φ_H et de la fréquence de précession uniforme. La figure 6.8 montre ΔH (φ_H) pour les échantillons $Pt/Co/TaO_x$. Ces données expérimentales sont ensuite ajustées par l'équation 2.18 afin d'estimer l'ensemble des contributions extrinsèques et intrinsèques à l'amortissement magnétique (résumés dans le tableau 6.2). Ainsi, une fois que la direction de champ magnétique donnant

la valeur minimale de ΔH, où les contributions extrinsèques à la largeur de raie sont minimales, est déterminée, cette direction est ensuite utilisée pour les mesures de ΔH en fonction des fréquences.

Système	ΔH_0 (Oe)	Γ_0 (Oe)	Γ_2(Oe)	Γ_4(Oe)	$\varphi_2(^\circ)$	$\varphi_3(^\circ)$
$Pt/Co(10nm)/TaO_x$	2.85 ± 0.2	1 ± 0.05	1.5 ± 0.08	0.1 ± 0.02	30 ± 2	0
$Pt/Co(6nm)/TaO_x$	6.8 ± 0.4	10 ± 0.5	12 ± 0.5	0.25 ± 0.05	10 ± 2	0

TABLE 6.2 – Paramètres utilisés pour le meilleur ajustement des données expérimentales de la largeur de raie FMR de la figure 6.8. Rappelons que Γ_0, Γ_2 (et φ_2), et Γ_4 (et φ_3) sont des coefficients (et directions) utilisés pour caractériser l'amplitude de la contribution de la diffusion à deux magnons à l'élargissement des raies FMR.

La dépendance en fréquence de ΔH dans cette direction est ensuite ajustée par l'équation 2.22 afin de déterminer le coefficient d'amortissement de Gilbert α comme le montre la figure 6.9. La figure 6.9 (à droite) révèle que la constante d'amortissement augmente linéairement avec $1/t_{eff}$ en raison de l'amortissement supplémentaire induit par pompage de spin dans le Pt et le Ta suite à la précession FMR de l'aimantation. Par conséquent, l'amortissement total résulte de la contribution intrinsèque au matériau FM (α_{FM}), et d'un amortissement supplémentaire (α_{pump}) causé par le pompage de spin. Les données de la figure 6.9 sont ainsi ajustées par l'équation 2.34 afin d'extraire α_{FM} et $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$.

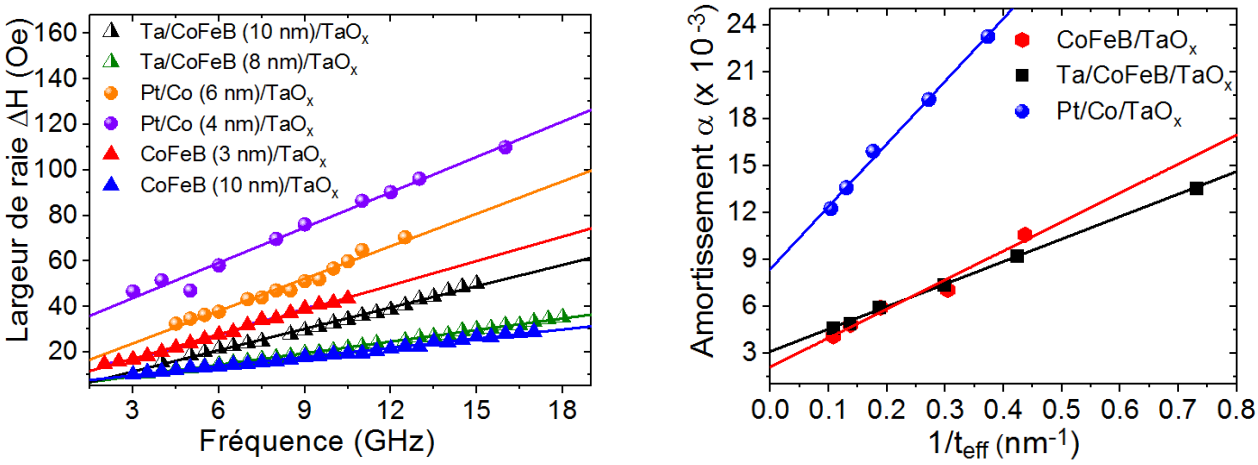

FIGURE 6.9 – A gauche : dépendance en fréquence de ΔH pour les systèmes avec différentes épaisseurs de CoFeB et de Co. Les symboles font référence aux données expérimentales et les droites sont des ajustements utilisant l'équation 2.22. A droite : constante d'amortissement de Gilbert en fonction de l'inverse de l'épaisseur effective des films de CoFeB et Co. Les symboles se réfèrent aux données expérimentales et les droites sont des ajustements utilisant l'équation 2.34.

L'ajustement linéaire des données expérimentales de la figure 6.9 donne α_{CoFeB} =(3.1 ± 0.2) $\times 10^{-3}$, α_{CoFeB} =(2.1 ± 0.4) $\times 10^{-3}$ et α_{Co} =(8.4 ± 0.34) $\times 10^{-3}$, pour les systèmes de $Ta/CoFeB/TaO_x$, $CoFeB/TaO_x$ et $Pt/Co/TaO_x$, respectivement. La valeur obtenue de α_{CoFeB} est légèrement supérieure à celle du Fe massif (1,9 $\times 10^{-3}$) [292] et elle est comparable à celle rapportée pour $Co_{20}Fe_{60}B_{20}$ (3.4 $\times 10^{-3}$) [163]. De plus, la valeur obtenue de α_{Co} est en bon accord avec celle du Co hcp (8×10^{-3}) rapportée par Devolder et al. [257], suggérant que les films de Co sont de structure hcp.

La plus faible valeur de $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ pour le $Ta/CoFeB/TaO_x$ (14.5 ± 1.2 nm^{-2}) par rapport aux autres systèmes : $CoFeB/TaO_x$ (16.4 ± 2.1 nm^{-2}) et $Pt/Co/TaO_x$ (30.05 ± 2.3 nm^{-2}), suggère une faible efficacité du pompage de spin. De plus, ces valeurs sont en bon accord avec la conclusion tirée précédemment sur l'amélioration de K_s pour les films de CoFeB sans sous-couche de Ta. $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ du système $Pt/Co/TaO_x$ est inférieure à ce qui a été rapportées par Zhang et al. (39.6 nm^{-2}) [293] et par Pai et al. (53 nm^{-2}) [294]. La faible valeur de $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ dans les structures à base de CoFeB pourrait être attribuée au plus grand mélange des matériaux aux interfaces de CoFeB, résultant en une région d'interface relativement large qui peut réduire le changement de potentiel aux interfaces. Par conséquent, les électrons de conduction à travers l'interface sont moins diffusés, ce qui entraîne de faibles pertes de spin [274] et donc à une faible valeur de $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$.

6.3.2.4 Interaction iDMI

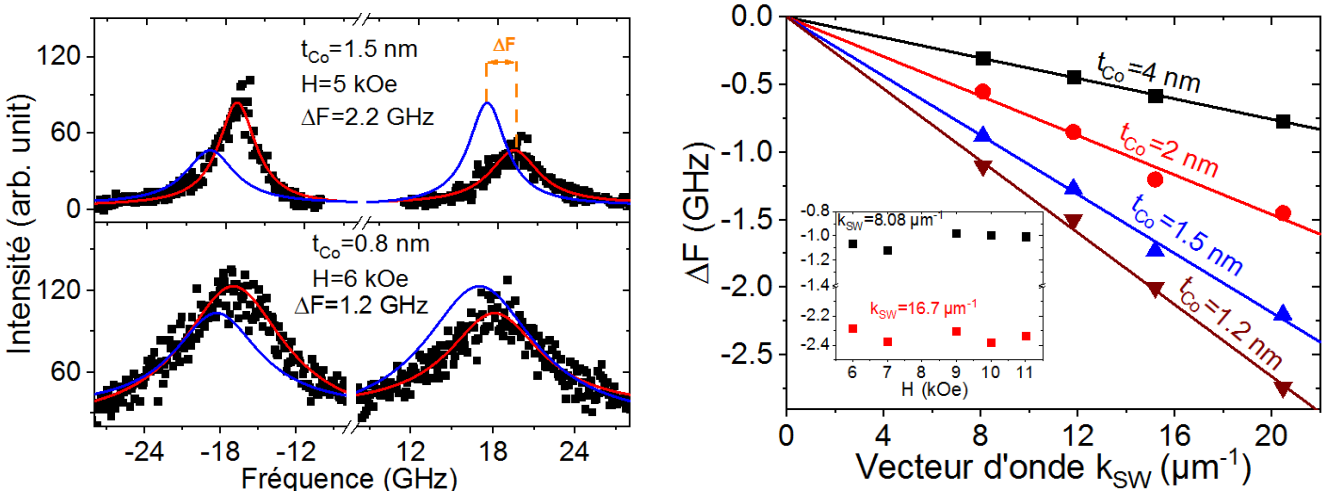

FIGURE 6.10 – A gauche : spectres BLS de $Pt/Co/TaO_x$ avec différentes épaisseurs de Co, mesurés à différentes valeurs de champ magnétique appliqué dans le plan et à un vecteur d'onde $k_{sw} = 20.45$ μm^{-1}. Les symboles font référence aux données expérimentales, et les lignes représentent les ajustements par une Lorentzienne. A droite : dépendance de ΔF en fonction de k_{sw} des empilements de $Pt/Co(t_{Co})/TaO_x$. Les symboles se réfèrent aux données expérimentales et les droites sont des ajustements utilisant l'équation 2.30. L'insert montre ΔF des empilements $Pt/Co(1.2\,\text{nm})/TaO_x$ en fonction du champ magnétique appliqué pour un vecteur d'onde donné.

Des mesures BLS en fonction du vecteur d'onde (k_{sw}) et sous un champ magnétique appliqué dans le plan ont également été effectuées afin d'étudier l'iDMI pour certaines épaisseurs du Co dans les films $Pt/Co/TaO_x$. Comme le montre la figure 6.10, les spectres BLS révèlent une différence de fréquence entre les raies Stokes et anti-Stokes (ΔF), permettant de déterminer directement la constante iDMI effective (D_{eff}) à partir de l'ajustement de la figure 6.10 (à droite) par l'équation 2.30. Cette différence de fréquence est indépendante de champ magnétique applique comme le montre l'insert de la figure 6.10. La dépendance de D_{eff} par rapport à l'épaisseur est illustrée sur la figure 6.11 pour le système $Pt/Co/TaO_x$, où une dépendance linéaire en fonction de $1/t_{eff}$ est observée pour les couches épaisses de Co (pour les épaisseurs nominales supérieures à 1.5 nm) et une déviation de cette linéarité, similaire à celle de M_{eff}, est révélée. L'ajustement linéaire des

données expérimentales de la figure 6.11 (à gauche) permet de déterminer la constante iDMI de surface (D_s) estimée à (-1.25 ± 0.05) $\times 10^{-7}$ erg/cm. Cette valeur est légèrement plus élevée (en valeur absolue) que la valeur rapportée pour Pt/Co/Cu (-1.05 $\times 10^{-7}$ erg/cm) [222] et inférieure à la valeur obtenue par Kim et al. [164] (-1.4 $\times 10^{-7}$ erg/cm) pour $Pt/Co/AlO_x$, ce qui suggère que le TaO_x contribue très probablement faiblement à l'iDMI totale dans ce système. Ceci a été confirmé par des mesures iDMI sur les films de CoFeB où des faibles valeurs de ΔF, qui restent dans la gamme de la barre d'erreur de la BLS (en dessous de ± 0.1 GHz), ont été mesurées même pour les valeurs maximales de k_{sw}.

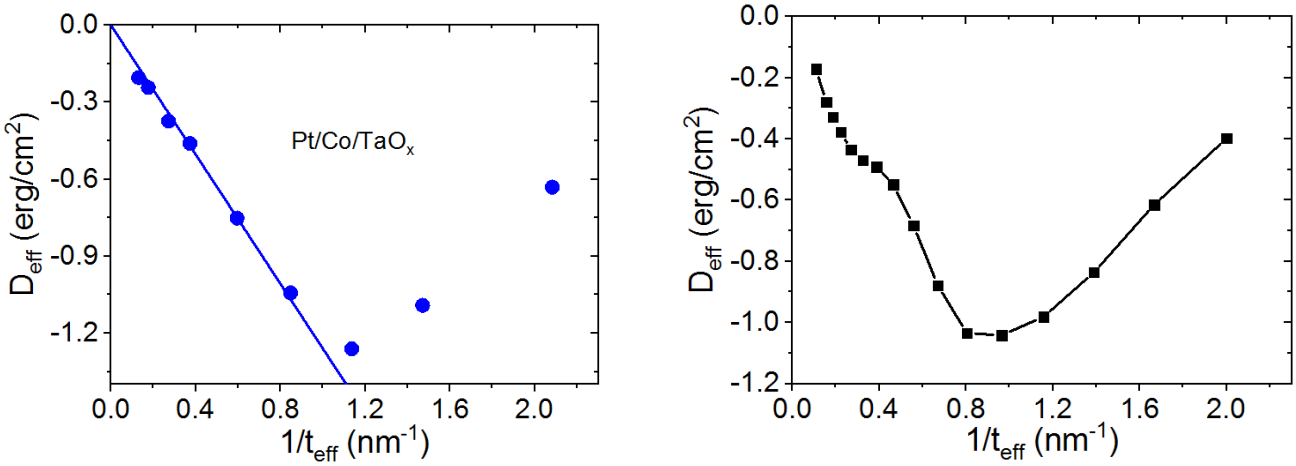

FIGURE 6.11 – Mesures (à gauche) et simulation (à droite) de la dépendance en épaisseur effective de la constante effective iDMI D_{eff} du système $Pt/Co(t_{Co})/TaO_x$.

L'inversion de tendance de D_{eff} pour les couches de Co plus minces est très probablement due à la dégradation de la qualité de l'interface de la couche ferromagnétique. De plus, cette diminution (en valeur absolue) de D_{eff} en fonction de l'épaisseur effective du FM pourrait être intrinsèque puisque D_{eff} devrait disparaître lorsque t_{eff} est nulle (pas de couche magnétique). Ce comportement peut être qualitativement reproduit par un modèle comme le montre la figure 6.11 (à droite). Nous supposons que les électrons itinérants dans la structure FM/HM se comportent comme des électrons libres avec une masse effective. La relation de dispersion pour un électron dans un matériau FM $\hbar\omega = E_{FM} + \hbar^2(k_1^2 + k_2^2 + k_3^2)/(2m_{FM})$, tandis que dans un matériau HM $\hbar\omega = E_{HM} + \hbar^2(k_1^2 + k_2^2 + k_3^2)/(2m_{HM}) - jk_2$. Le paramètre j prend en compte le SOC, la direction 3 est perpendiculaire à l'interface, tandis que la direction 1 est parallèle à la direction d'aimantation dans le matériau FM. D_{eff} est évaluée comme la différence des énergies de surface pour un spin parallèle à la direction 1 dans le matériau HM ou une direction de spin aléatoire dans le matériau HM. D'autre part, selon des calculs, l'iDMI pénètre dans la couche de Co, où elle est le résultat d'une contribution dominante des spins de la couche interfaciale de Co. [96]. Sa "profondeur de pénétration" effective comprend au moins trois monocouches atomiques (ML), ce qui signifie que les contributions de ces trois ML les plus proches doivent être prises en compte. Lorsque l'épaisseur du materiau FM tombe en dessous du seuil de trois ML, les contributions des deuxième et troisième couches atomiques adjacentes disparaîtront progressivement de l'iDMI totale ce qui affaiblit donc l'iDMI.

6.4 Effets de la couche de TaO_x et de la couche intercalaire de Cu

6.4.1 Effet du TaO_x

En étudiant l'iDMI dans les systèmes précédents, la séparation des contributions des interfaces supérieures et inférieures avec la couche ferromagnétique était difficile, puisque l'iDMI mesurée résulte de ces deux interfaces. De plus, en raison de la grande contribution de l'interface Pt/FM à l'iDMI et en raison de la faible iDMI totale pour le système de $Ta/CoFeB/TaO_x$, l'identification du rôle de l'interface FM/TaO_x dans l'iDMI est quasi- impossible. Une solution efficace pour déterminer la contribution de l'interface FM/TaO_x à l'iDMI totale serait de faire varier l'épaisseur du Ta, c'est à dire l'état d'oxydation du TaO_x, et de maintenir l'épaisseur du film ferromagnétique constante. Ainsi, pour les plus faibles épaisseurs de Ta, l'oxygène pénètre dans la couche magnétique sous-jacente où il se diffuse à l'intérieur de celle-ci à travers les joints de grains, entrainant une suroxydation. Par contre, en augmentant l'épaisseur du Ta, c'est à dire en réduisant l'oxydation de l'interface FM/TaO_x, des états de sous-oxydation ou d'oxydation optimale (selon l'épaisseur du Ta) sont obtenus. L'objectif est d'utiliser cette propriété afin d'étudier l'effet de la couche d'oxyde sur les phénomènes d'interfaces en particulier sur l'iDMI. Rappelons que dans cette section, deux types d'empilements ont été déposés : $Ta(3\,\text{nm})/CoFeB(1.15\,\text{nm})/TaO_x(t_{Ta})$ et $Pt(3nm)/Co(1.2\,\text{nm})/TaO_x(t_{Ta})$.

La figure 6.12 montre la dépendance de l'aimantation effective et de la constante effective de l'iDMI en fonction de l'épaisseur nominal du Ta. La PMA des systèmes à base de Co et de CoFeB se comporte différemment : pour les épaisseurs de TaO_x ultra minces (suroxydé), les structures à base de CoFeB sont aimantées perpendiculairement ($4\pi M_{eff}$ négative), puis M_{eff} diminue (en valeur absolue) lorsque l'épaisseur du Ta augmente suggérant la dégradation globale de la PMA. Ceci indique que le TaO_x le plus fin (0.6 nm) est l'état d'oxydation optimal et que le Ta plus épais conduit à une sous oxydation. A l'opposé, lorsque l'épaisseur du Ta augmente pour les systèmes de $Pt/Co/TaO_x$, les échantillons sont de plus en plus aimantés perpendiculairement, ce qui renforce la PMA. Ceci peut s'expliquer par le fait que pour un film ultra mince de TaO_x (suroxydation), le Co est oxydé par la pénétration d'atomes d'oxygène à travers les joints de grains, ce qui diminue le couplage d'échange entre les grains magnétiques et donc l'anisotropie globale. Ainsi, au fur et à mesure que l'épaisseur du Ta augmente, l'oxygène pénètre de moins en moins dans le volume du Co et de plus en plus de liaisons Co-O sont présentes à l'interface Co/TaO_x, ce qui conduit à un état d'oxydation optimal et améliore la PMA, comme cela a été déjà observée pour $Pt/Co/AlO_x$ [72].

Dans les deux cas, le maximum de PMA est observé à l'état d'oxydation optimale, ce qui correspondant à une épaisseur optimale de TaO_x. Le comportement opposé du système $Ta/CoFeB/TaO_x$ est probablement lié à la couche morte plus épaisse et à la plus grande sensibilité du Fe à la présence de l'oxygène. Ainsi, il semblerait que l'épaisseur optimale de TaO_x pour avoir de la PMA se trouve à les valeurs les plus basses, où les systèmes de CoFeB sont sensibles à l'oxygène en raison de leur teneurs élevées en Fe (dans notre cas Co_8Fe_{72}) et de la meilleure oxydation du Fe par rapport au Co. Ceci est cohérent avec les mesures sur des échantillons en 'double wedge', effectuées à Grenoble (SPINTEC), où nous observons que l'oxydation optimale est autour de 0.6-0.7 nm de Ta pour les échantillons $Ta/CoFeB/TaO_x$, alors qu'elle est d'environ 0.9-1 nm pour le $Pt/Co/TaO_x$ [295].

