



**HAL**  
open science

# Transport tunnel polarisé en spin dans le système épitaxié Fe/MgO/Fe:interactions magnétiques et symétries électroniques

Jérôme Faure-Vincent

► **To cite this version:**

Jérôme Faure-Vincent. Transport tunnel polarisé en spin dans le système épitaxié Fe/MgO/Fe:interactions magnétiques et symétries électroniques. Autre [cond-mat.other]. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2005. Français. NNT : 2004INPL092N . tel-01749686

**HAL Id: tel-01749686**

**<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01749686>**

Submitted on 29 Mar 2018

**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.



## AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : [ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr](mailto:ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr)

## LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

[http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg\\_droi.php](http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

Institut National Polytechnique de Lorraine

Ecole des Mines de Nancy

Ecole doctorale EMMA

Thèse présentée par Jérôme FAURE-VINCENT

pour obtenir le grade de :

Docteur de l'Institut National Polytechnique de Lorraine  
en Physique et Chimie de la Matière et des Matériaux

---

*Transport tunnel polarisé en spin  
dans le système épitaxié Fe/MgO/Fe :  
Interactions magnétiques et Symétries électroniques*

---

Soutenue publiquement devant la commission d'examen  
le 29 octobre 2004

Jury : **B. Dieny**  
**H. Dreyssé**  
**A. George**  
**P. Grünberg**  
**A. Schuhl**  
**E. Snoeck**  
**C. Tiusan**



D 136 036734 9

*Service de la Bibliothèque  
2004  
Nancy 54000*



# Remerciements

Je tiens d'abord à remercier Amand George pour avoir accepté de présider ce jury de thèse ainsi que Etienne Snoeck et Hugues Dreyssé qui ont accepté d'être rapporteurs de ce manuscrit. Merci également à Herr Prof. Dr. Peter Grünberg et Bernard Dieny de m'avoir fait l'honneur de contribuer à l'examen de ce travail en participant au jury.

En fait, tout a commencé par la discussion sur le perron de l'Ecole des Mines que j'avais eue avec Philippe Mangin, qui était alors directeur du laboratoire. Je dois doublement le remercier, d'une part pour m'avoir convaincu de faire un DEA et d'autre part pour m'avoir aiguillé sur ce stage dans l'équipe d'Alain Schuhl. Maintenant, je peux l'avouer, quand j'ai lu le résumé de la proposition de stage, je me suis dit : « épitaxie », « électronique de spin », qu'est-ce que c'est que ça ?

Un grand merci à Alain pour m'avoir donné l'opportunité d'utiliser la MBE fraîchement arrivée au moment de mon stage de DEA et initié à la physique du transport tunnel sous tous ses aspects. Les discussions enthousiastes que nous avons eues, son expérience, son dynamisme et ses conseils pertinents ont été pour moi une aide précieuse.

Je voudrais adresser plus qu'un remerciement à mon *supervisor* de l'ombre : Coriolan Tiusan. Cori, pour toutes tes remarques, tes suggestions, tes explications, ton ouverture d'esprit, ton intarissable connaissance des JTM et assimilées mais également pour nos moments d'excitation scientifique quand le brouillard s'éclaircissait, ton soutien inconditionnel, nos moments de détente et ta bonne humeur : MULTUMESC !!!

Merci, merci, merci à Christine Bellouard pour sa sérénité en toutes circonstances, sa disponibilité constante (proche du dévouement), son aide quotidienne et ses conseils avisés. Merci également à tous les chercheurs et autres pros de l'épitaxie, des surfaces, du magnétisme, du tunnel que j'ai eu la chance de côtoyer ; notamment, Stéphane « MBE » Andrieu pour m'avoir donné de précieux « tuyaux » sur l'épitaxie, Michel Hehn pour ses grandes connaissances sur le transport et le magnétisme et Bertrand Kierren pour ses conseils en spectroscopie de surfaces.

Sans Gérard Marchal et Marc Alnot, tout ce travail n'aurait pas vu le jour : qu'ils soient remerciés *for ingenious conceiving of the MBE system.*

Un grand remerciement à la team lithography avec, dans l'ordre d'ancienneté : Mohammed Sajieddine, Frédéric Canet, Eric Jouguelet et sous la direction du chef d'orchestre François Montaigne.