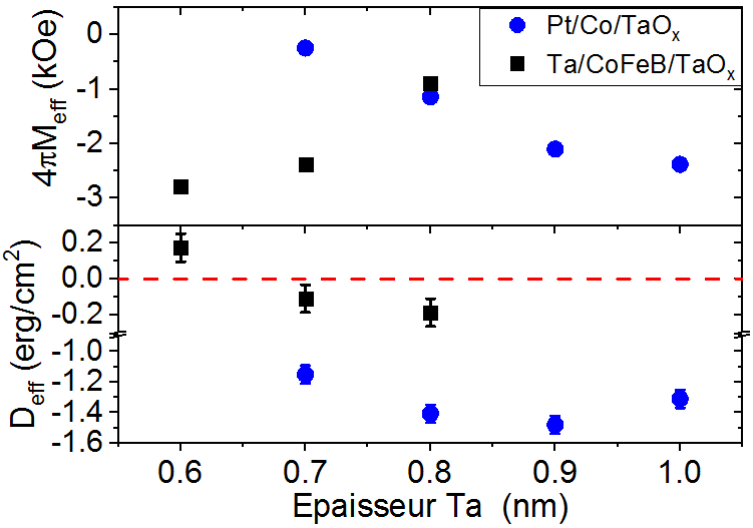

FIGURE 6.12 – Variation de l'aimantation effective ($4\pi M_{eff}$) et de la constante effective d'iDMI (D_{eff}) en fonction de l'épaisseur nominale du Ta pour les systèmes $Ta(3\,\text{nm})/CoFeB(1.15\,\text{nm})/TaO_x(t_{Ta})$ et $Pt(3\,\text{nm})/Co(1.2\,\text{nm})/TaO_x(t_{Ta})$.

En contraste avec la PMA, la tendance de l'iDMI en fonction de l'épaisseur du Ta est la même pour les deux systèmes. Pour $Ta/CoFeB/TaO_x$ et pour l'épaisseur de Ta la plus fine (t_{Ta} =0.6 nm), qui correspond donc à l'état optimal oxydée ou suroxydée, la valeur totale de D_{eff} est positive puis change de signe et devient négative pour les plus grande épaisseurs de Ta (t_{Ta} =0.7 nm) dans la région sous-oxydée. Ainsi, comme l'interface Ta/CoFeB conduit à une iDMI positive, nous concluons que l'interface $CoFeB/TaO_x$ suroxydée (faibles valeur de Ta) induit une faible iDMI positive ou même nulle et qui peut devenir négative pour un état de sous-oxydation (grandes épaisseurs de Ta). Ce comportement est confirmé par la dépendance de D_{eff} en fonction de l'épaisseur de Ta pour le $Pt/Co/TaO_x$, où l'iDMI totale est négative et augmente (en valeur absolue) de façon monotone en fonction de l'augmentation de l'épaisseur du TaO_x, indiquant une iDMI négative de l'interface Co/TaO_x pour les couches plus épaisses de TaO_x. A noter que dans le cas du système de $Pt/Co/TaO_x$, il est difficile de déterminer la contribution de l'interface Co/TaO_x à l'iDMI totale, en raison de la grande contribution de l'interface Pt/Co, due au fort SOC du Pt.

Si l'on considère une fois de plus le système $Ta/CoFeB/TaO_x$ et sachant que l'interface Ta/CoFeB conduit à une faible iDMI positive autour de 0.03 erg/cm^2 [247], nous concluons que l'interface $CoFeB/TaO_x$ oxydée d'une façon optimale/suroxydée induit une iDMI positive autour de +0.14 erg/cm^2. Inversement, l'état sous-oxydé à l'interface conduit à une iDMI négative d'environ -0.2 erg/cm^2. Pour l'interface sous-oxydée, nous constatons que la valeur absolue de l'iDMI est plus grande lorsque le Ta est déposé au-dessus du CoFeB qu'en dessous. Cela pourrait être dû à la plus grande couche de mélange des matériaux aux interfaces due à l'ordre d'empilement ou à l'interface mixte Ta/TaO_x qui peut être présente à cette interface. Un tel changement de signe et d'amplitude avec l'augmentation de l'épaisseur du $TaOx$ a déjà été rapporté par Arora et al. [108], où il a été attribué à la modification de la couverture en oxygène à l'interface du film FM, affectant ainsi l'hybridation entre les orbitales 3d-2p du matériau FM et de l'oxygène, respectivement et par conséquent l'iDMI.

Enfin, nous confirmons qu'en faisant varier l'épaisseur du TaO_x par un pas de 0.2 nm (entre 0.6 à 0.9 nm pour les deux systèmes), nous pouvons moduler la constante effective d'iDMI par 0.35 erg/cm^2. Cette modulation prouve la contribution des interfaces Co/TaO_x et $CoFeB/TaO_x$ à l'iDMI grâce à la présence d'un champ de Rashba au niveau de l'interface FM/TaO_x (voir section 1.4.2.1). Ainsi, cette technique offre la possibilité de moduler l'iDMI sans variation de l'épaisseur du matériau FM.

Cependant, certaines questions fondamentales restent encore sans réponses et méritent d'être clarifiées, telles que la portée de l'iDMI ainsi que les plans atomiques impliqués aux niveau des interfaces. De plus, il serait de la plus haute importante de pouvoir moduler l'iDMI (en signe et en amplitude) en fonction des applications spintroniques souhaitées. Pour cela, nous avons introduit une fine couche de Cu entre le Pt et le film de Co, dans le systèmes de $Pt/Co/TaO_x$ afin d'étudier son effet sur l'iDMI en plus de la PMA.

6.4.2 Effet de la couche intercalaire de Cu

Une fine couche intercalaire de Cu, d'épaisseur t_{Cu} qui varie entre 0 et 2.4 nm, a été insérée entre le film Pt et de Co dans le système de $Pt(3\,\text{nm})/Cu(t_{Cu})/Co(1.2\,\text{nm})$-$/TaO_x(0.8\,\text{nm})$. La BLS fut exclusivement utilisée dans cette partie pour l'étude de la PMA et l'iDMI.

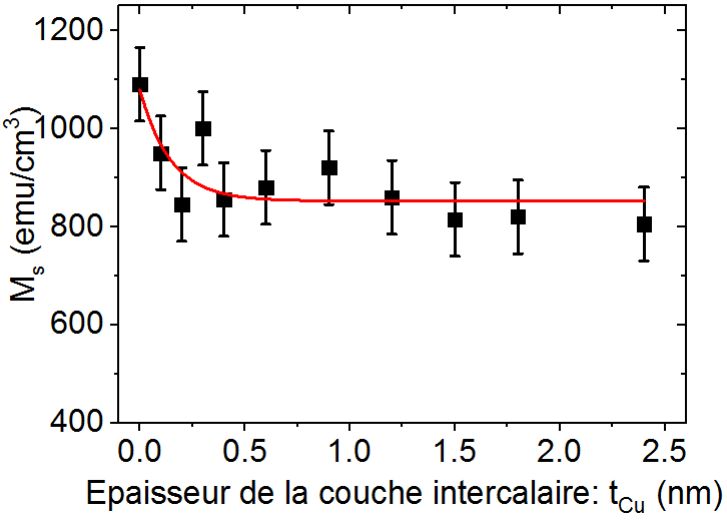

FIGURE 6.13 – Variation de l'aimantation à saturation (M_s) en fonction de l'épaisseur du Cu, dans le système $Pt(3\,\text{nm})/Cu(t_{Cu})/Co(1.2\,\text{nm})/TaO_x(0.8\,\text{nm})$.

Nous commençons par présenter les mesures VSM, où la figure 6.13 montre l'évolution de l'aimantation à saturation en fonction de la variation de l'épaisseur du Cu. Nous ne nous attendons pas à une couche magnétique morte à l'interface de Cu/Co en raison de l'immiscibilité de ces deux matériaux et donc aucun mélange de matériaux à l'interface Co/Cu ne devrait être présent. Par conséquent, la lente diminution de M_s avec l'augmentation de t_{Cu} est très probablement due à la diminution de l'aimantation causée par l'insertion du Cu et qui a été initialement induite par PIM à l'interface Pt/Co, ce qui correspond finalement à un changement de 26% de l'aimantation du film par rapport à celle du $Cu/Co/TaO_x$

Afin d'analyser le comportement de la PMA et de l'iDMI dans ces structure, la constante effective de PMA (K_{eff}) et la constante effective (D_{eff}) d'iDMI ont été calcu-

lées, en utilisant la dépendance de M_s en fonction de t_{Cu} comme le montrent les figures 6.14 et 6.15.

Pour l'anisotrope perpendiculaire et pour une couche mince de Co de 1.2 nm (et selon le tableau 6.1), K_v est très faible par rapport à K_s et donc K_{eff} reflète principalement la contribution de l'anisotropie de surface. Au fur et à mesure que t_{Cu} augmente, K_s diminue (figure 6.14). Ceci peut être le résultat de l'hybridation électronique du Co avec le Pt qui devient de plus en plus faible lorsque l'épaisseur du Cu augmente.

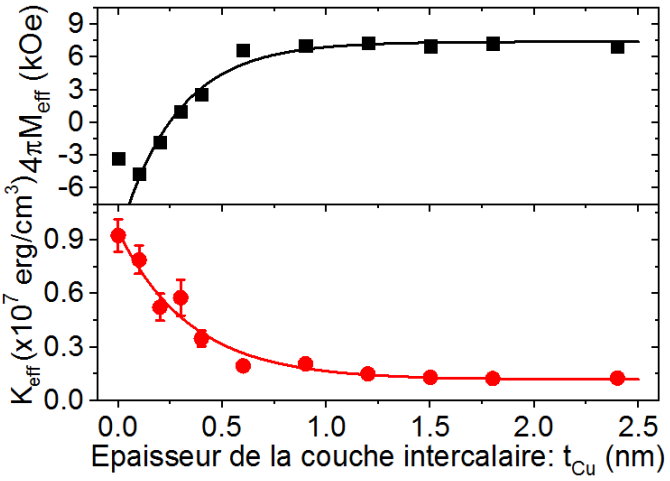

FIGURE 6.14 – Variation de la constante effective d'anisotropie perpendiculaire (K_{eff}) en fonction de l'épaisseur du Cu, dans le système $Pt(3\text{ nm})/Cu(t_{Cu})/Co(1.2\text{ nm})/TaO_x(0.8\text{ nm})$.

Une tendance similaire a été observée pour D_{eff}. Ainsi, lorsque l'épaisseur du Cu augmente, D_{eff} diminue (en valeur absolue) et converge vers une valeur moyenne positive autours de $+0.12 \pm 0.05$ erg/cm^2 correspondant à la constante iDMI de l'interface $Co(1.2\text{ nm})/TaO_x(0.8\text{ nm})$. Cette valeur est en bon accord avec la valeur obtenue pour l'interface $CoFeB/TaO_x(0.6\text{ nm})$ oxydée comme indiqué précédemment.

Pour une analyse approfondie des données, nous avons ajusté phénoménologiquement les données expérimentales de K_{eff} et de D_{eff} dans les figures 6.14 et 6.15 avec une fonction exponentielle décroissante : $A_0 + A_1 e^{-t_{Cu}/\lambda}$, où A_0, A_1 et λ sont les paramètres d'ajustement. Cela nous permet de comparer quantitativement les épaisseurs caractéristiques de décroissance (λ) entre K_{eff} et D_{eff} . Les valeurs obtenues de λ sont de 0.35 et 0.21 nm pour les constantes PMA et iDMI, respectivement. Ces valeurs correspondent approximativement à une ou deux monocouches atomiques d'épaisseur, ce qui suggère que ces quantités liées au SOC sont très localisées au niveau des premières monocouches atomiques d'interface avec le métal lourd. Nous pouvons donc conclure qu'une couche atomique de Cu est suffisante pour faire écran de manière significative à la couche de Pt et réduire sa contribution à l'iDMI et à la PMA. De plus, la plus faible valeur de λ pour D_{eff} par rapport à K_{eff}, suggère la restriction de l'iDMI aux premiers atomes à l'interface. En outre, les valeurs obtenues de A_1 caractérisent les intensités de PMA et de l'iDMI à l'interface Pt/Co(1.2 nm) et peuvent être utilisées pour estimer K_s et D_s pour l'interface Pt/Co. Par conséquent, les valeurs obtenues, en utilisant l'épaisseur nominale du Co (1.2 nm) sont K_s =1.1 erg/cm^2 et D_s = - 1.6 $\times 10^{-7}$ erg/cm. En comparant avec les valeurs obtenues précédemment (tableau 6.1), nous confirmons que dans de tels systèmes, l'iDMI et la PMA sont toutes les deux induites par l'interface Pt/Co.

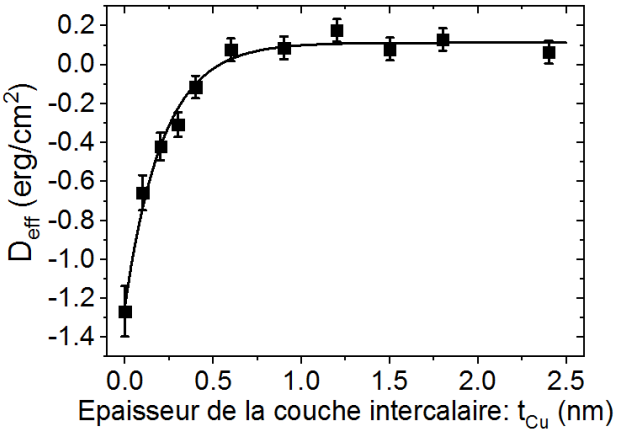

FIGURE 6.15 – Variation de la constante effective (D_{eff}) d'iDMI en fonction de l'épaisseur du Cu, dans le système $Pt(3\,\text{nm})/Cu(t_{Cu})/Co(1.2\,\text{nm})/TaO_x(0.8\,\text{nm})$.

Nous avons également étudié la corrélation entre iDMI et PMA pour le système $Pt/Cu(t_{Cu})/Co/TaO_x$ en traçant K_{eff} en fonction de D_{eff}, comme le montre la figure 6.16. Une corrélation évidente entre iDMI et PMA est manifestée par un polynôme non linéaire (fonction polynomiale du second degré) entre K_{eff} et D_{eff}, ce qui suggère une origine commune, à savoir l'hybridation des orbitale 3d-5d de Co et du Pt.

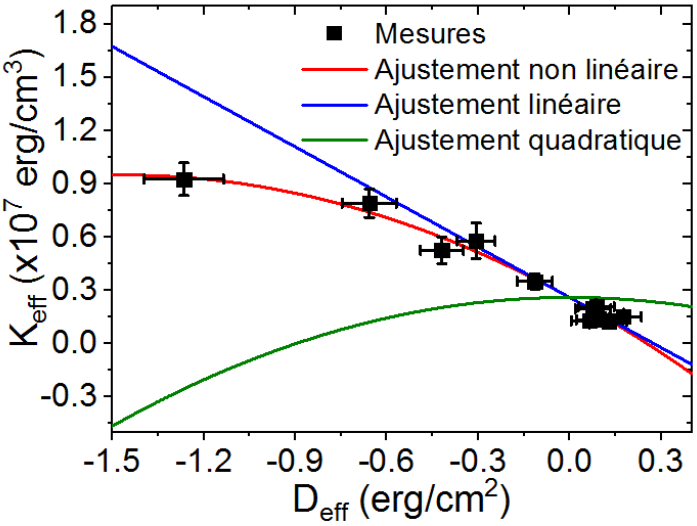

FIGURE 6.16 – Variations de la constante effective d'anisotropie perpendiculaire (K_{eff}) en fonction de la constante effective d'iDMI (D_{eff}) pour le système $Pt(3\,\text{nm})/Cu(t_{Cu})/Co(1.2\,\text{nm})/TaO_x(0.8\,\text{nm})$. Les symboles se réfèrent aux données expérimentales, la ligne bleue est l'ajustement linéaire pur (K_{eff} =2,58 $\times 10^6$ - 9,43 $\times 10^6 D_{eff}$), la ligne verte est l'ajustement quadratique (K_{eff} =2,58 $\times 10^6$- 3.22 $\times 10^6 D_{eff}^2$) et la ligne rouge est l'ajustement avec l'équation : K_{eff} =2,58 $\times 10^6$-9,43 $\times 10^6 D_{eff}$- 3.22 $\times 10^6 D_{eff}^2$.

En prenant seulement une relation linéaire pure entre K_{eff} et D_{eff}, on obtient la courbe bleue, qui s'adapte bien aux données expérimentales dans la gamme $-0.4\,\text{erg/cm}^2 \leq D_{eff} \leq 0.2\,\text{erg/cm}^2$, correspondant aux épaisseurs de Cu entre 0.3 et 2.4 nm, où le SOC est faible. Les données dans la gamme correspondant au reste des valeurs de D_{eff}, pour

les couches intercalaires les plus fines de Cu (inférieure à 0.3 nm), ne correspondent pas aux ajustements linéaires. La constante iDMI, dans ce cas, est élevée du fait que la contribution de Pt n'est pas complètement masquée par la fine couche intercalaire du Cu. Cela prouve une fois de plus que l'iDMI est très sensible aux premières monocouches atomiques aux interfaces et donc il est clair que la dépendance linéaire seule n'est pas suffisante pour décrire la corrélation dans toute la gamme de D_{eff}. Ainsi, une dépendance non linéaire (quadratique) doit être ajoutée à la fonction linéaire pour tenir compte de l'ajustement de l'ensemble de la variation de K_{eff} en fonction de D_{eff}. Par conséquent, les données expérimentales ont été ajustées en considérant une fonction polynomiale du second degré (ligne de couleur rouge dans la figure 6.16).

Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre précédent, une dépendance quadratique à été théoriquement prédite à partir des théories de perturbation pour la PMA [275] et l'iDMI [276], puisque l'énergie de d'iDMI résulte du premier ordre du SOC, tandis que la PMA provient de son second ordre. Cependant, une corrélation linéaire entre K_s et D_{eff} a été rapportée expérimentalement dans le système $Pt/Co/AlO_x$ à partir de l'étude de leurs dépendance en fonction de l'épaisseur du Pt [279]. Ce comportement linéaire a été attribué à la gamme étroite de variation de PMA et/ou iDMI dans laquelle la corrélation est étudiée, comme nous l'avons observé dans notre cas où l'épaisseur du Cu variait entre 0.3 et 2.4 nm. Par conséquent, le mélange entre les dépendances linéaires et quadratiques pures est en bon accord avec ces tendances et prouve la corrélation entre PMA et iDMI. A noter que dans les systèmes $Pt/Cu/Co/TaO_x$ avec une épaisseur de Cu variable, la contribution de l'interface supérieure (Co/TaO_x) à la fois à l'iDMI et à l'anisotropie d'interface est fixe et tout changement dans l'iDMI ou de PMA résulte très probablement de la contribution de l'interface inférieure avec Co (Pt/Cu/Co).

Nous concluons donc que la modulation de l'iDMI et de la PMA par l'insertion d'une couche d'espacement entre les couches HM et FM reste un outil puissant pour étudier leur corrélation puisqu'elle simplifie leur origine, en particulier pour la PMA. De plus, la dépendance non linéaire de K_{eff} en fonction de D_{eff} pourrait résulter de la différence des épaisseurs caractéristiques de décroissance entre iDMI et PMA où l'iDMI est plus localisée à la première interface.

6.5 Effet de la couche de PtO_x

Comme nous l'avons déjà mentionné, il serait également utile d'étudier l'effet d'utilisation de différents oxydes sur les phénomènes d'interfaces, en particulier sur l'iDMI. De plus, les échantillons à base de TaO_x montraient de faibles valeurs d'iDMI, il serait alors intéressant d'étudier l'effet de l'oxygène en présence du Pt par exemple, connu pour induire de fortes iDMI. Pour cela, nous avons choisi d'étudier en plus du TaO_x, la variation de l'iDMI, la PMA et de l'amortissement de Gilbert en fonction de la variation de l'épaisseur du PtO_x. Des échantillons non-recuits et recuits à 225 ° C ont ainsi étaient étudiés. Nous rappelons qu'il s'agit des échantillons à base de : $Ta(3\,\text{nm})/CoFeB(1.5\,\text{nm})/PtO_x(t_{Pt})$, ou de $CoFeB(1.5\,\text{nm})/PtO_x(t_{Pt})$, où t_{Pt} varie entre 0.7 et 1.6 nm. Nous avons également déposé des échantillons de structures identiques où l'épaisseur de CoFeB est variable pour les mesures VSM, afin de déterminer l'aimantation à saturation et les épaisseurs des couches magnétiques mortes.

6.5.1 Propriétés statiques

Des mesures VSM afin de déterminer l'aimantation à saturation et les épaisseurs des couches magnétiques mortes ont été effectuées. La figure 6.17 montre le moment magnétique à saturation par unité de surface en fonction des épaisseur du film de CoFeB, où t_{CFB} = 2, 4, 6, 8 et 10 nm. Les valeurs obtenues de M_s et de t_d sont relativement proches, cependant nous observons une légère différence entre les échantillons sans et avec sous-couche de Ta, et entre ceux non-recuits et recuits pour le même empilement. Ainsi nous trouvons que M_s est 1488 ± 50 emu/cm^3 et 1520 ± 50 emu/cm^3 pour les échantillons non-recuits et recuit de $CoFeB/PtO_x$, respectivement. Tandis que pour les systèmes $Ta/CoFeB/PtO_x$ l'aimantation à saturation est aux alentours de 1535 ± 60 emu/cm^3 et 1530 ± 50 emu/cm^3 pour les échantillons non-recuits et recuits. Le recuit améliore ainsi légèrement l'aimantation des échantillons de $CoFeB/PtO_x$.

La couche magnétique morte est quant à elle de 0.92 ± 0.12 nm et de 1.02 ± 0.22 nm pour les échantillons non-recuits et recuit de $CoFeB/PtO_x$, respectivement. Tandis que des valeurs plus élevées ont été calculées pour les systèmes de $Ta/CoFeB/PtO_x$, où t_d est de 1.16 ± 0.15 nm et 1.08 ± 0.1 nm pour les échantillons non-recuits et recuits. Les grandes valeurs de t_d comparées au échantillons de TaO_x sont probablement dues au fait que le Pt ne s'oxyde pas, l'oxygène pénètre alors de plus dans le films de CoFeB, ce qui a pour conséquence d'augmenter la couche morte. Cette hypothèse est en accord avec les valeurs de t_d mesurées pour les échantillons avec sous-couche de Ta, où une légère augmentation de t_d a été observée, confirmation ainsi que c'est l'interface supérieure de $CoFeB/PtO_x$ qui contribue majoritairement à cette couche morte.

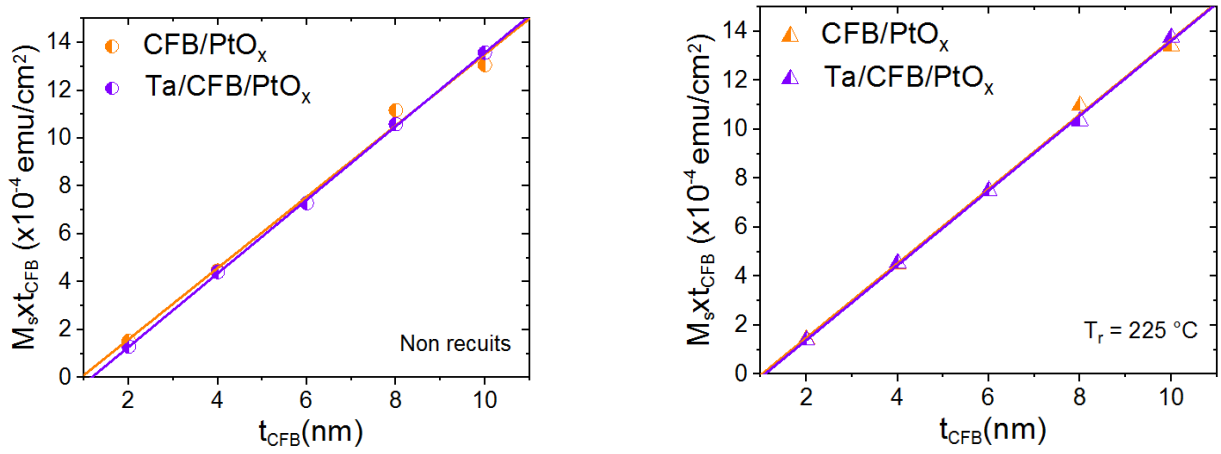

FIGURE 6.17 – Moment magnétique à saturation par unité de surface pour les échantillons, à droite, non-recuits et à gauche, recuits, de $Ta/CoFeB(t_{CFB})/PtO_x$ et $CoFeB(t_{CFB})/PtO_x$).

6.5.2 Propriétés dynamiques

En raison des épaisseurs ultra minces de CoFeB dans ces systèmes (t_{CFB} = 1.5 nm), la BLS a été utilisée pour l'investigation des phénomènes d'interface. Ainsi des mesures de la moyenne des fréquences Stokes et anti-Stokes pour différents champs magnétiques appliqués dans le plan (pour k_{sw} = 8.07 μm^{-1}) ont été effectuées afin de déterminer les constantes effectives d'anisotropie perpendiculaire et l'amortissement de Gilbert, tandis que le calcul de la différence entre fréquences des raies Stokes et anti-Stokes (ΔF) en

fonction de la variation du vecteur d'onde k_{sw} a permis de déterminer la constante effective d'iDMI.

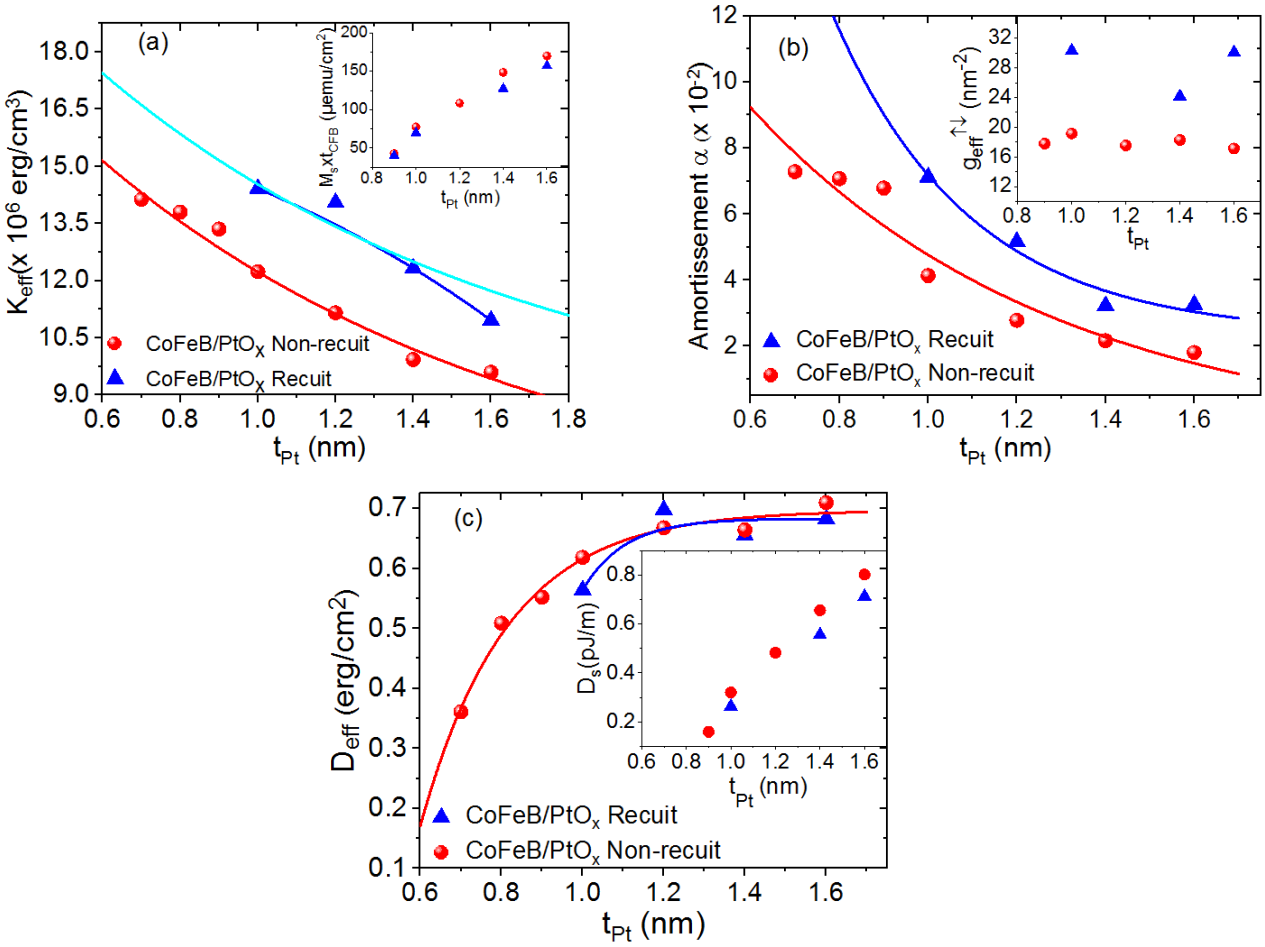

FIGURE 6.18 – Variations (a) de la constante effective (K_{eff}) d'anisotropie, de (b) l'amortissement de Gilbert α et (c) de la constante effective (D_{eff}) d'iDMI en fonction des épaisseurs nominales du Pt pour les échantillons $CoFeB/PtO_x(t_{Pt})$.

Les figures 6.18 et 6.19 représentent l'évolution de K_{eff}, α et D_{eff} en fonction des épaisseurs de Pt, pour les systèmes $CoFeB/PtO_x(t_{Pt})$ et $Ta/CoFeB/PtO_x(t_{Pt})$, respectivement. A noter que ces grandeurs sont obtenues en utilisant les valeurs de M_s précédemment obtenues, en plus $\gamma/2\pi = 30.2$ GHz.T^{-1} et $\gamma/2\pi = 28.8$ GHz.T^{-1} pour les échantillons $CoFeB/PtO_x(t_{Pt})$ et $Ta/CoFeB/PtO_x(t_{Pt})$, respectivement. Pour les deux systèmes, nous observons une diminution de K_{eff} et α en fonction de l'augmentation de t_{Pt}, tandis que D_{eff} augmente avec l'augmentation de t_{Pt}. Ceci est cohérent avec l'augmentation de l'épaisseur effective du CoFeB pour les échantillons $CoFeB/PtO_x$. En effet, lorsque t_{Pt} augmente, CoFeB est moins oxydé, t_d est réduit et par conséquent t_{eff} augmente comme le confirme l'augmentation du moment magnétique surfacique montré dans l'insert de la figure 6.18 (a). Lorsque l'épaisseur du film FM est inférieure à une valeur critique, D_{eff} diminue avec $1/t_{eff}$ puisque l'iDMI nécessite une épaisseur finie pour son émergence et donc son amplitude est maximisée. Par conséquent, en raison de la grande épaisseur de couche morte dans les systèmes $CoFeB/PtO_x$ et en tenant en compte l'épaisseur nominale de 1.5 nm de CoFeB, t_{eff} devrait être largement inférieure à 1 nm et donc D_{eff} devrait augmenter avec t_{Pt} comme nous l'avons expliqué ci-dessus. Pour valider cette

hypothèse, $t_{eff} \times M_s$ déduits des mesures VSM ont été utilisés pour évaluer D_s (insert figure 6.18 (c)). La variation de D_s montre que t_{eff} augmente mais reste inférieur à la valeur critique au-dessus de laquelle D_s doit être constante. Inversement, les valeurs de $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$, déduites des valeurs d'amortissement en utilisant $\alpha_{CFB} = 2.1 \times 10^{-3}$, sont presque constantes comme prévu, confirmant le comportement particulier de D_{eff} sous l'épaisseur d'émergence totale de l'iDMI.

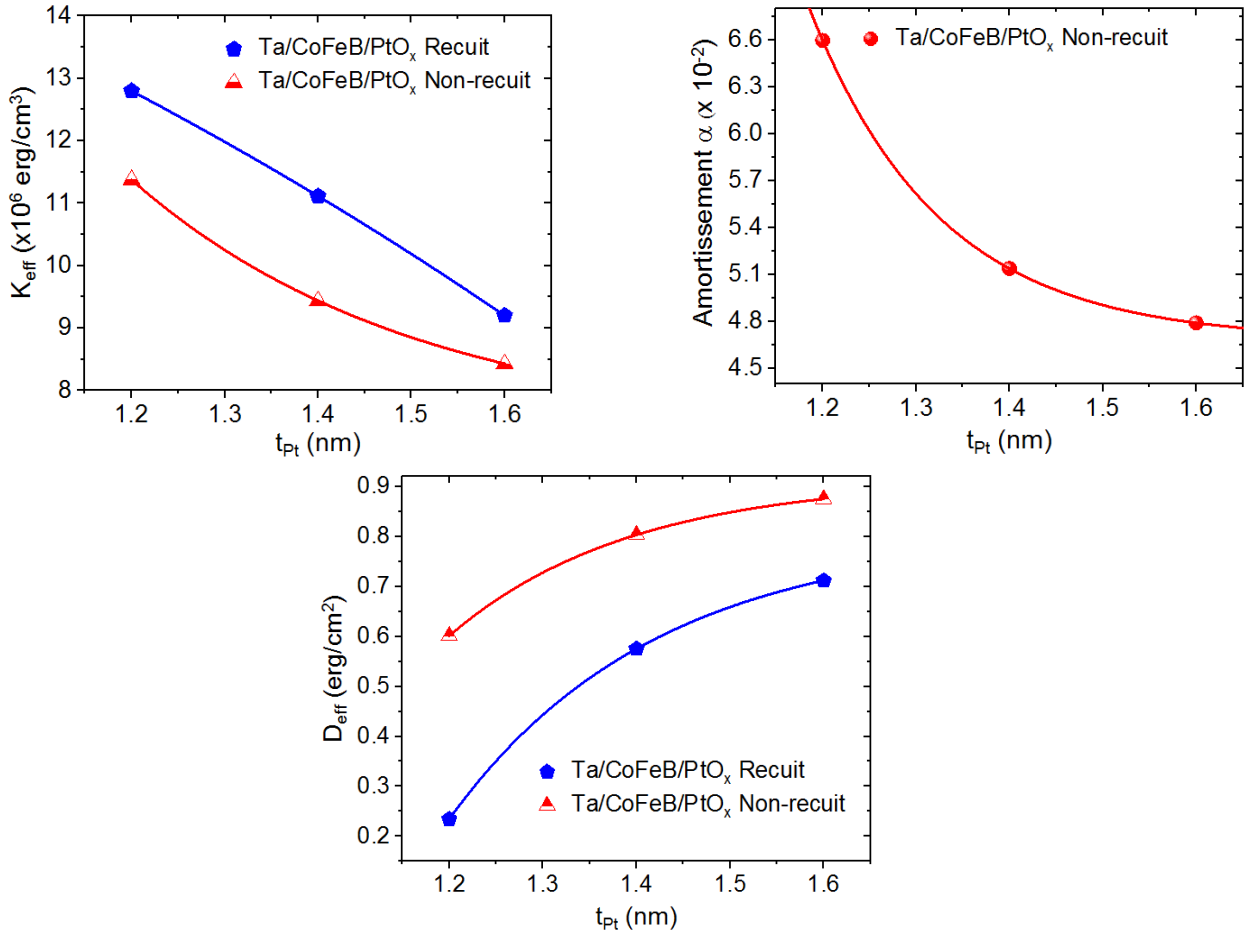

FIGURE 6.19 – Variation (a) de la constante effective (K_{eff}) d'anisotropie, de (b) l'amortissement de Gilbert α et (c) de la constante effective (D_{eff}) d'iDMI en fonction des épaisseurs nominales du Pt pour les échantillons $Ta/CoFeB/PtO_x(t_{Pt})$.

Pour le système $Ta/CoFeB/PtO_x$, une dégradation rapide des échantillons dont l'épaisseur est inférieure à 1.2 nm a été constatée, puisque aucun signal BLS pour ces échantillons n'a pu être détecté. Ceci suggère que ces échantillons ne sont plus magnétiques, en raison de la diminution de l'épaisseur de Pt, ce qui augmente la profondeur de pénétration de l'oxygène dans les films de CoFeB (plus grande oxydation des films de CoFeB). De plus, comme nous l'avons constaté précédemment, la sous-couche de Ta augmente encore le mélange à l'interface inférieure de CoFeB. Toutes ces conditions font qu'il est difficile d'observer un signal BLS pour les faibles épaisseurs de Pt.

6.6 Conclusion chapitre

Dans ce chapitre, nous avons étudié différents phénomènes SOC d'interface pour les structure à base de TaO_x et PtO_x.

L'anisotropie magnétique perpendiculaire, l'iDMI et l'amortissement de Gilbert des systèmes $Pt/Co/TaO_x$ et $Ta/CoFeB/TaO_x$ ont été étudiés en fonction de l'épaisseur du Co, CoFeB et TaO_x et du niveau d'oxydation. En faisant varier les épaisseurs de Co et de CoFeB pour chaque système, une forte iDMI, une forte PMA et une forte conductance par mixage de spin pour le système $Pt/Co/TaO_x$ ont été mises en évidence, tandis qu'une PMA légèrement plus faible et une faible iDMI ont été observées pour le système $Ta/CoFeB/TaO_x$. De plus, l'effet de la sous-couche de Ta sur la PMA et l'amortissement a été mis en évidence dans les systèmes à base de $CoFeB/TaO_x$. Ainsi, une grande anisotropie de surface a été trouvée dans le système sans sous-couche de Ta. Cependant, pour les couches ultra-minces de CoFeB, l'anisotropie de surface se dégrade rapidement, rendant les systèmes aimantés perpendiculairement inaccessibles sans sous-couche de Ta. De plus, les interfaces Co/TaO_x et $CoFeB/TaO_x$ induisent une iDMI, grâce à la présence d'un champ de Rashba à l'interface avec TaO_x, dont le signe et l'intensité peuvent être modulés en faisant varier l'épaisseur et le niveau d'oxydation du TaO_x. En insérant une couche de Cu entre les couches de Pt et de Co, nous démontrons que la PMA et l'iDMI peuvent être modulées de manière significative et nous mettons en évidence une corrélation non linéaire entre D_{eff} et K_{eff}. Nous prouvons également que l'iDMI et la PMA d'interface sont induites par les premières monocouches d'interface avec le Pt.

L'anisotropie magnétique perpendiculaire, l'iDMI et l'amortissement induit par pompage de spin des systèmes à base de PtO_x non recuits et recuits à 225 ° C ont également été étudiés en fonction de l'épaisseur du Pt. Les données expérimentales ont montré une forte dépendance de ces trois paramètres avec l'épaisseur du PtO_x, principalement attribuée à la variation de la couche morte, ce qui permettrai d'ajuster les paramètres d'interface pour les applications spintroniques souhaitées.

Conclusions et perspectives

L'objectif principal de cette thèse était d'étudier les phénomènes d'interface dans les structures ultra minces à base de matériaux ferromagnétiques (FM)/métaux lourds (HM). Nous avons ainsi investigué l'anisotropie magnétique perpendiculaire, l'amortissement et l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya d'interface en fonction des épaisseurs des films FM et HM et de la température de recuit dans les systèmes à base de matériaux FM/HM. Nous avons par ailleurs également étudié, l'effet des épaisseurs de l'oxyde de métal (et de son recuit) sur ces phénomènes. Une attention particulière a été donnée à l'étude de l'iDMI dans ces structures à base d'oxyde de métal, très peu développée dans la littérature. D'un autre coté, nous avons exposé le potentiel de ces phénomènes d'interface pour l'amélioration de l'efficacité des dispositifs spintroniques en particulier via la possibilité de contrôler l'intensité et le signe de l'iDMI.