Je tiens à remercier Daniel Stoeffler (IPCMS, Strasbourg) pour le temps consacré à nous dépêtrer de l'incomparable imbroglia, le véritable plat de spaghettis que peut être une structure de bandes. Merci également à Daniel Malterre pour ses cours accélérés, et quasi personnels, de la théorie des groupes et m'en avoir montré toute la puissance ; une aide plus que précieuse au moment de la rédaction de ce mémoire.

Many thanks to Helmut Fritzsche, Marita Gierlings (HMI, Berlin) and Vincent Leiner (ILL, Grenoble) for their help during neutron reflectometry experiments and analysis.

Je remercie sincèrement ceux qui « tiennent la baraque » : Sylvie Robert pour son assistance et aide constantes ; Damien Ligiardi qui lui a succédé sur la MBE pour l'entretien, les vidanges, la révision des 100 000 km, plus sérieusement, pour l'aide lors de l'élaboration des films et les adaptations techniques sur la bécane ; Christian Senet, mon sauveur à de nombreuses occasions et toujours prêt à consacrer du temps au malheureux thésard qui arrive affolé dans son bureau ; Luc «LN<sub>2</sub>» Moreau pour un SQUID opérationnel, bien utilisé durant le DEA et la première année. Merci également Danielle Pierre, François «Magic» Mouginet et Jean-Georges Mussot pour leur aide technique mais surtout leur bonne humeur quotidienne bien réconfortante. Je n'oublie pas de remercier le staff administratif (Christine Gagneré, Martine Gaulier et Nicole Nussmann) pour avoir facilité les choses à de nombreuses occasions.

Je voudrais également remercier quelques personnes du LPMIA pour l'autorisation d'utilisation de manip et... les manip en elles-mêmes : Bernard Weber, Patrick Alnot, Laurent Bouvot, Badredinne Assouar et Damien Genève ; ainsi que Sylvie Migot du LPM.

Une petite pensée à l'équipe de foot du LPM au grand complet (jouer avec vous était bien sympa... juste avant que cela tourne au pugilat) ainsi qu'aux p'tits anciennes du DEA : Claire Arnoult et Amandine Perrin.

Ce paragraphe s'adresse aux Forces Vives du labo, c'est à dire tous les thésards et postdocs, passés et présents qui m'ont sans aucun doute beaucoup appris chacun dans leur domaine. Le plus simple est de commencer ces remerciements par Grégory Malinowski, « coiloc » de bureau de ces 3 années, pour tous les bons moments que l'on a partagés et pour s'être tenus les coudes dans les pires. Merci à Elena Popova et désolé pour la bouteille de Vodka que j'ai frauduleusement gagné à la suite d'un pari dont, j'ose l'avouer maintenant, je connaissais déjà la réponse ; Stéphane Soriano, alias Steevy, pour les séances pizza-bière « Allez l'Ohème » et un futur hypothétique voyage prévu au Brésil mais qui ne se fera jamais. Et puis avant lui, il y a eu Mickaël Molinari, et encore plus ancien, Pascal Turban : leur expérience m'a beaucoup apporté. Le LPM fût dignement représenté durant les dix jours à Brasov, notamment au No Problem. Un sincère remerciement à Thomas Hauet pour nous avoir sauvés d'une douloureuse expérience et à son compagnon de bureau, Olivier Jambois, toujours prêt à délirer dans la bonne humeur. Je souhaite une bonne continuation à Muriel «Saïcott» (dont l'expression «fromage !» a fait sourire les touristes au moment de la photo sur le ponton de Malibu Beach) sur le système Fe/MgO

ainsi qu'à Côme de Buttet sur le MgO pulvé. Merci également à Alan Picone et Aymeric Avisou pour nos discussions éclairées sur notre avenir dans la Recherche, et, dans un autre domaine, à Stéphane Abriet pour son fameux punch lorrain.

Merci à Mike du Student's et bien sûr Dom' et Patrick du Black Minou pour avoir facilité ces 6 années à Nancy.