Dans **le premier chapitre**, nous avons mis l'accent sur toutes les notions de bases en magnétisme. Nous avons par ailleurs défini les concepts clés de la spintronique tels que la GMR, la TMR et le couplage spin-orbite. Nous avons de plus décrit les excitations magnétiques et la dynamique de l'aimantation dans les couches minces ferromagnétiques, ainsi que les mécanismes intrinsèques et extrinsèques de la relaxation de l'aimantation. Nous avons montré que l'origine des phénomènes d'interface observés au niveau de nos empilements, est due au couplage spin-orbite. Ce **chapitre 1** a également mis en évidence le rôle clé de l'iDMI dans la génération de structures chirales de spin et dans l'amélioration des futurs dispositifs spintroniques. En outre, quelques applications déjà commercialisées et d'autres encore en phase de recherche ont été présentées.

Ces effets d'interfaces sont étudiés dans le cadre de la dynamique rapide de l'aimantation, où plusieurs techniques expérimentales peuvent être exploitées. Le **chapitre 2** a exposé en détail les deux techniques utilisées tout au long de cette thèse : FMR et BLS. Ces bancs FMR et BLS du laboratoire LSPM nous ont permis non seulement d'étudier le comportement de l'anisotropie magnétique dans le plan et hors du plan des échantillons grâce à la FMR, mais de sonder en plus les ondes de spin pour la caractérisation de l'iDMI par le biais de la BLS. La FMR a également été au cœur des expériences de pompage de spin. Nous avons également présenté dans ce chapitre les techniques utilisées pour le dépôt des échantillons (grâce aux différentes collaborations du laboratoire LSPM) ainsi que les différentes méthodes de caractérisation structurale par rayons X. Enfin, on a présenté le principe de la magnétométrie à échantillon vibrant, dont les mesures ont permis d'obtenir les valeurs de l'aimantation à saturation et de l'épaisseur de la couche magnétique morte.

Dans la spintronique, les oxydes ferromagnétique tels que les films minces de LSMO

sont très attractifs en raison principalement de leur forte polarisation en spin et faible coefficient d'amortissement. Dans le **chapitre 3**, nous avons alors étudié via la FMR, le comportement de l'anisotropie magnétique et le pompage de spin dans les films minces à base de LSMO/Pt. Ces investigations ont démontré la présence d'une anisotropie perpendiculaire de second ordre et d'une anisotropie d'ordre 4 dans le plan en plus de l'anisotropie uniaxiale planaire. L'étude de la largeur de raie FMR a indiqué la présence de contributions intrinsèques et extrinsèques à l'amortissement. La couche de couverture de Pt a légèrement augmenté l'amortissement de Gilbert, ce qui a permis d'obtenir une valeur modérée de $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$. Enfin, la valeur obtenue du coefficient d'amortissement du LSMO $\alpha_{LSMO} = (3.76 \pm 0.09) \times 10^{-3}$ confirme la faible valeur de l'amortissement pour les films LSMO, par comparions à d'autres matériaux ferromagnétiques.

Dans le **chapitre 4**, nous nous sommes intéressés à l'effet d'empilement et du recuit sur les phénomènes d'interface reliés au SOC. Ainsi, dans la première partie nous avons étudié la PMA et l'iDMI dans les systèmes à base de Co (non recuits et recuits à 300 ° C) avec différentes sous-couches et couches de couverture (Ru, Ti, Ir, Pt, W et MgO). Nous avons démontré l'existence d'un terme de second ordre d'anisotropie perpendiculaire et d'une faible constante d'iDMI pour l'interface Co/Ir. Le recuit à 300 ° C a permis d'augmenter la PMA et l'iDMI pour les empilements de $Pt/Co/MgO$ grâce à la diffusion des atomes d'oxygène interpénétrés dans le film de Co vers l'interface Co/MgO.

Dans la seconde partie de ce chapitre, des empilements en multicouches à base de $[Pt/Co(t_{Co})/W]_N$, avec N le nombre de répétitions de la tricouche Pt/Co/W, ont été étudiés. Les mesures VSM ont montré une amélioration de la qualité des empilements en fonction de N, où l'épaisseur de la couche magnétique morte augmente avant de devenir constante pour les valeurs de N $\geq$ 3. Une tendance similaire a été observée pour l'amortissement et l'anisotropie magnétique, dont les valeurs des constantes augmentent en fonction de l'amélioration de la qualité d'interface, en augmentant N. De même, les valeurs de la constante effective d'iDMI n'évoluent pas beaucoup pour N $\geq$ 3. Cette étude démontre l'amélioration de la qualité des interfaces par le dépôt en multicouches, qui a pour conséquence d'optimiser les phénomènes d'interface.

Sachant que les phénomènes d'interface que nous étudions sont liés au couplage spin-orbite et aux interfaces, il serait alors intéressant d'étudier la corrélation entre ces trois effets. De plus, il serait de la plus haute importance d'estimer la portée de l'iDMI ainsi que les monocouches d'interface impliquées dans cette interaction. L'investigation de la corrélation entre la PMA, l'iDMI et l'amortissement dans les systèmes à base de CoFeB est présentée dans le **chapitre 5**. Nous avions dans un premier temps étudié ces trois phénomènes d'interface dans les structures à base de CoFeB (t_{CFB})/X (X=Pt, Cu/Pt, W/Al, Ta/Pt). Une grande iDMI a été mesurée dans le cas du système CoFeB/Pt, tandis qu'aucune iDMI n'a pu être mesurée pour les autres structures. Par conséquent, aucune corrélation n'a pu être constatée. En effet, les différents types des empilements utilisés (à base de diverses couche de couverture et sous-couche) dans ces systèmes, donnaient différentes contributions aux trois phénomènes d'interfaces, rendant impossible à déduire toute corrélation. Par conséquent, nous avons étudié dans la seconde partie de ce chapitre la PMA, l'iDMI et l'amortissement dans les systèmes à base de $Ta/CoFeB/Y(t_Y)/Pt$ (Y= Ta, MgO, Cu). Ainsi, grâce à l'insertion de la couche intercalaire entre les films de Ta et Pt, une corrélation linéaire entre K_{eff}, D_{eff} et $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$, attribuée aux hybridations orbitales d'interface similaires impliquées pour les trois phénomènes d'interface, a été observée.

Enfin, le **chapitre 6** a été dédié à l'investigation des phénomènes SOC d'interface dans les systèmes à base de matériaux FM/oxyde de métal. Nous nous sommes intéressés à ce type d'interface à cause de la grande PMA et du faible amortissement déjà observés dans la littérature. Il serait alors important d'étudier en plus l'iDMI et l'effet du taux d'oxygène sur cette interaction. **Le chapitre** a été partagé en deux grandes parties. Dans un premier temps, nous avons étudié la PMA, l'amortissement et l'iDMI dans les systèmes à base de $Pt/Co(t_{Co})/TaO_x$, $CoFeB(t_{CFB})/TaO_x$ et $Ta/CoFeB(t_{CFB})/TaO_x$ où de grandes valeurs des constantes correspondantes aux trois phénomènes ont été mesurées pour les échantillons à base de Co. De plus, l'effet de la sous-couche de Ta sur PMA a pu être mis en évidence.

Dans la seconde et dernière partie de ce chapitre, nous avons étudié l'effet des épaisseurs du TaO_x et PtO_x (et du recuit) sur ces phénomènes d'interfaces. Nous avons alors observé la possibilité de moduler l'iDMI en signe et amplitude en fonction de l'épaisseur du TaO_x, via le taux d'oxydation. Nous avons également inséré une couche intercalaire de Cu (t_{Cu}) entre les films de Co et de Pt, où nous avons observé une corrélation non linéaire entre K_{eff} et D_{eff}. Enfin, l'étude de ces trois phénomènes pour les systèmes à base de PtO_x a démontré une forte variation de K_{eff}, α et D_{eff} en fonction de l'épaisseur du Pt, attribuée à la variation de l'épaisseur de la couche magnétique morte.

Perspectives

1-Effet du champ électrique sur l'iDMI

Comme nous l'avons vu tout au long de ce manuscrit, l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya d'interface a fait l'objet de recherches intenses en raison de sa capacité à induire et à stabiliser des structures chirales de spin. De plus, le contrôle électrique de propriétés magnétiques, mécanisme très important grâce auquel le mouvement de l'électron contrôlé par des champs électriques, peut produire un champ magnétique effectif agissant sur les spins du fait de couplage spin-orbite. Par conséquent, le contrôle électrique de l'anisotropie perpendiculaire et de l'interaction iDMI d'interface fera progresser de manière significative la spintronique à la fois en termes de recherche fondamentale que des perspectives appliquées. Il a été observé au cours des dernières années par exemple une modification réversible de l'anisotropie magnétique par application de champ électrique [295]. Il serait alors intéressant d'étudier son effet sur l'iDMI, où d'un point de vue technologique cette manipulation de l'iDMI donnera un degré supplémentaire pour l'ingénierie des dispositifs de mémoires à base de skyrmions ou de parois de domaines. De nombreuses études sont déjà en cours. Une investigation théorique de l'effet d'un champ électrique (E) sur l'iDMI dans les tricouches à base de MgO/Co/Pt a notamment démontré une augmentation approximativement linéaire de l'iDMI en fonction de E [94]. Des études expérimentales ont par la suite prouvé l'influence du champ électrique sur l'iDMI, où une augmentation de la constante de cette interaction fut observée par exemple pour des champ positifs dans les systèmes à base de MgO/Fe/Pt comme le montre la figure i [296], ou pour des faibles valeurs d'iDMI dans les systèmes à base de $Ta/CoFeB/TaO_x$ [113]. Cependant, ces études ne sont qu'au stade embryonnaire, où l'investigation de l'effet du champ électrique pour différents empilements, avec diverses épaisseurs de matériaux FM et NM, est encore incomplète. De plus, ces effets observés ont tendance à être volatiles, augmentant ainsi considérablement la consommation en énergie. Une alternative peu énergivore a été

récemment établie, avec une manipulation non volatile via un champ E dans les systèmes à base de $Pt/Co/HfO_2/liquide\ ionique$ [297]. Dans ces échantillons, une diminution de l'iDMI (attribuée à la migration des espèces oxygénées vers les films de Pt et de Co, conduisent à un découplage entre ces deux couches) en fonction du temps d'exposition au champ E a été mesurée [297]. De plus, l'inversion de la polarité du champ E ou le retrait du liquide ionique ne permettait pas de retrouver les valeurs initiales de l'iDMI, indiquant que les changements induits sont permanents et irréversibles [297]. Il serait alors important d'étudier la modulation de l'iDMI par exemple (en signe et amplitude) en fonction de l'amplitude du champ électrique et de sa polarité (positif ou négatif). Dans ce contexte, des études préliminaires entamées par Djoudi Ourdani (dans notre groupe du LSPM, en collaboration avec C2N à Orsay) s'inscrivent dans la continuité des résultats présentés dans ce manuscrit, où il étudie la modulation de l'iDMI par application de champ électrique (en fonction de la polarité) dans les systèmes à base d'oxyde/liquide ionique.

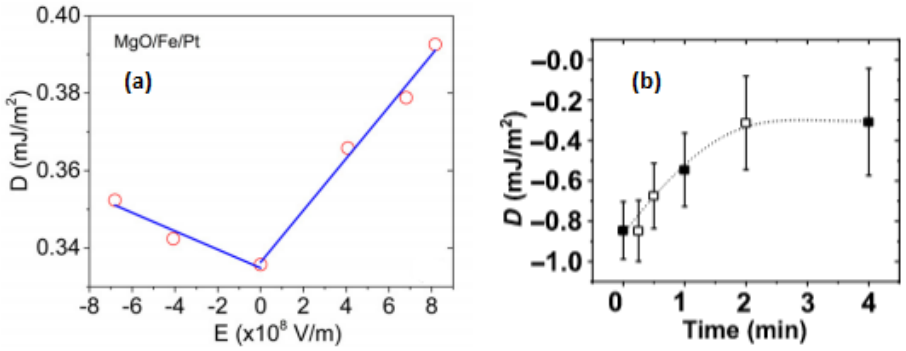

FIGURE I – (a) Constante d'énergie d'iDMI en fonction du champ électrique appliqué [296] . Les droites sont des ajustements linéaires. (b) Constante d'iDMI en fonction du temps de polarisation [297].

2-Effet des contraintes mécaniques sur l'iDMI

Un autre axe éventuel de recherche sur l'iDMI concerne l'effet de contraintes sur cette interaction. En effet, il a été démontré qu'une modification de la distance entre particules induite par une contrainte modifie la force de l'interaction entre les ions magnétiques et provoque ainsi une variation des moments magnétiques, de la température de Curie, de l'anisotropie magnétique ...etc. On s'attend donc également à un effet d'application de contrainte sur l'iDMI, puisque cette interaction d'interface dépend de l'intensité du couplage spin-orbite et de la distance entre les atomes du film ferromagnétique et du métal lourd. Ainsi, une augmentation de l'iDMI allant jusqu'à 20% avec une déformation de 5.5% dans une structure à base de Pt/Co/MgO a été récemment observée[298]. Des études basées sur des calculs ont également démontré la sensibilité de l'iDMI à une application d'une contrainte perpendiculaire au plan des films [299]. L'iDMI peut ainsi varier de 40% sous une déformation de 0.3% [299]. Cependant l'origine physique de cette variation d'iDMI n'est pas encore claire, où des investigations supplémentaires avec différentes structures à base d'empilements FM/HM par exemple sont nécessaires.

La contrainte peut être induite via deux méthodes. Des contraintes mécaniques peuvent être générées directement dans le film magnétique par déformation mécanique, par exemple

par une flexion du substrat en utilisant un substrat de Kapton. La deuxième méthode de création de contraintes mécaniques consiste à utiliser un substrat piézoélectrique auquel on applique une différence de potentiel. Des mesures BLS sur des couches ferromagnétiques déposées sur Kapton, ont déjà été menées au LSPM et ont révélé un très faible rapport signal sur bruit. Nous proposons donc de déposer des multicouches à base d'interface FM/HM d'épaisseur variables sur un substrat piézoélectrique tel que PMN-PT ou PZN-PT avec un module piézoélectrique élevé. La BLS sera ensuite utilisée pour étudier l'effet des contraintes induites par un champ électrique sur l'iDMI (voir figure ci-dessous). Enfin, la modulation de l'iDMI via l'application de déformations ouvre la voie au contrôle de cette interaction et éventuellement des skyrmions avec une tension via un couplage magnétoélectrique par le biais de la déformation.

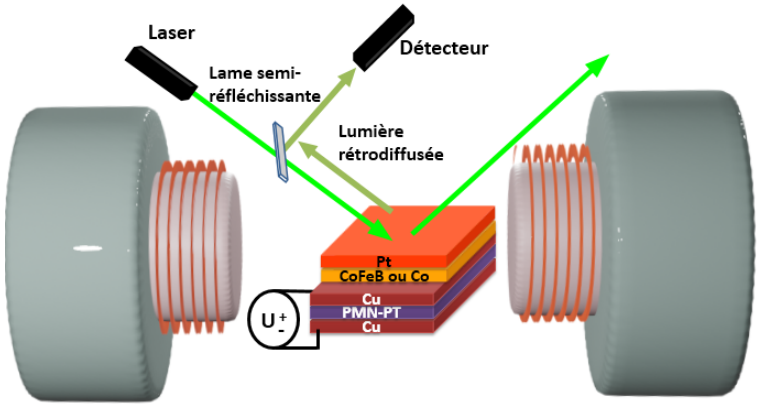

FIGURE II – Dispositif utilisé pour étudier les contraintes sur l'amortissement, l'anisotropie perpendiculaire et l'DMI par BLS.

3-Effet de la température sur l'iDMI

La température affecte remarquablement les propriétés magnétiques de différents matériaux et en particulier quand ils sont en couche ultra minces. En effet, la variation température du système pourrait provoquer la redistribution des charges entre les orbitales dans le plan et hors du plan conduisant ainsi à la dépendance en température de l'aimantation à saturation, des différents types de l'interaction d'échange, de l'anisotropie et d'autres paramètres magnétiques. La dépendance en température de ces paramètres fournit un moyen efficace pour étudier leurs relations et pourrait être utilisée pour mieux comprendre leurs origines physiques. Fondamentalement, l'anisotropie magnétique d'interface et l'iDMI dans les systèmes FM/HM proviennent toutes les deux de la brisure de symétrie d'inversion et de couplage spin-orbite d'interface. Cependant, peu d'études ont examiné leur dépendance relative vis-à-vis de la température dans les hétérostructures en couches minces et par conséquent leur corrélation ce qui pourrait fournir des informations capitales sur leurs origines communes. Dans le chapitre 4, nous avons étudié l'effet du recuit sur l'iDMI. Une étude intéressante consisterait à étudier l'effet de la température sur cette interaction in-situ lors des mesures BLS. En effet, comme nous l'avons déjà vu, l'iDMI est hautement sensible au mixage et à l'interdiffusion (arrangement des atomes) aux niveau des interfaces. On s'attend donc également à une sensibilité de l'iDMI en fonc-

tion du désordre thermique, lorsque par exemple la température augmente fortement. De plus, la dépendance en température de l'iDMI dans les films minces est importante pour les applications possibles des dispositifs spintroniques, puisque ces derniers devront fonctionner dans une plage de température bien définie. Des mesures de l'iDMI en fonction de la température ont été récemment entamées au niveau du LSPM, dans le cadre des travaux de thèse de Djoudi Ourdani. Pour cela, le porte-échantillon du banc de mesure BLS, est remplacé par un cylindre sur lequel un échantillon peut être collé en utilisant une laque d'argent. Ce cylindre, qui est chauffé par un courant électrique, est relié à une sonde qui mesure en temps réel la température de chauffage. Un système plus performant basé sur l'utilisation d'une enceinte contrôlée en température est en cours de fabrication. Sachant que la littérature traitant ce sujet est toujours manquante, l'étude de la dépendance de l'iDMI en fonction de la température se révèle être de la plus haute importance. Des résultats préliminaires obtenus par Ourdani ont déjà démontré l'effet de la température sur l'iDMI pour les échantillons à base de $Pt/Co/MgO$ sous un chauffage de 36°. Les mesures ont également démontré l'impossibilité de revenir vers l'état initial après chauffage, indiquant probablement un changement de structure comme un effet de recuit.

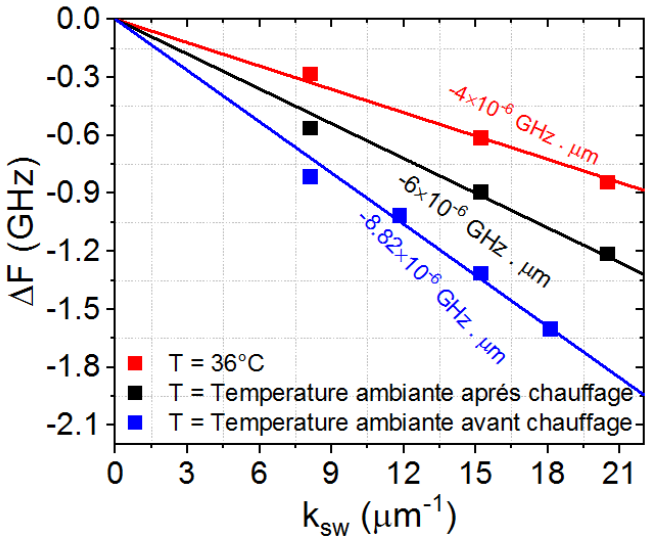

FIGURE III – Dépendance de ΔF en fonction de k_{sw} pour les échantillons à base de $Pt/Co/MgO$ avant, pendent et après chauffage à 36° mesurée par BLS.

Publications

Les résultats présentés dans ce manuscrit ont été publiés :

- Ibtissem Benguettat-El Mokhtari, Y. Roussigné, S.M. Chérif, S. Auffret, C. Baraduc, H. Béa, and M. Belmeguenai "Interfacial Dzyaloshinskii-Moriya Interaction, Perpendicular Magnetic Anisotropy and damping in CoFeB/oxide-based systems",*IEEE Transactions on Magnetics PP(99) :1-1*, 2021.
- Ibtissem Benguettat-El Mokhtari,Y. Roussigné, S.M. Chérif, A. Stashkevich, S. Auffret, C. Baraduc, M. Gabor, H. Béa, and M. Belmeguenai, "Interface phenomena in ferromagnet/TaOx-based systems : Damping, perpendicular magnetic anisotropy, and Dzyaloshinskii-Moriya interaction", *Physical Review Materials 4(12)*, 2020.
- Ibtissem Benguettat-El Mokhtari, D. Ourdani,Y. Roussigné, R.B. Mos, M.Nasui, S.M. Chérif, A. Stashkevich, M. Gabor, and M. Belmeguenai, "investigation of the correlation between perpendicular magnetic anisotropy, spin mixing conductance and interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction in CoFeB-based systems", *Journal of Physics D : Applied Physics 53(50)*, 2020.
- Ibtissem Benguettat-El Mokhtari, D. Ourdani,Y. Roussigné, R.B. Mos, M.Nasui,F. Kail, L. Chahed, S.M. Chérif, A. Stashkevich, M. Gabor, and M. Belmeguenai "perpendicular magnetic anisotropy and interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction in as grown and annealed X/Co/Y ultrathin systems", *Journal of Physics Condensed Matter 32(49)*, 2020.
- Ibtissem Benguettat-EL Mokhtari, Y. Roussigné, T. Jr. Petrisor, F. Zighem, F. Kail, L. Chahed, V. Pierron, L. Méchin, M. Gabor, M. Belmeguenai "spin Pumping and Magnetic Anisotropy in $La_{2/3}\,Sr_{1/3}\,MnO_3$/Pt Systems", *Phys. Status Solidi B, 257, 2000265* , 2020.
- Ibtissem. Benguettat-El Mokhtari, A. Mourkas, P. Ntetsika, I. Panagiotopoulos, Y. Roussigné, S. M. Cherif, A. Stashkevich, F. Kail, L. Chahed, and M. Belmeguenai "interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction, interface-induced damping and perpendicular magnetic anisotropy in Pt/Co/W based multilayers", *J. Appl. Phys. 126, 133902* , 2019.

Bibliographie

[1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas. Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)CrMagnetic Superlattices. *Phys. Rev. Lett.*, 61(21) :2472–2475, 1988.

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

[3] J. E. Hirsch. Spin hall effect. *Phys. Rev. Lett.*, 83, 1999.

[4] Igor Dzyaloshinsky. A thermodynamic theory of "weak" ferromagnetism of antiferromagnetics. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 4(4) :241–255, 1958.

[5] Tôru Moriya. Anisotropic superexchange interaction and weak ferromagnetism. *Physical Review*, 120(1) :91–98, 1960.

[6] William Fuller Brown. Theory of the approach to magnetic saturation. *Physical Review*, 58(1) :736–743, 1940.

[7] René Pauthenet. *Théorie du magnétisme.* 1983.

[8] M. Cyrot, M. Décorps, B. Diény, O. Geoffroy, D. Gignoux, P. Lethuillier, P. Molho, J-C. Peuzin, J. Pierre, J-L. Porteseil, P. Rochette, M-F. Rossignol, M. Schlenker, C. Segebarth, Y. Souche, E. Trémolet de Lacheisserie, J-P. Yonnet, C. Lacroix, and J. Laforest. *Magnétisme, I-Fondements.* 2000.

[9] Université de Californie, editor. *Inorganic chemistry*, chapter The Effects of Temperature on Magnetic Moment. Libretexts chemistry, 2021.

[10] P. W. Anderson. Antiferromagnetism. theory of suyerexchange interaction. *Physical Review*, 79(2) :350–356, 1950.

[11] John B. Goodenough. Theory of the role of covalence in the perovskite-type manganites (la,m(ii)) mn. *Physical Review*, 100(2) :564–573, 1955.

[12] John B. Goodenough. An interpretation of the magnetic propreties of the perovskite-type mixed crystals la_{1-x} sr_x co $o_{3-\lambda}$. *J. Phys. Chw. Solids*, 6 :287–297, 1958.

[13] Junjiro Kanamori. Superexchange interaction and symmetry propreties of electron orbitals. *J. Phys. Chem. Solids*, 10 :87–98, 1959.

[14] M. A. Ruderman and C. Kittel. Indirect exchange coupling of nuclear magnetic moments by conduction electrons. *Physical Review*, 96(1) :99–102, 1954.

[15] Tadao Kasuya. A theory of metallic ferro- and antiferromagnetism on zener's model. *Progress of Theoretical Physics*, 16(1) :45–57, 1956.

[16] Kei Yosida. Magnetic propreties of cu-mn alloys. *Physical Review*, 106(5) :893–898, 1957.

[17] P. J. H. Bloemen. Interlayer exchange coupling and giant magnetoresistance in mganetic multilayers. *ACTA PHYSICA POLONICA A*, 89(3) :277–299, 1996.

[18] S. S. P. Parkin and D. Mauri. Spin engineering : Direct determination of the ruderman-kittel-kasuya-yosida far-aeld range function in ruthenium. *Physical Review B*, 44(13) :7131–7134, 1991.

[19] J.H.Van Vleck. On the anisotroy of cubic ferromagnetic crystals. *Physical Review*, 52 :1178–1198, 1937.

[20] Louis Néel. Anisotropie magnétique superficielle et structures d'orientation. *Le journal de physique et de radium*, 15 :225–239, 1954.

[21] U. Gradmann and J. Müller. On the anisotroy of cubic ferromagnetic crystals. *Phys. Status Solidi*, 27 :313–324, 1968.

[22] M. T. Johnson, P. J. H. Bloemen, F. J. A. den Broeder, and J. J. de Vries. Magnetic anisotropy in metallic multilayers. *Rep. Prog. Phys*, 59 :1409–1458, 1996.

[23] F.J.A. den Broeder, W. Hoving, and P.J.H. Bloemen. Magnetic anisotropy of multilayers. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 93 :562–570, 1991.

[24] Charles Kittel. Physical theory of ferromagnetic domains. *Reviews of modern Physics*, 21(4) :541–583, 1949.

[25] L. Laudau and E. Lifshitz. On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies. *Physikalische Zeitschrift der Sowjetunion*, 8 :153–169, 1935.

[26] Thomas L Gilbert. A phenomenological theory of damping in ferromagnetic materials. *IEEE Transactions on Magnetics*, 40(6) :3443–3449, 2004.

[27] Carlos J. García-Cervera. Numerical micromagnetics : A review. *Boletin de la Sociedad Espanola de Matematica Aplicada*, 39 :1–33, 2007.

[28] Ivan Cimrák. A survey on the numerics and computations for the landau-lifshitz equation of micromagnetism. *Arch Comput Methods Eng*, 15 :277–309, 2008.

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

[30] U. Atxitia1, D. Hinzke, and U. Nowak. Fundamentals and applications of the landau–lifshitz–bloch equation. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 50 :1–23, 2016.

[31] F. Bloch. Zur theorie des ferromagnetismus. *Z. Phys.*, 61 :206–2019, 1930.

[32] R. W. Damon and J. R. Eshbach. Magnetostatic modes of a ferromagnetic slab. *Journal of Applied Physics*, 31(5) :104S–105S, 1961.

[33] S.O. Demokritov, B. Hillebrands, and A.N. Slavin. Brillouin light scattering studies of confined spin waves : linear and colinear confinement. *Physics Reports*, 348 :441–489, 2001.

[34] Remy Soucaille. *De l'importance de l'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya sur la dynamique sous champ des parois de domaines magnétiques dans des films désordonnés*. PhD thesis, Université Paris-Saclay, 2016.

[35] J. Jorzick, S. O. Demokritov, C. Mathieu, B. Hillebrands, B. Bartenlian, C. Chappert, F. Rousseaux, and A. N. Slavin. Brillouin light scattering from quantized spin waves in micron-size magnetic wires. *Physical Review B*, 60(22) :15194–15200, 1999.

[36] S. Azzawi, A. T. Hindmarch, and D. Atkinson. Magnetic damping phenomena in ferromagnetic thin-films and multilayers. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 50(473001), 2017.

[37] J-H. Moon, T-Y. Lee, and C-Yeol. You. Relation between switching time distribution and damping constant in magnetic nanostructure. *Physical Review Letters*, 8(13288), 2018.

[38] A. Hirohata, K. Yamada, Y. Nakatani, I. L. Prejbeanu, B. Diény, P. Pirro, and B. Hillebrands. Review on spintronics : Principles and device applications. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 509 :1–28, 2020.

[39] A. Capua, S h. Yang, Timothy Phung, and S. S. P. Parkin. Determination of intrinsic damping of perpendicularly magnetized ultrathin films from time-resolved precessional magnetization measurements. *Physical Review B*, 92(224402), 2015.

[40] S. O. Demokritov and V. E. Demidov. Micro-brillouin light scattering spectroscopy of magnetic nanostructures. *IEEE Transactions on Magnetics*, 44(1) :6–12, 2008.

[41] V. Kambersky. on the landau-lifshitz relaxation in ferromagnetic metals. *Can. J. Physi.*, 48(24) :2906–2911, 1970.

[42] M. C. Hickey and J. S. Moodera. Origin of intrinsic gilbert damping. *Physical Review Letters*, 102(137601), 2009.

[43] V. Korenman and R. E. Prange. Anomalous damping of spin waves in magnetic metals. *Physical Review B*, 6(7) :2769–2777, 1972.

[44] K. Lenz, H. Wende, W. Kuch, K. Baberschke, K. Nagy, and A. Janossy. Two-magnon scattering and viscous gilbert damping in ultrathin ferromagnets. *Physical Review B*, 73 :144424, 2006.

[45] D. L. Mills and S. M. Rezende. *Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures II*, chapter Spin damping in ultrathin magnetic films, pages 27–59. Springer, 2003.

[46] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. Metin, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, P. Baumgart, , and D. R. Wilhoit. Magnetotransport properties of magnetically soft spin-valve structures. *J. Appl. Phys.*, 69(8) :4774–4779, 1991.

[47] J. R. Childress and R. E. Fontana Jr. Magnetic recording read head sensor technology. *C. R. Physique*, 6 :997–1012, 2005.

[48] M. Julliere. Tunneling between ferromagnetic films. *Physics letters*, 54A(3) :225–226, 1975.

[49] T. Miyazaki and N. Tezuka. Giant magnetic tunneling effect in fe/al_2o_3/fe junction. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 139 :L231–L234, 1995.

[50] J. Mathon and A. Umerski. Theory of tunneling magnetoresistance of an epitaxial fe/mgo/fe junction. *Physical Review B*, 63 :1–4, 2001.

[51] 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 annealedat high temperature. *Appl. Phys. Lett.*, 93 :1–3, 2008.

[52] Louis grenet. *Injection de spins dans les semi-conducteurs.* PhD thesis, Université de Grenoble, 2010.

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

[54] S. Mao, Y. Chen, F. Liu, X. Chen, B. Xu, P. Lu, M. Patwari, H. Xi, C. Chang, B. Miller, D. Menard, B. Pant, J. Loven, K. Duxstad, S. Li, Z. Zhang, A. Johnston, R. Lamberton, M. Gubbins, T. McLaughlin, J. Gadbois, J. Ding, B. Cross, S. Xue, and P. Ryan. Commercial tmr heads for hard disk drives :characterization and extendibility at 300 gbit/in2. *IEEE TRANSACTIONS ON MAGNETICS*, 42(2) :97–102, 2006.

[55] J.G. Zhu and C. Park. Magnetic tunnel junction. *Materialstoday*, 2006.

[56] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B.A. Gurney, D. R. Wilhoit, and D. Mauri. Giant magneto resistance in soft ferromagnetic multilayers. *Physical Review B*, 43(1) :1297–1300, 1991.

[57] University of Nebraska–Lincoln. Application of gmr.

[58] S. Bhatti, R. Sbiaa, A. Hirohata, H. Ohno, S. Fukami, and S.N. Piramanayagam. Spintronics based random access memory : a review. *Materiels Today*, pages 1–18, 2017.

[59] C. Chappert, A. Fert, and F. nguyen Van dau. The emergence of spin electronics in data storage. *Nature materials*, 6 :813–823, 2007.

[60] A. D. Kent and D. C. Worledge. A new spin on magnetic memories. *Nature nanotechnology*, 10 :187–191, 2015.

[61] B. N. Engel, J. Akerman, B. Butcher, R. W. Dave, M. DeHerrera, M. Durlam, G. Grynkewich, J. Janesky, S. V. Pietambaram, N. D. Rizzo, J. M. Slaughter, K. Smith, J. J. Sun, and S. Tehrani. A 4-mb toggle mram based on a novel bit and switching method. *IEEE transactions on magnetics*, 44(1) :132–136, 2005.

[62] S. Peng, D. Zhu, J. Zhou, B. Zhang, A. Cao, M. Wang, W. Cai, K. Cao, and W. Zhao. Modulation of heavy metal/ferromagnetic metal for high-performance spintronic devices. *Adv. Electron. Mater.*, 5 :1–30, 2019.

[63] A. Manchon and A. Belabbes. *Solid state physics*, volume 68, chapter Spin-Orbitronics at Transition Metal Interfaces, pages 1–89. ELSEVIER, 2017.

[64] A. Fert, V. Cros, and J. Sampaio. Skyrmions on the track. *Nature Nanotechnology*, 8 :152–156, 2013.

[65] A. Soumyanarayanan, N. Reyren, A. Fert, and C. Panagopoulos. Emergent phenomena induced by spin–orbit coupling at surfaces and interfaces. *Nature*, 539 :509–517, 2016.

[66] A. Manchon, H. C. Koo, J. Nitta, S. M. Frolov, and R. A. Duine. New perspectives for rashba spin–orbit coupling. *Nature Materials*, 14 :871–882, 2015.

[67] P. F. Carcia, A. D. Meinhaldt, and A. Suna. Perpendicular magnetic anisotropy in pd/co thin film layered structures. *Appl. Phys. Lett.*, 47(2) :178–180, 1985.

[68] P. F. Carcia. Perpendicular magnetic anisotropy in pd/co and pt/co thin film layered structures. *J. App. Phys.*, 63(10) :5066–5073, 1988.

[69] F. J. A. den Broeder, D. Kuiper, A. P. van de Mosselaer, and W. Hoving. Perpendicular magnetic anisotropy of co/au multilayers induced by interface sharpening. *Physical Review Letters*, 60(26) :2769–2772, 1988.

[70] M. Sakurai, T. Takahata, and I. Moritani. Magnetic and magneto-optical properties of co/ru multilayers. *J. Magn. Soc. Japan.*, 15 :411–414, 1991.

[71] N. Nakajima, T. Koide, T. Shidara, H. Miyauchi, H. Fukutani, A. Fujimori, K. Iio, T. Katayama, M. Nyvlt, and Y. Suzuki. Magnetic and magneto-optical properties of co/ru multilayers. *Phys.Rev. Lett.*, 81 :5229–5232, 1998.

[72] A. Manchon, C. Ducruet, L. Lombard, S. Auffret, B. Rodmacq, B. Dieny, S. Pizzini, and J. Vogel an et al. Analysis of anisotropy crossover due to oxygen in pt/co/mox trilayers. *J. Appl. Phys.*, 104, 2008.

[73] S. Monso, B. Rodmacq, S. Auffret, G. Casali, F. Fettar, B. Gilles, B. Dieny, and P. Boyer. Crossover from in-plane to perpendicular anisotropy in pt/cofe/alox sandwiches as a function of al oxidation : A very accurate control of the oxidation of tunnel barriers. *Aplied Physics Letters*, 80(22) :4157–4159, 2002.

[74] H. X. Yang, M. Chshiev, B. Dieny, J. H. Lee, A. Manchon, and K. H. Shin. First-principles investigation of the very large perpendicular magnetic anisotropy at fe/mgo and co/mgo interfaces. *Physical Reiview B*, 84, 2011.

[75] M. Weisheit, S. Fähler, A. Marty, Y. Souche, C. Poinsignon, and D. Givord. Electric field–induced modification of magnetism in thin-film ferromagnets. *Science*, 315 :349–350, 2007.

[76] Y. Shiota, T. Maruyama, T. Nozaki, T. Shinjo1, M. Shiraishi, and Y. Suzuki. Voltage-assisted magnetization switching in ultrathin $fe_{80}co_{20}$ alloy layers. *Applied Physics Express*, 2 :063001, 2009.

[77] S. N. Piramanayagama. Perpendicular recording media for hard disk drives. *Journal of Applied Physics*, 102(011301), 2007.

[78] Bharati Tudu and Ashutosh Tiwari. Recent developments in perpendicular magnetic anisotropy thin films for data storage applications. *Vaccum*, 146 :329–341, 2017.

[79] S. Iwasaki. Perpendicular magnetic recording-its development and realization. *Proc. Jpn. Acad. Ser.*, 85(2) :37–54, 2009.

[80] D. Weller and A. Moser. Thermal effect limits in ultrahigh-density magnetic recording. *IEEE Transactions on magnetics*, 35(6) :4423–4439, 1999.

[81] D. Apalkov, B. Dieny Fellow, and J. M. Slaughte. Magnetoresistive random access memory. *Proceedings of the IEEE*, 104(10), 2016.

[82] P. Barla, V-K. Joshi, and S. Bhat. Spintronic devices : a promising alternative to cmos devices. *Journal of Computational Electronics*, 20 :805–837, 2021.

[83] Sakiko Fukushima. Tetrataenite, an excellent magnetic material, •.

[84] A. Tonomura, X. Yu, K. Yanagisawa, T. Matsuda, Y. Onose, N. Kanazawa, H. S. Park, and Y. Tokura. Real-space observation of skyrmion lattice in helimagnet mnsi thin samples. *Nano Lett.*, 12 :1673–1677, 2012.

[85] X. Z. Yu, Y. Onose, N. Kanazawa, J. H. Park, J. H. Han, Y. Matsui, N. Nagaosa, and Y. Tokura. Real-space observation of a two-dimensional skyrmion crystal. *Nature*, 465 :901–904, 2010.

[86] J. Cho, N. H. Kim, S. Lee, J. S. Kim, R. Lavrijsen, A. Solignac, Y. Yin, D. S. Han, N. J.J. van Hoof, H. J.M. Swagten, B. Koopmans, and C. Y. You. Thickness dependence of the interfacial dzyaloshinskii–moriya interaction in inversion symmetry broken systems. *Nature Communications*, 6, 2015.

[87] A. Crépieux and C. Lacroix. Dzyaloshinsky–moriya interactions induced by symmetrybreaking at a surface. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 182 :341–349, 1998.

[88] A. Fert. Magnetic and transport properties of metallic multilayers. *Materials Science Forum*, page 439–480, 1990.

[89] M. Bode, M. Heide, K. Von Bergmann, P. Ferriani, S. Heinze, G. Bihlmayer, A. Kubetzka, O. Pietzsch, S. Blügel, and R. Wiesendanger. Chiral magnetic order at surfaces driven by inversion asymmetry. *447*, Nature(7141) :190–193, 2007.

[90] A. Fert and Peter M. Levy. Role of anisotropic exchange interactions in determining the properties of spin-glasses. *Physical Review Letters*, 44(23) :1538–1541, 1980.

[91] A. Kundu and S. Zhang. Dzyaloshinskii-moriya interaction mediated by spin-polarized band with rashba spin-orbit coupling. *Physical Review B*, 92(094434), 2015.

[92] K. Everschor-Sitte, J. Masell, R. M. Reeve, and M. Kläui. Perspective : Magnetic skyrmions—overview of recent progress in an active research field. *Journal of Applied Physics*, 124(240901), 2018.

[93] C. Moreau-Luchaire, C.Moutafis, N.Reyren, J. Sampaio, C. A. F. Vaz, N.Van Horne, K. Bouzehouane, K. Garcia, C. Deranlot, P. Warnicke, P. Wohlhüter, J.-M. George, M. Weigand, J. Raabe, V. Cros, and A. Fert. Additive interfacial chiral interaction in multilayersfor stabilization of small individual skyrmions at room temperature. *Nature nanotechnology*, 11 :444–448, 2016.

[94] H. Yang, O. Boulle, V. Cros, A. Fert, and M. Chshiev. Controlling dzyaloshinskii-moriya interaction via chirality dependent atomic-layer stacking, insulator capping and electric field. *Scientific Reports*, 8 :12356, 2018.

[95] M. Heide, G. Bihlmayer, and S. Blügel. Dzyaloshinskii-moriya interaction accounting for the orientation of magnetic domains in ultrathin films : Fe/w(110). *Physical Review B*, 78 :40403R, 2008.

[96] H. Yang, A. Thiaville, S. Rohart, A. Fert, and M. Chshiev. Anatomy of dzyaloshinskii-moriya interaction at co/pt interfaces. *Physical Review Letters*, 115 :267210, 2015.

[97] K. Yamamoto, A. M. Pradipto, K. Nawa, T. Akiyama, T. Ito, T. Ono, and K. Nakamura. Interfacial dzyaloshinskii-moriya interaction and orbital magnetic moments ofmetallic multilayer films. *AIP Advances*, 7 :056302, 2017.

[98] Y. Ishikuro, M. Kawaguchi, N. Kato, Y. C Lau, and M. Hayash. Dzyaloshinskii-moriya interaction and spin-orbit torque at the ir/co interface. *Physical Review B*, 99 :134421, 2019.

[99] J. Yu, X. Qiu, Y. Wu, J. Yoon, P. Deorani, J. M. Besbas, A. Manchon, and H. Yang. Spin orbit torques and dzyaloshinskii-moriya interaction in dual-interfaced co/ni multilayers. *Scientific reports*, 6 :32629, 2016.

[100] A. Belabbes, G Bihlmayer, F. Bechstedt, S. Blügel, and A. Manchon. Hund's rule-driven dzyaloshinskii moriya interaction at 3d/5d interfaces. *Physical Review Letters*, 117 :247202, 2016.

[101] H. T. Nembach, J. M. Shaw, M. Weiler†, E. Jué, and T. J. Silva. Linear relation between heisenberg exchange and interfacial dzyaloshinskii–moriya interaction in metal films. *Nature Physics*, 11 :825–829, 2015.

[102] M. Belmeguenai, Y. Roussigne, H. Bouloussa, S. M. Cherif, and A. Stashkevich. Thickness dependence of the dzyaloshinskii-moriya interaction in co2feal ultrathin films : Effects of annealing temperature and heavy-metal material. *Physical Review applied*, 9(044044), 2018.

[103] Ariam Mora-Hernandez. *Magnetic Phenomena in Interface-Engineered Multilayer Thin films*. PhD thesis, University of Durham, Durham, 2020.

[104] A. S. Samardak, A. V. Davydenko, A. G. Kolesnikov, A. Yu. Samardak, A. G. Kozlov, B. Pal1, A. V. Ognev, A. V. Sadovnikov, S. A. Nikitov, A. V. Gerasimenko, I. H Cha, Y. J. Kim, G. W. Kim, O. A. Tretiakov, and Y. K. Kim. Enhancement of perpendicular magnetic anisotropy and dzyaloshinskii–moriya interaction in thin ferromagnetic films by atomic-scale modulation of interfaces. *NPG Asia Materials*, 12(51), 2020.

[105] A. Samardak, A. Kolesnikov, M. Stebliy, L. Chebotkevich, A. Sadovnikov, S. Nikitov, A. Talapatra, J. Mohanty, and A. Ognev. Enhanced interfacial dzyaloshinskii-moriya interaction and isolated skyrmions in the inversion-symmetry-broken ru/co/w/ru films. *Applied physics letter*, 112(192406), 2018.

[106] Caner Deger. Strain-enhanced dzyaloshinskii–moriya interaction at co/pt interfaces. *Scientific reports*, 10(12314), 2020.

[107] N. S. Gusev, A. V. Sadovnikov, S. A. Nikitov, M. V. Sapozhnikov, and O. G. Udalov. Manipulation of the dzyaloshinskii–moriya interaction in co/pt multilayers with strain. *Phys. Rev. Lett.*, 124(157202), 2020.

[108] M. Arora, J. M. Shaw, and H. T. Nembach. Variation of sign and magnitude of the dzyaloshinskii-moriya interaction of a ferromagnet with an oxide interface. *Physical Review B*, 101(054421), 2020.

[109] H. T. Nembach, E. Jué, E.R. Evart, and J. M. Shaw. Correlation between dzyaloshinskii-moriya interaction and orbital angular momentum at an oxide-ferromagnet interface. *Physical Review B*, 101 :020409, 2020.

[110] Aurelien Manchon. *Spintronic 2D Materials*, chapter Rashba spinorbit coupling in two-dimensional systems, pages 25–64. Elsevier, Dordrecht, 2019.

[111] K-W. Kim, H-W. Lee, K-J. Lee, and M. D. Stiles. Chirality from interfacial spin-orbit coupling effects in magnetic bilayers. *Physical Review Letters*, 111(216601), 2013.

[112] M. Schott, L. Ranno, H. Béa, C. Baraduc, S. Auffret, and A. Bernand-Mantel. Electric field control of interfacial dzyaloshinskii-moriya interaction in pt/co/alox thin films. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 520(167122), 2021.

[113] T. Srivastava, M. Schott, R. Juge, V. Krizakova, M. Belmeguenai, Y. Roussigné, A. Bernand-Mantel, L. Ranno, S-M. Chérif S. Pizzini, A. Stashkevich, S. Auffret, O. Boulle, G. Gaudin, M. Chshiev, C. Baraduc, and H. Béa. Large-voltage tuning of dzyaloshinskii–moriya interactions : A route toward dynamic control of skyrmion chirality. *Nano Lett.*, 18(8) :4871–4877, 2018.

[114] H. Yang, G. Chen nd A. C. Cotta, A. T. N'Diaye, S. A. Nikolaev, E. A. Soares, W. A. A. Macedo, K. Liu, A. K. Schmid, A. Fert, and M. Chshiev. Significant dzyaloshinskii–moriya interaction at graphene–ferromagnet interfaces due to the rashba effect. *nature materiels*, 17 :605–609, 2018.

[115] A. Belabbes, G. Bihlmayer, S. Blügel, and A. Manchon. Oxygen-enabled control of dzyaloshinskii-moriya interaction in ultra-thin magnetic films. *Scientif Reports*, 6 :24634, 2016.

[116] M. D. DeJong and K. L. Livesey. Analytic theory for the switch from bloch to néel domain wall in nanowireswith perpendicular anisotropy. *Physical Review B*, 92 :214420, 2015.

[117] G. Chen, T. Ma, A. T. NDiaye, H. Kwon, C. Won, Y. Wu, and A. K. Schmid. Tailoring the chirality of magnetic domain walls by interface engineering. *Nature communications*, 4(2671), 2013.

[118] S. McVitie, S. Hughes, K. Fallon, S. McFadzean, D. McGrouther, M. Krajnak, W. Legrand, D. Maccariello, S. Collin, K. Garcia, N. Reyren, V. Cros, A. Fert, K. Zeissler, and C. H. Marrows. A transmission electron microscope study of néel skyrmion magnetic textures in multilayer thin film systems with large interfacial chiral interaction. *Scientif reports*, 8(5703), 2018.

[119] F. Ajejas, V. Křižáková, D. de Souza Chaves, J. Vogel, P. Perna, R. Guerrero, A. Gudin, J. Camarero, and S. Pizzini. Tuning domain wall velocity with dzyaloshinskii-moriya interaction. *Applied Physics Letters*, 111(20) :202402, 2017.

[120] L. Herrera Diez, M. Voto, A. Casiraghi, M. Belmeguenai, Y. Roussigné, G. Durin, A. Lamperti, R. Mantovan, V. Sluka, V. Jeudy, T. Liu, A. Stashkevich, M. Chérif, J. Langer, B. Ocker, L. Lopez-Diaz, and D. Ravelosona. Enhancement of the dzyaloshinskii-moriya interaction and domain wall velocitythrough interface intermixing in ta/cofeb/mgo. *Physical Review B*, 99(054431), 2019.

[121] K. Shahbazi, J. V. Kim, H. T. Nembach, J. M. Shaw, A. Bischof, M. D. Rossell, V. Jeudy, T. A. Moore, and C. H. Marrow. Domain-wall motion and interfacial dzyaloshinskii-moriya interactionsin pt/co/ir(tir)/ta multilayers. *Physical Review B*, 99(094409), 2019.

[122] O. Boulle, S. Rohart, L. D. Buda-Prejbeanu, E. Jue, I. M. Miron, S. Pizzini, J. Vogel, G. Gaudin, and A. Thiaville. Domain wall tilting in the presence of the dzyaloshinskii-moriya interactionin out-of-plane magnetized magnetic nanotracks. *Physical Review Letters*, 111(217203), 2013.

[123] F. Zhuo and Z. Z. Sun. Field-driven domain wall motion in ferromagnetic nanowires with bulk dzyaloshinskii-moriya interaction. *Scientific Reports*, 6(25122), 2016.

[124] D. A. Allwood, G. Xiong, C. C. Faulkner, D. Atkinson, D. Petit, and R. P. Cowburn. Magnetic domain-wall logic. *Science*, 309(1688), 2005.

[125] Stuart S. P. Parkin, Masamitsu Hayashi, and Luc Thomas. Magnetic domain-wall racetrack memory. *Science*, 320 :190–194, 2008.

[126] J-H. Moon, S-M. Seo, K-J. Lee, K-W. Kim, J. Ryu, H-W. Lee, R. D. McMichael, and M. D. Stiles. Spin-wave propagation in the presence of interfacial dzyaloshinskii-moriya interaction. *Physical Review B*, 88(184404), 2013.

[127] Yan Zhou. Magnetic skyrmions : intriguing physics and new spintronic device concepts. *National Science Review*, 6, 2018.

[128] Albert Fert, Nicolas Reyren, and Vincent Cros. Magnetic skyrmions : advances in physics and potential applications. *Nature Reviews : materials*, 2(17031), 2017.

[129] T. H. R. Skyrme. A unified field theory of mesons and baryons. *Nuclear Physics*, 31 :556–569, 1962.

[130] Keng-Yuan Meng. *Magnetic Skyrmions in Oxide Thin Film Heterostructures*. PhD thesis, The Ohio State University, Ohio, 2019.

[131] S. Muhlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii, and P. Boni. Skyrmion lattice in a chiral magnet. *Science*, 323 :915–919, 2009.

[132] X. Z. Yu, N. Kanazawa, Y. Onose, K. Kimoto, W. Z. Zhang, S. Ishiwata, Y. Matsui, and Y. Tokura. Near room-temperature formation of a skyrmioncrystal in thin-films of the helimagnet fege. *Nature Materials*, 10 :106–109, 2011.

[133] S. Heinze, K. von Bergmann, M. Menzel, J. Brede, A. Kubetzka, R. Wiesendanger, G. Bihlmayer, and S. Blügel. Spontaneous atomic-scale magnetic skyrmion lattice in two dimensions. *Nature Physics*, 7(9) :713–718, 2011.

[134] N. Romming, C. Hanneken, M. Menzel, J. E. Bickel, B. Wolter, K. von Bergmann, A. Kubetzka, and R. Wiesendanger. Writing and deleting single magnetic skyrmions. *Science*, 341(6146) :636–639, 2013.

[135] W. Jiang, P. Upadhyaya, W. Zhang, G. Yu, M. B. Jungfleisch, F. Y. Fradin, J. E. Pearson, Y. Tserkovnyak, K. L. Wang, O. Heinonen, S. G. E. te Velthuis, and A. Hoffmann. Blowing magnetic skyrmion bubbles. *Science*, 349(6245) :283–286, 2015.

[136] S. Woo, K. Litzius, B. Krüger, M-Y. Im, L. Caretta, K. Richter, M. Mann, A. Krone, R. M. Reeve, M. Weigand, P. Agrawal, I. Lemesh, M-A. Mawass, P. Fischer, M. Klaui, and G. S. D. Beach. Observation of room-temperature magnetic skyrmions and their current-driven dynamics in ultrathin metallic ferromagnets. *Nature Materials*, 15(5) :501–506, 2016.

[137] O. Boulle, J. Vogel, H. Yang, S. Pizzini, D. de Souza Chaves, A. Locatelli, T. Onur Mentes, A. Sala, L. D. Buda-Prejbeanu, O. Klein, M. Belmeguenai Y. Roussigné, A. Stashkevich, S. M. Chérif, L. Aballe, M. Foerster, M. Chshiev, S. Auffret, I. M. Miron, and G. Gaudin. Room-temperature chiral magnetic skyrmions in ultrathin magnetic nanostructures. *Nature Nanotechnology*, 11(5) :449–454, 2016.

[138] X. Zhang, Y. Zhou, K. M. Song, T-E Park, J. Xia, M. Ezawa, X. Liu, W. Zhao, G. Zhao, and S. Woo. Skyrmion-electronics : writing, deleting, reading and processing magnetic skyrmions toward spintronic applications. *J. Phys. : Condens. Matter*, 32 :143001, 2020.

[139] D. Suess, C. Vogler, F. Bruckner, P. Heistracher F. Slanovc, and C. Albert. Spin torque efficiency and analytic error rate estimates of skyrmion racetrack memory. *Scientif Reports*, 9 :4827, 2019.

[140] S. Husain, N. Sisodia, A. K. Chaurasiya, A. Kumar, J. P. Singh, B. S. Yadav, S. Akansel, K. H. Chae, A. Barman, P. K. Muduli, P. svedlindh, and S. Chaudhary. observation of skyrmions at room temperature in co2feal heusler alloy ultrathin film heterostructures. *Scientific reports*, 9(1085), 2019.

[141] A.O. Mandru, O. Yıldırım, R. Tomasello, P. Heistracher, M. Penedo, A. Giordano, D. Suess, G. Finocchio, and H. J. Hug. Coexistence of distinct skyrmion phases observed in hybrid ferromagnetic/ferrimagnetic multilayers. *Nature communication*, 11 :6365, 2020.

[142] John E Mahan. *Physical Vapor Deposition of Thin Films*. Wiley-Interscience Publication, 2000.

[143] G. Shimon A.O. Adeyeye. *Handbook of Surface Science*, chapter Growth and Characterization of Magnetic Thin Film and Nanostructures, pages 1–41. Elseier, 2016.

[144] Mohammed Shaat. Effects of processing force on performance of nano-resonators produced by magnetron sputtering deposition. *Physica E : Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 104 :42–48, 2018.

[145] H. M. Smith and A. F. Turner. Vacuum deposited thin films using a ruby laser. *Applied optics*, 4(1) :147–148, 1965.

[146] M. A. Hameed. Physical properties of nanostructured silicon dioxide prepared by pulsed-laser deposition. *Journal of Physical Vapor Deposition Science and Technology*, 9(10) :451–454, 2015.

[147] Marco Malinverni. *Optimization of NH_3-MBE grown p-doped (Al)GaN layers and their implementation in long wavelength laser diodes and tunnel junctions.* PhD thesis, Ecole polythechnique fédérale de Lausanne, Suisse, 2015.

[148] J. Epp. *Materials Characterization Using Nondestructive Evaluation (NDE) Methods*, chapter X-ray diffraction (XRD)techniques for materials characterization, pages 81–124. Elsevier, 2016.

[149] H. Kiessig. Utersuchungen zur totalreflexion von rontgenstarhlen. *Ann. Phys.*, 10 :715–768, 1931.

[150] Phenwisa Niyamakom. *Influence of deposition parameterson morphology, growth and structure ofcrystalline and amorphous organic thin films.* PhD thesis, Université RWTH Aachen, Allemagne, 2008.

[151] Simon Foner. Versatile and sensitive vibrating-sample magnetometer. *Review of Scientific Instruments*, 30(7) :548–557, 1959.

[152] Anjan Barman and Arabinda Haldar. Time domain study of magnetization dynamics in magnetic thin films and micro and nanostructures. *solid states physics*, 64 :1–108, 2014.

[153] P. S. Keatley, V. V. Kruglyak, P. Gangmei, and R. J. Hicken. Ultrafast magnetization dynamics of spintronic nanostructures. *Phil. Trans. R. Soc. A*, 369 :3115–3135, 2011.

[154] E. Montoya, T. Sebastian, H. Schultheiss, B. Heinrich, R. E. Camley, and Z. Celinski. *Magnetism of Surfaces, Interfaces, and Nanoscale Materials.*, volume 5, chapter Magnetization Dynamics, pages 113–167. Elsevier, 2016.

[155] K. J. Kennewell, D. C. Crew, M. J. Lwin, R. C. Woodward, S. Prasad, and R. L. Stamps. Interpretation of magnetisation dynamics using inductive magnetometry in thin films. *Surf. Sci.*, 601(24) :5766–5769, 2007.

[156] C. Stamm, N. Pontius, T. Kachel, M. Wietstruk, and H. A. Dürr. Femtosecond x-ray absorption spectroscopy of spin and orbital angular momentum in photoexcited ni films during ultrafast demagnetization. *Phys. Rev. B*, 81(104425), 2010.

[157] A. B. Kos, T. J. Silva, and P. Kabos. Pulsed inductive microwave magnetometer. *Review of scientific instruments*, 73(10), 2002.

[158] J. H. E. Griffiths. Anomalous high-frequency resistance of ferromagnetic metals. *Nature*, 158(4019) :670–671, 1946.

[159] C. Kittel. Interpretation of anomalous larmor frequencies in ferromagnetic resonance experiment. *Phys. Rev.*, 71(4) :270–271, 1947.

[160] I. Neudeckera, G. Woltersdorf, B. Heinrich, T. Okuno, G. Gubbiotti, and C.H. Back. Comparison of frequency, field, and time domain ferromagnetic resonance methods. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 307 :148–156, 2006.

[161] M. Belmeguenai, F. Zighem, Y. Roussigné, S-M. Chérif, P. Moch, K. Westerholt, G. Woltersdorf, and G. Bayreuther. Microstrip line ferromagnetic resonance and brillouin light scattering investigations of magnetic properties of co2mnge heusler thin films. *Phys. Rev. B*, 79(024419), 2009.

[162] Hanife Tuzcuoglu. *Corrélation entre les propriétés structurales et magnétiques des couches minces et nanostructures de Co_2FeAl*. PhD thesis, Université Sorbonne Paris Nord, Villetaneuse, France, 2014.

[163] M. Belmeguenai, K. Aitoukaci, F. Zighem, M. S. Gabor, T. Petrisor, R. B. Mos, and C. Tiusan. Investigation of the annealing temperature dependence of the spin pumping in co20fe60b20/pt systems. *Journal of applied physics*, 123(113905), 2018.

[164] N-H. Kim, J. Jung, J. Cho, D-S. Han, Y. Yin, J-S. Kim, H. J. M. Swagten, and C-Y. You. Interfacial dzyaloshinskii-moriya interaction, surface anisotropy energy, and spin pumping at spin orbit coupled ir/co interface. *Applied physics letters*, 108(142406), 2016.

[165] Y. Roussigné, F. Ganot nd C. Dugautier, and P. Moch. Brillouin scattering in co/cu/co and co/au/co trilayers : Anisotropy fields and interlayer magnetic exchange. *Phys. Rev. B*, 52(1), 1995.

[166] M. Belmeguenai, J-P. Adam, Y. Roussignée, S. Eimer, T. Devolder, J-V. Kim, S. M. Cherif, A. Stashkevich, and A. Thiaville. Interfacial dzyaloshinskii-moriya interaction in perpendicularly magnetized pt/co/alox ultrathin films measured by brillouin light spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 91(180405(R)), 2015.

[167] M. Belmeguenai, M. Gabor, Y. Roussignée, A. Stashkevich, S. M. Cherif, F. Zighem, and C. Tiusan. Brillouin light scattering investigation of the thickness dependence of dzyaloshinskii-moriya interaction in co0.5fe0.5 ultrathin films. *Phys. Rev. B*, 93(174407), 2016.

[168] M. Kuepferling, A. Casiraghi, G. Soares, G. Durin, F. Garcia-Sanchez, L. Chen, C. H. Back, C. H. Marrows, S. Tacchi, and G. Carlotti. Measuring interfacial dzyaloshinskii-moriya interaction in ultra thin films, 2020.

[169] JR Sandercock. *In Light Scattering in Solids III*, chapter Trends in brillouin scattering : studies of opaquematerials, supported films, and central modes, pages 173–206. Springer, 1982.

[170] A. Brataas, Y. Tserkovnyak, G. E .W. Bauer, and B. I. Halperin. Spin battery operated by ferromagnetic resonance. *Phys. Rev. B*, 66(060404), 2002.

[171] Y. Tserkovnyak, A. Brataas, G. E .W. Bauer, and B. I Halperin. Nonlocal magnetization dynamics in ferromagnetic heterostructures. *Rev. Mod. Phys*, 77(1375), 2005.

[172] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom. Observation of the spin hall effect in semiconductors. *Rev. Mod. Phys*, 306(1910), 2004.

[173] J. Wunderlich, B. Kaestner, J. Sinova, and T. Jungwirth. Experimental observation of the spin-hall effect in a two-dimensional spin-orbit coupled semiconductor system. *Phys. Rev. Lett.*, 94(047204), 2005.

[174] Saburo Takahashi. *Handbook of Spintronics*, chapter Physical Principles of Spin Pumping, pages 1446–1477. Springer Netherlands, Dordrecht, 2016.

[175] Y. Pu, P. M. Odenthal, R. Adur, J. Beardsley, A. G. Swartz, D. V. Pelekhov, M. E. Flatté, R. K. Kawakami, J. Pelz, P. C. Hammel, and E. Johnston-Halperin. Ferromagnetic resonance spin pumping and electrical spin injection in silicon-based metal-oxide-semiconductor heterostructures. *Physical Review Letters*, 115(246602), 2015.

[176] Y. Tserkovnyak, A. Brataas, and G. E. W. Bauer. Spin pumping and magnetization dynamics in metallic multilayers. *PHYSICAL REVIEW B*, 66(224403), 2002.

[177] Y. Liu, Z. Yuan, R.J.H. Wesselink, A. A. Starikov, and P. J. Kelly. Interface enhancement of gilbert damping from first principles. *Phys. Rev. Lett.*, 113(207202), 2014.

[178] A. Ruiz-Calaforra, T. Bracher, V. Lauer, P. Pirro B. Heinz, M. Geilen, A. V. Chumak, A. Conca, B. Leven, and B. Hillebrands. The role of the non-magnetic material in spin pumping and magnetization dynamics in nife and cofeb multilayer systems. *J. Appl. Phys.*, 117(1639010), 2015.

[179] S. Mizukami, Y. Ando, and T. Miyazaki. Ferromagnetic resonance linewidth for nm/nife/nm films (nm = cu, ta, pd and pt). *J. Magn. Magn. Mater.*, 226(1640), 2001.

[180] B. Heinrich, C. Burrowes, E. Montoya, B. Kardasz, E. Girt, Y.-Y. Song, Y. Sun, and M. Wu. Spin pumping at the magnetic insulator (yig)/normal metal (au) interfaces. *Phys. Rev. Lett.*, 107(066604), 2011.

[181] J. G. Bednorz and K. A. Muller. Possible high t_C superconductivity in the ba-la-cu-. *Z. Phys. B-condensed matter*, 64 :189–193, 1986.

[182] R. von Helmolt, J. Meeker, B. Holzapfel, L. Schultz, and K. Samwer. Giant negative magnetoresistance in perovskite like la2/3 ba1/3 mnox ferromagnetic films. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 71(14), 1993.

[183] M. Bibes and A. Barthelemy. Oxide spintronics. *IEEE TRANSACTIONS ON ELECTRON DEVICES*, 54(5), 2007.

[184] M. Bibes and A. Barthelemy. Ultrathin oxide films and interfaces for electronics and spintronics. *Advances in Physics*, 60(1), 2011.

[185] Q. Qin, S. He, W. Song, P. Yang, Q. Wu, Y. Ping Feng, and J. Chen. Ultralow magnetic damping of perovskite la0.7sr0.3mno3 thin films. *Appl. Phys. Lett.*, 110(112401), 2017.

[186] M. Bowen, M. Bibes, A. Barthelemy, J.-P. Contour, A. Anane, Y. Lemaitre, and A. Fert. Nearly total spin polarization in la2/3sr1/3mno3 from tunneling experiments. *Appl. Phys. Lett.*, 82(2), 2003.

[187] T. D. Nguyen, E. Ehrenfreund, and Z. Valy Vardeny. Spin-polarized light-emitting diode based on an organic bipolar spin valve. *Science*, 337 :204–208, 2012.

[188] R. Geng, H. M. Luong, T. T. Daugherty, L. Hornak, and T. D. Nguyen. A review on organic spintronic materials and devices : Ii. magnetoresistance in organic spin valves and spin organic light emitting diodes. *Journal of Science : Advanced Materials and Devices*, 1 :256–272, 2016.

[189] Jaap Kautz. The structural, magnetic and electricalbehavior of (110) oriented lsmo. Master's thesis, University of twente, Pays-Bas, 2009.

[190] T. D. Nguyen, E. Ehrenfreund, and Z. Valy Vardeny. Structural, magnetic, and electrical properties of single-crystalline $la_{1-x}sr_xmno_3$ $0.4 < x < 0.85$. *Physical Review B*, 66(094410), 2002.

[191] B.W. Chung, E.L. Brosha, F.H. Garzon, I. D. Raistrick, R. J. Houlton, and M. E. Hawley. Growth of highly oriented $la_{0.84}sr_{0.16}mno_3$ perovskite films. *Journal of Materials Research*, 10 :2518–2522, 1995.

[192] Y. Lu, X.W. Li, G.Q. Gong, G. Xiao, A. Gupta P. Lecoeur, J.Z. Sun, Y.Y.Wang, and V.P. Dravid. Large magneto tunneling effect at low magnetic fields in micrometer-scale epitaxial $la_{00.67}sr_{0.33}mno_3$ tunnel junctions. *Phys. Rev. B*, 54(8357), 1996.

[193] B. Wang, L. You, P. Ren, X. Yin, Y. Peng, B. Xia, L Wang, X. Yu, S. M. Poh, P. Yang, G. Yuan, L. Chen, A. Rusydi, and J. Wang. Oxygen-driven anisotropic transport in ultra-thin manganite films. *Nature Communications*, 4(2778), 2013.

[194] F. Tsuia, M. C. Smoak, T. K. Nath, and C. B. Eom. Strain-dependent magnetic phase diagram of epitaxial $la_{0.67}sr_{0.33}mno_3$ thin films. *APPLIED PHYSICS LETTERS*, 76(17) :2421–2423, 2000.

[195] N. F. Muhamad adn R. A. M. Osman, M. S. Idris, and M. N. M. Yasin. Physical and electrical properties of $srtio_3$ and $srzro_3$. *EPJ Web of Conferences*, 162(01052), 2017.

[196] J. M. Rondinelli and N. A. Spaldin. Structure and properties of functional oxide thin films : Insights from electronic-structure calculations. *Adv.Mater.*, 23 :3363–3381, 2011.

[197] M. C. Martin, G. Shirane, Y. Endoh, K. Hirota, Y. Moritomo, and Y. Tokura. Magnetism and structural distortion in the $la_{0.7}sr_{0.3}mno_3$ metallic ferromagnet. *Phys. Rev. B*, 53(21) :14285–14290, 1996.

[198] M. Belmeguenai, S. Mercone, C. Adamo, T. Chauveau, L. Mechin, P. Monod, P. Moch, and D. G. Schlom. $la_{0.7}sr_{0.3}mno_3$ thin films on $srtio_3$ and $catio_3$ buffered si substrates : structural, static, and dynamic magnetic properties. *J Nanopart Res*, 13 :5669–5675, 2011.

[199] G. Y. Luo, J. G. Lin, W.-C. Chiang, and C.-R. Chang. Spin pump and probe in lanthanum strontium manganite/platinum bilayers. *Scientific Reports*, 7(6612), 2017.

[200] H. K. Lee, I. Barsukov, A. G. Swartz, B. Kim, L. Yang, H. Y. Hwang, and I. N. Krivorotov. Magnetic anisotropy, damping, and interfacial spin transport in pt/lsmo bilayers. *AIP Adv.*, 6(055212), 2016.

[201] M. Huijben, L. W. Martin, Y.-H. Chu, M. B. Holcomb, P. Yu, G. Rijnders, D. H. A. Blank, and R. Ramesh. Critical thickness and orbital ordering in ultrathin $la_{0.7}sr_{0.3}mno_3$ films. *Phys. Rev. B*, 78(094413), 2008.

[202] R. Peng, H. C. Xu, M. Xia, J. F. Zhao, X. Xie, D. F. Xu, B. P. Xie, and D. L. Feng. Tuning the dead-layer behavior of $la_{0.67}sr_{0.33}mno_3/srtio_3$ via interfacial engineering. *Appl. Phys. Lett.*, 104(081606), 2014.

[203] J. M. Shaw, H. T. Nembach, and T. J. Silva. Measurement of orbital asymmetry and strain in co90fe10/ni multilayers and alloys : Origins of perpendicular anisotrop. *Phys. Rev. B*, 87(054416), 2013.

[204] J. M. Shaw, H. T. Nembach, T. J. Silva, and C. T. Boone. Precise determination of the spectroscopicg-factor by use of broad band ferromagnetic resonance spectroscopy. *Journal of applied physics*, 114(243906), 2013.

[205] C. Le Graet, D. Spenato, N. Beaulieu, D. T. Dekadjevi, J-Ph. Jay, S. P. Pogossian, B. Warot-Fonrose, and J. Ben Youssef. Driving mechanism for damping and g-factor in non-amorphous ferromagnetic cofezr ultrathin films. *EuroPhys. Lett.*, 115(17002), 2016.

[206] M. Belmeguenai, S. Mercone, C. Adamo, L. Mechin, C.Fur, P. Monod, P. Moch, and D. G. Schlom. Temperature dependence of magnetic properties of $la_{0.7}sr_{0.3}mno_3/srtio_3$ thin films on silicon substrates. *Phys. Rev. B*, 81(054410), 2010.

[207] M. Belmeguenai, S. Mercone, C. Adamo, , P. Moch, D. G. Schlom, and P. Monod. Structural and magnetic properties of $la_{0.7}sr_{0.3}mno_3$ thin films integrated onto si(100) substrates with $srtio_3$ as buffer layer. *Journal of Applied Physics*, 109(07C120), 2011.

[208] J. M. Vila-Fungueirino, C. T. Bui1, B. Rivas-Murias, E. Winkler, J. Milano, J. Santiso, and F Rivadulla. Thermodynamic conditions during growth determine the magnetic anisotropy in epitaxial thin-films of $la_{0.7}sr_{0.3}mno_3$. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 49(315001), 2016.

[209] P. Perna, C. Rodrigo, E. Jimenez, F. J. Teran, N. Mikuszeit, L. Méchin, J. Camarero, and R. Miranda. Tailoring magnetic anisotropy in epitaxial half metallic $la_{0.7}sr_{0.3}mno_3$ thin films. *Journal of Applied Physics*, 1010(013919), 2011.

[210] A. A. Timopheev, R. Sousa, M. Chshiev, H. T. Nguyen, and B. Dieny. Second order anisotropy contribution in perpendicular magnetic tunnel junctions. *Scientific Reports*, 6(26877), 2016.

[211] B. Dieny and A. Vedyayev. Crossover from easy-plane to perpendicular anisotropy in magnetic thin films : Canted anisotropy due to partial coverage or interfacial roughness. *EPL*, 25(723), 1994.

[212] M. Golosovsky, P. Monod, P. K. Muduli, and R. C. Budhani. Spin-wave resonances in $la_{0.7}sr_{0.3}mno_3$ films : Measurement of spin-wave stiffness and anisotropy field. *Phys. Rev. B*, 76(184413), 2007.

[213] J. Lindner, I. Barsukov, C. Raeder, C. Hassel, O. Posth, R. Meckenstock, P. Landeros, and D. L. Mills. Two-magnon damping in thin films in case of canted magnetization : Theory versus experiment. *Phys. Rev. B*, 80(224421), 2009.

[214] S. Jiang, L. Sun, Y. Yin, Y. Fu, C. Luo, Y. Zhai, and H. Zhai. Ferromagnetic resonance linewidth and two-magnon scattering in $fe_{1-x}gd_x$ thin films. *AIP ADVANCES*, 7(056029), 2017.

[215] W. Zhang, V. Vlaminck, J. E. Pearson, R. Divan, S. D. Bader, and A. Hoffman. Determination of the pt spin diffusion length by spin-pumping and spin hall effect. *Appl. Phys. Lett.*, 103(242414), 2013.

[216] L. Zhu, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman. Effective spin-mixing conductance of heavy-metal-ferromagnet interfaces. *Phys. Rev. Lett.*, 123(057203), 2019.

[217] H. Wang, C. Du, P. Chris Hammel, and F. Yang. Comparative determination of y3fe5o12/pt interfacial spin mixing conductance by spin-hall magnetoresistance and spin pumping. *Appl. Phys. Lett.*, 110(062402), 2017.

[218] Mihai Sebastian Gabor. *Spintronics with alternative materials : full-Heusler alloys and diluted magnetic oxides*. PhD thesis, Nancy-Université, Université Technique de Cluj-Napoca,, 2011.

[219] H. Kurt, M. Venkatesan, and J. M. D. Coey. Enhanced perpendicular magnetic anisotropy in co/ni multilayers with a thin seed layer. *J. Appl. Phys.*, 108(073916), 2010.

[220] J. Geissler, E. Goering, M. Justen, F. Weigand, G. Schütz, J. Langer, D. Schmitz, H. Maletta, and R. Mattheis. Pt magnetization profile in a pt/co bilayer studied by resonant magnetic x-ray reflectometry. *Physical Review B*, 65(020405), 2001.

[221] F. Wilhelm, P. Poulopoulos, H. Wende, A. Scherz, K. Baberschke, M. Angelakeris, NK. Flevaris, and A. Rogalev. Systematics of the induced magnetic moments in 5 d layers and the violation of the third hund's rule. *Physical Review Letters*, 87(207202), 2001.

[222] M. Belmeguenai, Y. Roussigné, S. M. Chérif, A. Stashkevich, T. Petrisor Jr, M. Nasui, and M. S. Gabor. Influence of the capping layer material on the interfacial dzyaloshinskii–moriya interaction in pt/co/capping layer structures probed by brillouin light scattering. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 52(125002), 2019.

[223] C. Swindells, A. T. Hindmarch, A. J. Gallant, and D. Atkinson. Spin transport across the interface in ferromagnetic/nonmagnetic systems. *Phys. Rev. B.*, 99(064406), 2019.

[224] E. Barati, M. Cinal, D. M. Edwards, and A. Umerski. Gilbert damping in magnetic layered systems. *Phys. Rev. B.*, 90(014420), 2014.

[225] H. Jia, B. Zimmermann, and S.Blugel. First-principles investigation of chiral magnetic properties in multilayers : Rh/co/pt and pd/co/pt. *Phys. Rev. B.*, 98(144427), 2018.

[226] S. Ikeda, J. Hayakawa, Y.M. Lee, F. Matsukura, Y. Ohno, T. Hanyu, and H. Ohno. Magnetic tunnel junctions for spintronicmemories and beyond. *EEE Trans. Elec. Dev.*, 54(5) :991–1002, 2007.

[227] N-H. Kim, D-S. Han, J. Jung, J. Cho, J-S. Kim, H. J. M. Swagten, and C-Y. You. Improvement of the interfacial dzyaloshinskii-moriya interaction by introducing a ta buffer layer. *Appl. Phys. Lett.*, 107(142408), 2015.

[228] N-H. Kim, D-S. Han, J. Jung, J. Cho, J-S. Kim, H. J. M. Swagten, and C-Y. You. Magnetic properties, domain-wall creep motion, and the dzyaloshinskii-moriya interaction in pt/co/ir thin films. *Phys. Rev. B.*, 97(142408), 2018.

[229] R. Soucaille, M. Belmeguenai, J. Torrejon, J.-V. Kim, T. Devolder, Y. Roussigné, S.-M. Chérif, A. Stashkevich, M. Hayashi, and J.-P. Adam. Probing the dzyaloshinskii-moriya interaction in cofeb ultrathin films using domain wall creep and brillouin light spectroscopy. *Phys. Rev. B.*, 94(104431), 2016.

[230] T. Scepka, P. Neilinger, A. Samardak, A. Kolesnikov, A. Ognev, A. Sadovnikov, V. Gubanov, S. Nikitov, K. Palot'as, E. Simon, L. Szunyogh, J. D'erer, V. Cambel, and M. Mruczkiewicz. Damping in ru/co-based multilayer films with large dzyaloshinskii-moriya interaction. *arXiv : Materials Science*, (1911.02467), 2019.

[231] B. Dieny and M. Chshiev. Perpendicular magnetic anisotropy at transition metal/oxide interfaces and applications. *Reviews of modern physics*, 89(025008), 2017.

[232] F. El Gabaly, S. Gallego, C. Munoz, L. Szunyogh, P. Weinberger, C. Klein, A. K. Schmid, K. F. McCarty, and J. de la Figuera. Imaging spin-reorientation transitions in consecutive atomic co layers on ru(0001). *Phys. Rev. Lett.*, 96(47202), 2006.

[233] A. Segmuller and A.E. Blakeslee. X-ray diffraction from one-dimensional superlattices in $gaas_{1-x}p_x$ crystals. *J. Appl. Crystallogr*, 6(413), 1973.

[234] S. Bandiera, R. C. Sousa, B. Rodmacq, and B. Dieny. Asymmetric interfacial perpendicular magnetic anisotropy in pt/co/pt trilayers. *IEEE MAGNETICS LETTERS*, 2(3000504), 2011.

[235] M. S. Gabor, T. Petrisor Jr, R. B. Mos, M. Nasui, C. Tiusan, and T. Petrisor. Interlayer exchange coupling in perpendicularly magnetized pt/co/ir/co/pt structures. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 50(465004), 2017.

[236] Y-C. Lau, Z. Chi, T. Taniguchi, M. Kawaguchi, G. Shibata, N. Kawamura, M. Suzuki, S. Fukami, A. Fujimori, H. Ohno, and M. Hayashi. Giant perpendicular magnetic anisotropy in ir/co/pt multilayers. *Phys. Rev. Materials*, 3(104419), 2019.

[237] Y. Yang, J. Yuan, L. Qi, Y. Wang, Y. Xu, X. Wang, Y. Feng, B. Xu, L. Shen, and Y. Wu. Unveiling the role of co-o-mg bond in magnetic anisotropy of pt/co/mgo using atomically controlled deposition and in situ electrical measurement. *Phys. Rev. B*, 95(094417), 2017.

[238] B. Rodmacq, A. Manchon, C. Ducruet, S. Auffret, and B. Dieny. Influence of thermal annealing on the perpendicular magnetic anisotropy of pt/co/alox trilayers. *Phys. Rev. B*, 79(024423), 2009.

[239] H. K. Gweon, S. J. Yun, and S. H. Lim. A very large perpendicular magnetic anisotropy in pt/co/mgo trilayers fabricated by controlling the mgo sputtering power and its thickness. *Scientifi reports*, 8(1266), 2018.

[240] J. H. Jung and S. H. Lim. Thermodynamic prediction on the formation of oxides in mgo-based magnetic tunnel junctions. *Journal of the Korean Physical Society*, 53(PART 1) :2664–2669, 2008.

[241] K. Yakushiji, H. Kubota, A. Fukushima, and S. Yuasa. Perpendicular magnetic tunnel junction with enhanced anisotropy obtained by utilizing an ir/co interface. *Applied Physics Express*, 9(013003), 2016.

[242] G. G. Scott and H. W. Sturner. Magnetomechanical ratios for fe-co alloys. *Phys. Rev.*, 184(490), 1969.

[243] C-J. Lin, G. L. Gorman, C. H. Lee, R. F. C. Farrow, E. E. Marinero, H. V. Do, H. Notarys, and C. J. Chien. Magnetic and structural properties of co/pt multilayers. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 93, 1991.

[244] W. B. Zeper and F. J. A. M. Greidanus. Perpendicular magnetic anisotropy and magneto-optical kerr effect of vapor-deposited co/pt layered structures. *Journal of Applied Physics*, 64(4971), 1989.

[245] S-H. Shen, D-S. Lee, C-W. Cheng, W-J. Chan, and G.Chern. The correlation between magnetic dead layer and perpendicular magnetic anisotropy in mgo/cofeb/ta top structure. *IEEE Transactions on Magnetics*, 55(3400205), 2019.

[246] A. A. Stashkevich, M. Belmeguenai, Y. Roussigné, S. M. Cherif, M. Kostylev, M. Gabor, D. Lacour, C. Tiusan, and M. Hehn. Experimental study of spin-wave dispersion in py/pt film structures in the presence of an interface dzyaloshinskii-moriya interaction. *Phys. Rev. B*, 91(214409), 2015.

[247] X. Ma, G. Y, C. Tang, X. Li, C. He, J. Shi, K. L. Wangn, and X. Li. Interfacial dzyaloshinskii-moriya interaction : Effect of 5d band filling and correlation with spin mixing conductance. *Physical Review Letters*, 120 :157204, 2018.

[248] D. de Souza Chaves, F. Ajejas, V. Krizakova, J. Vogel, and S. Pizzini. Oxidation dependence of the dzyaloshinskii-moriya interactionin pt/co/mox trilayers (m=al or gd). *Phys. Rev. B*, 99(144404), 2019.

[249] B. Zimmermann, W. Legrand, D. Maccariello, N. Reyren, V. Cros, S. Blugel, and A. Fert. Dzyaloshinskii-moriya interaction at disordered interfaces from ab initio

theory :robustness against intermixing and tunability through dusting. *Appl. Phys. Lett*, 113(232403), 2018.

[250] H. Honjo, S. Ikeda, H. Sato, K. Nishioka, T. Watanabe, S. Miura, T. Nasuno, Y. Noguchi, M. Yasuhira, T. Tanigawa, H. Koike, H. Inoue, M. Muraguchi, M. Niwa, H. Ohno, and T. Endoh. Impact of tungsten sputtering condition on magnetic and transport properties of double-mgo magnetic tunneling junction with cofeb/w/cofeb free layer. *IEEE Transactions on Magnetics*, 53(11), 2017.

[251] M. Spasova, U. Wiedwald, R. Ramchal, M. Farle, M. Jergel, E. Majkova, S. Luby, and R. Senderak. Magnetization and magnetic anisotropy of co/w multilayers. *Phys. Status Solidi B*, 225(2), 2001.

[252] A. G. Kolesnikov, A. V. Ognev, M. E. Stebliy ans L. A. Chebotkevich ans A. V. Gerasimenko, and A. S. Samardak. Nanoscale control of perpendicular magnetic anisotropy, coercive force and domain structure in ultrathin ru/co/w/ru films. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 454 :78–84, 2018.

[253] A. K. Petford-Long, P. J. Grundy, and J. P. Jakubovics. Structure and magnetic properties of co-based multilayers. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 26(5) :2733 – 2735, 1990.

[254] M. Bersweiler, K. Dumesnil, D. Lacour, and M. Hehn. Impact of buffer layer and pt thickness on the interface structure and magnetic properties in (co/pt) multilayers. *J. Phys. : Condens. Matter*, 28(336005), 2016.

[255] S. Pal, B. Rana, O. Hellwig, T. Thomson, and A. Barman. Tunable magnonic frequency and damping in $[co/pd]_8$ multilayers with variableco layer thickness. *APPLIED PHYSICS LETTERS*, 98(082501), 2011.

[256]

[257] T. Devolder, P.-H. Ducrot, J.-P. Adam, I. Barisic, N. Vernier J-V. Kim, B. Ockert, and D. Ravelosona. Damping of $co_x fe_{80-x} b_{20}$ ultrathin films with perpendicular magnetic anisotropy. *APPLIED PHYSICS LETTERS*, 102(022407), 2013.

[258] F. D. Czeschka, L. Dreher, M. S. Brandt, M. Weiler, M. Althammer, I.-M. Imort, G. Reiss, A. Thomas, W. Schoch, W. Limmer, H. Hueb, R. Gross, and S. T. B. Goennenwein. Scaling behavior of the spin pumping effect in ferromagnet-platinum bilayers. *Phys. Rev. Lett.*, 107(04660), 2011.

[259] D. Jhajhria, N. Behera, D. K. Pandya, and S. Chaudhary. Dependence of spin pumping in w/cofeb heterostructures on the structural phase of tungsten. *Phys. Rev. B*, 99(014430), 2019.

[260] D-J. Kim, S-I. Kim, S-Y. Park, K-D. Lee, and B-G. Park. Ferromagnetic resonance spin pumping in cofeb with highly resistive non-magnetic electrodes. *Current Applied Physics*, 14(10), 2014.

[261] H. Bouloussa, Y. Roussigné, M. Belmeguenai, A. Stashkevich, S. M. Chérif, J. Yu, and H. Yang. Spin-wave calculations for magnetic stacks with interface dzyaloshinskii-moriya interaction. *Phys. Rev. B*, 98(024428), 2018.

[262] T. Lin, H. Liu, S. Poellath, Y. Zhang, B. Ji, N. Lei, J. J. Yun, L. Xi, D. Z. Yang, T. Xing, Z. L. Wang, L. Sun, Y. Z. Wu, L. F. Yin, W. B. Wang, J. Shen, J. Zweck, C. H. Back, Y. G. Zhang, and W. S. Zhao. Observation of room-temperature magnetic skyrmions in pt/co/w structureswith a large spin-orbit coupling. *Phys. Rev. B*, 98(174425), 2018.

[263] Y.-K. Park, D.-Y. Kim, J.-S. Kim, Y.-S. Nam, M.-H. Park, H.-C. Choi, B.-C. Min, and S.-B. Choe. Experimental observation of the correlation between the interfacial dzyaloshinskii–moriya interaction and work function in metallic magnetic trilayers. *NPG Asia Mater.*, 10(995), 2018.

[264] S. X. Huang, T. Y. Chen, and C. L. Chien. Spin polarization of amorphous cofeb determined by point-contact andreev reflection. *Appl. Phys. Lett.*, 92(242509), 2008.

[265] P. Aksu, C. Deger, I. Yavuz, and F. Yildiz. Strain-promoted perpendicular magnetic anisotropy in co–rh alloys. *Appl. Phys. Lett.*, 116(212402), 2020.

[266] W-Y. Kim, H-K. Gweon, K-J. Lee, and C-Y. You. Correlation between interfacial dzyaloshinskii-moriya interaction and interfacial magnetic anisotropy of pt/co/mgo structures. *Applied Physics Express*, 12(053007), 2019.

[267] M. S. Gabor, T Petrisor. Jr, R. B. Mos, A. Mesaros, M. Nasui, M. Belmeguenai, F. Zighem, and C. Tiusan. Spin–orbit torques and magnetization switching in w/co_2feal/mgo structures. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 49(365003), 2016.

[268] N. Vernier, J-P. Adam, S. Eimer, G. Agnus, T. Devolder, T. Hauet, B. Ocker, F. Garcia, and D. Ravelosona. Measurement of magnetization using domain compressibility in cofeb films with perpendicular anisotropy. *Appl. Phys. Lett.*, 104(122404), 2014.

[269] Y-H. Wang, W-C. Chen, S-Y. Yang, K-H. Shen, C. Park, M-J. Kao, and M-J. Tsai. Interfacial and annealing effects on magnetic properties of cofeb thin films. *Journal of Applied Physics*, 99(08M307), 2006.

[270] W. Skowronski, M. Cecot, J. Kanak, S. ZieRtek, T. Stobiecki, L. Yao, S. van Dijken, T. Nozaki, K. Yakushiji, and S. Yuasa. Temperature dependence of spin-orbit torques in w/cofeb bilayers. *APPLIED PHYSICS LETTERS*, 99(08M307), 2016.

[271] S-Y. Jang, C-Y. You, S. H. Lim, and S. R. Lee. Annealing effects on the magnetic dead layer and saturation magnetization in unit structures relevant to a synthetic ferrimagnetic free structure. *Journal of Applied Physics*, 109(013901), 2011.

[272] M. Belmeguenai, M. S. Gabor, F. Zighem, N. Challab, T. Petrisor Jr, R. B. Mos, and C. Tiusan. Ferromagnetic resonance induced spin pumping in $co_{20}fe_{60}b_{20}$/pt systems : damping investigation. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 51(045002), 2018.

[273] F. J. Jedema, A. T. Filip, and B. J. van Wees. Electrical spin injection and accumulation at room temperature in an all-metal mesoscopic spin valve. *Nature*, 410(6826), 2001.

[274] X. Tao, Q. Liuand B. Miao, R. Yu, Z. Feng, L. Sun, B. You, J. Du, K. Chen, S. Zhang, L. Zhang, Z. Yuan, D. Wu, and H. Ding. Self-consistent determination of spin hall angle and spin diffusion length in pt and pd : The role of the interface spin loss. *Science advances*, 4(6 eaat 1670), 2018.

[275] Patrick Bruno. Tight-binding approach to the orbital magnetic moment and magnetocrystalline anisotropy of transition-metal monolayers. *Phys. Rev. B*, 39(865 (R)), 1989.

[276] M. Heide, G. Bihlmayer, and S. Blugel. Describing dzyaloshinskii–moriya spirals from first principles. *Physica B*, 404 :2678–2683, 2009.

[277] R. Lo Conte, E. Martinez, A. Hrabec, A. Lamperti, T. Schulz, L. Nasi, L. Lazzarini, R. Mantovan, F. Maccherozzi, S. S. Dhesi, B. Ocker, C. H. Marrows, T. A. Moore, and M. Klaui. Role of b diffusion in the interfacial dzyaloshinskii-moriya interaction in ta/co20fe6ob20/mgo nanowires. *PHYSICAL REVIEW B*, 91(014433), 2015.

[278] M. Shaw, H. T. Nembach, and T. J. Silva. Resolving the controversy of a possible relationship between perpendicular magnetic anisotropy and the magnetic damping parameter. *Appl. Phys. Lett.*, 105(062406), 2014.

[279] N-H. Kim, D-S. Han, J. Jung, K. Park, H. J. M. Swagten, J-S Kim, and C-Y. You. Dependence of interfacial dzyaloshinskii–moriya interaction and perpendicular magnetic anisotropy on the thickness of the heavy-metal layer. *Appl. Phys. Express*, 10(103003), 2017.

[280] G. W. Kim, A. S. Samardak, Y. J. Kim, I. H. Cha, A. V Ognev, A. V Sadovnikov, S. A. Nikitov, and Y. K. Kim. Role of the heavy metal's crystal phase in oscillations of perpendicular magnetic anisotropy and the interfacial dzyaloshinskii-moriya interaction in w/cofeb/mgo films. *Phys. Rev. Applied*, 9(064005), 2018.

[281] M. Tsoi, A. G. M. Jansen, J. Bass, W-C. Chiang, M. Seck, V. Tsoi, and P. Wyder. Excitation of a magnetic multilayer by an electric current. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 80(19), 1998.

[282] R. Shimabukuro, K. Nakamura, T. Akiyama, and T. Ito. Electric field effects on magnetocrystalline anisotropy in ferromagnetic fe monolayer. *Physica E*, 42 :1014–1017, 2010.

[283] S. Ikeda, K. Miura, H. Yamamoto, K. Mizunuma, H. D. Gan, M. Endo, S. Kanai, J. Hayakawa, and H. Ohno. A perpendicular-anisotropy cofeb–mgo magnetic tunnel junction. *Nature Mater*, 9(721), 2010.

[284] D. C. Worledge, G. Hu, David W. Abraham, J. Z. Sun, P. L. Trouilloud, J. Nowak, S. Brown, M. C. Gaidis, E. J. O'Sullivan, and R. P. Robertazzi. A perpendicular-anisotropy cofeb–mgo magnetic tunnel junction. *Appl. Phys. Lett.*, 98(022501), 2011.

[285] I. M. Miron, T. Moore, H. Szambolics, L. D. Buda-Prejbeanu, S Auffret, B. Rodmacq, S Pizzini, J. Vogel, M. Bonfim, A. Schuhl, and G. Gaudin. Fast current-induced domain-wall motion controlled by the rashba effect. *Nature Materiels*, 10 :419–423, 2011.

[286] S. Emori, U. Bauer, S-M. Ahn, E. Martinez, and G. S. D. Beach. Current-driven dynamics of chiral ferromagnetic domain walls. *Nature Materiels*, 12 :611–616, 2013.

[287] R. Wieser, U. Nowak, and K. D. Usadel. Domain wall mobility in nanowires : Transverse versus vortex walls. *Phys. Rev. B*, 69(064401), 2004.

[288] X. Liu, W. Zhang, M. J. Carter, and G. Xiao. Ferromagnetic resonance and damping properties of cofeb thin films as free layers in mgo-based magnetic tunnel junctions. *Journal of Applied Physics*, 110(033910), 2011.

[289] T. Ogasawara, M. Oogane, M. Al-Mahdawi, Ma. Tsunoda, and Y. Ando. Composition dependence of the second-order interfacial magnetic anisotropy for mgo/cofeb/ta films. *AIP Advances*, 9(125053), 2019.

[290] J. Camarero, J. J. de Miguel, R. Miranda, V. Raposo, and A. Hernando. Influence of film morphology on perpendicular magnetic anisotropy. *Phys. Rev. B*, 64(125406), 2001.

[291] J. Ye, W. He, Q. Wu, H-L. Liu, X-Q. Zhang, Z-Y. Chen, and Z-H. Cheng. Determination of magnetic anisotropy constants in fe ultrathin film on vicinal si(111) by anisotropic magnetoresistance. *Scientific reports*, 3(2148), 2013.

[292] T. Devolder, T. Tahmasebi, S. Eimer, T. Hauet, and S. Andrieu. Compositional dependence of the magnetic properties of epitaxial fev/mgo thin films. *Appl. Phys. Lett.*, 103(242410), 2013.

[293] W. Zhang, W. Han, X. Jiang, S-H. Yang, and S. S. P. Parkin. Role of transparency of platinum-ferromagnet interface in determining intrinsic magnitude of spin hall effect. *Nature physics*, 11(496), 2015.

[294] C-F Pai, Y. Ou, L. H. V-Leao, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman. Dependence of the efficiency of spin hall torque on the transparency of pt/ferromagnetic layer interfaces. *Phys. Rev. B*, 92(064426), 2015.

[295] Titiksha SRIVASTAVA. *Engineering and dynamical control of interfacial properties in ultra-thin films to tune magnetic spin textures.* PhD thesis, Université Grenoble Alpes, 2019.

[296] W. Zhang, H. Zhong, R. Zang, Y. Zhang, S. Yu, G. Han, G. L. Liu, S. S. Yan, S. Kang, and L. M. Mei. Electrical field enhanced interfacial dzyaloshinskii-moriya interaction in mgo/fe/pt system. *APPLIED PHYSICS LETTERS*, 113(122406), 2018.

[297] L. Herrera Diez, Y.T. Liu, D.A. Gilbert, M. Belmeguenai, J. Vogel, S. Pizzini, E. Martinez, A. Lamperti, J.B. Mohammedi, A. Laborieux, Y. Roussigné, A.J. Grutter, E. Arenholtz, P. Quarterman, B. Maranville, S. Ono, M. Salah El Hadri, R. Tolley, E.E. Fullerton, L. Sanchez-Tejerina, A. Stashkevich, S.M. Chérif, A.D. Kent, D. Querlioz, J. Langer, B. Ocker, and D. Ravelosona. Nonvolatile ionic modification of the dzyaloshinskii-moriya interaction. *PHYSICAL REVIEW APPLIED*, 12(034005), 2019.

[298] W. Zhang, B. Jiang, L. Wang, Y. Fan, Y. Zhang, S.Y. Yu, G.B. Han, G.L. Liu, C. Feng, G.H. Yu, S.S. Yan, and S. Kang. Enhancement of interfacial dzyaloshinskii-moriya interaction : A comprehensive investigation of magnetic dynamics. *PHYSICAL REVIEW APPLIED*, 12(064031), 2019.

[299] O. G. Udalov and I. S. Beloborodov. Strain-dependent dzyaloshinskii-moriya interaction in a ferromagnet/heavy-metal bilayer. *PHYSICAL REVIEW B*, 102(134422), 2020.

Résumé

L'électronique conventionnelle est basée sur la manipulation de la charge électrique. La spintronique est un domaine émergent qui utilise le spin des électrons comme de degré de liberté supplémentaire pour générer de nouvelles fonctionnalités. Pour cela, les systèmes ultraminces intégrant des empilements de matériau ferromagnétique/métal lourd (FM/HM) à fort couplage spin-orbite (SOC) font actuellement l'objet de recherches intensives en raison de leurs applications potentielles dans ce domaine. Divers nouveaux mécanismes et phénomènes se produisent dans ces structures telles que le pompage de spin, l'anisotropie magnétique perpendiculaire et l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya d'interface (iDMI). Ce travail de thèse est dédié à l'étude expérimentale de ces trois phénomènes dans les empilements à base d'interface FM/HM (où FM = Co, CoFeB et LSMO et HM= Pt, Ta, W, Ir, et Ru…). Une attention particulière a été portée aux effets des épaisseurs des matériaux FM ou HM, du nombre de répétition en multicouches et du recuit. Le comportement de l'anisotropie magnétique (dans le plan et hors du plan des échantillons), ainsi que les différentes contributions intrinsèques et extrinsèques à l'amortissement ont été cernés à l'aide de la technique de résonnance ferromagnétique. Un intérêt particulier est accordé à l'iDMI, étudiée par la technique de la diffusion Brillouin de la lumière, *via* la mesure directe de la non-réciprocité de la propagation des ondes de spin. Le caractère interfacial de l'iDMI dans les différents systèmes a été démontré ainsi que la possibilité de moduler (en signe et en intensité) sa constante effective par le choix des différents empilements étudiés. De plus, une iDMI significative a été mesurée en utilisant une couche de couverture à base d'oxyde de métal (PtO_x et TaO_x). Enfin, après avoir déterminé l'épaisseur de saturation de ces trois effets, une corrélation linéaire ou non linéaire entre eux a été mise en évidence dans certains systèmes étudiés. Les résultats obtenus à partir de ce travail contribuent principalement à une compréhension approfondie de ces trois phénomènes d'interface et valident l'importance d'une iDMI modulable pour les futurs dispositifs spintroniques à base de structures chirales tels que les skyrmions et les parois de domaines.

Conventional electronics is based on the manipulation of the electrical charge. In contrast spintronics which is an emerging field, uses electron spin as an additional degree of freedom to generate new functionalities. For this purpose, ultrathin systems integrating ferromagnet/heavy metal (FM/HM) stacks with strong spin-orbit coupling (SOC) are currently the subject of intensive research owing to their potential applications in this field. Various new mechanisms and phenomena occur in these structures, such as spin pumping, perpendicular magnetic anisotropy and interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction (iDMI). This work is devoted to the experimental study of these three phenomena in FM/HM interface based stacks (where FM = Co, CoFeB and LSMO and HM= Pt, Ta, W, Ir, and Ru...). Particular attention has been given to effects of FM or HM thicknesses, the number of repeats in multilayers and annealing. The behavior of the magnetic anisotropy (in and out-of-sample's plane), as well as the different intrinsic and extrinsic contributions to the damping have been identified, using ferromagnetic resonance technique. A particular interest is given to the iDMI, studied by Brillouin light scattering technique, *via* the direct measurement of the non-reciprocity of the spin wave propagation. The interfacial character of the iDMI, in the different systems, as well as the possibility to modulate (its sign and strength) have been demonstrated by the choice of the different studied stacks. Furthermore, a significant iDMI was achieved, using a metal oxide (PtO_x and TaO_x) capping layer. Finally, after determining the saturation characteristic length scale of these three SOC related effects, a linear or non-linear correlation between them was revealed in some of the studied systems. The obtained results mainly contribute to a deeper understanding of these three interface phenomena and validate the importance of a scalable iDMI for future spintronic devices based on chiral structures such as skyrmions and domain walls.