Je tiens à remercier tous les lascars qui constituent mes principales fréquentations depuis presque une double décennie : Rico pour avoir montré la voie à Nice après la Siesta, pour sa motivation légendaire et pour la sortie de route dans le ravin à 50 mètres des videurs ; Pac pour plein de truc, notamment la gravure aléatoire du CD des Daft, *un p'tit groupe qui débute*, ainsi que pour m'avoir amené jusqu'à un abri de bus où j'ai pu passer une nuit glaciale à Lyon ; sans oublier le Julius pour ses réflexions philosophiques sur la gent féminine et sa fameuse citation. Merci aussi à Fred « Gzhhhiiii » pour les sorties sportives et son état d'esprit. Je termine cette section par les remerciements dédiés au GFC. Seb, membre honorifique Ô combien méritant et cascadeur émérite, m'a invité à Millau pour des raids périlleux à plusieurs points de vue. Cédric, mon Frère de Sang, d'Armes et d'Esprit, lui aussi un ancien combattant de la « Boucherie de Millau », grâce auquel j'ai connu la Gloire Eternelle en partant à l'Aventure et qui m'a sauvé la vie face à l'adversité et aux guet-apens. Sache que je suis assez fier de mes 100% chez toi sur Paris. Sans parler de mon pote du Kosovo, Machiiiine, toujours partant pour les invasions *Blitz* à Malakoff, Châtillon et bientôt Montrouge. Que dire d'un certain Moïse qui m'a accueilli à bras ouverts sur Grenoble, donné le gîte et le couvert alors que je ne le connaissais pas, mais surtout, merci pour les séances d'essai libre avec la 206 *SI6*, notamment le dur apprentissage des virages au frein à main et du double débrayage à 7500 tr/min. Au fait, merci pour le squat des 6 prochains mois !

Un grand Merci à Sandrine pour m'avoir soutenu durant ces 3 années et qui, malgré tous mes efforts pour les contenir, a supporté les moments de doute de cette thèse.

Mes plus grands remerciements vont naturellement à mes parents, et ma famille, qui m'ont toujours soutenu et encouragé en toutes circonstances.





*The only difference between Dream and Accomplishment is Desire.*



# Sommaire

INTRODUCTION .....	1
CHAPITRE I	
INTRODUCTION A LA PHYSIQUE DES JONCTIONS TUNNEL MAGNETIQUES .....	5
I.1 LE TRANSPORT POLARISE EN SPIN DANS LES JTM.....	6
I.1.1 Origine de la magnétorésistance tunnel et principe de fonctionnement d'une JTM.....	6
I.1.2 Conduction par effet tunnel entre deux métaux.....	9
I.1.3 Modèle de Jullière.....	10
I.1.4 Modèle des électrons libres.....	10
I.1.5 Modèle de Slonczewski.....	12
I.1.6 Conclusion.....	13
I.2 SYSTEMES PARTIELLEMENT OU TOTALEMENT EPITAXIES.....	14
I.2.1 Systèmes semi-épitaxiés.....	14
I.2.2 Jonctions tunnel totalement épitaxiées.....	16
I.2.3 Le système Fe/MgO/Fe.....	17
I.2.4 Conclusion.....	20
CHAPITRE II	
ELABORATION, CARACTERISATION ET STRUCTURATION DES JONCTIONS TUNNEL MAGNETIQUES .....	21
II.1 DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET MOYENS DE CARACTERISATION.....	22
II.1.1 La technique d'Épitaxie par Jets Moléculaires.....	22
II.1.1.1 Principe.....	22
II.1.1.2 Descriptif technique.....	23
II.1.1.3 Préparation des substrats.....	25
II.1.2 Caractérisation in situ par RHEED.....	25
II.1.2.1 Principe.....	26
II.1.2.2 Informations fournies par RHEED.....	27
II.1.2.2.1 Morphologie de la surface et mode de croissance.....	27
II.1.2.2.2 Oscillations RHEED.....	27
II.1.3 Caractérisation ex situ par Microscopie à Force Atomique.....	29
II.1.4 Caractérisation ex situ par Microscopie Electronique à Transmission.....	31
II.2 CROISSANCE ET STRUCTURE DE LA MULTICOUCHE.....	31
II.2.1 Etude bibliographique du système épitaxié Fe/MgO.....	31
II.2.1.1 Relation d'épitaxie Fe-MgO.....	31
II.2.1.2 Dépôt de MgO sur Fe.....	33
II.2.2 Epitaxie du système Fe/MgO/Fe/Co.....	34
II.2.2.1 Croissance de la couche tampon de Fe.....	34
II.2.2.2 Croissance de la barrière isolante.....	36
II.2.2.3 Croissance de la deuxième électrode.....	42
II.2.2.4 Durcissement magnétique de la deuxième électrode.....	43
II.2.2.5 Couche protectrice.....	47
II.2.2.6 Nature chimique de l'interface Fe/MgO.....	47
II.2.2.6.1 Ségrégation du carbone à l'interface Fe/MgO.....	47
II.2.2.6.2 Présence d'oxygène.....	48
II.2.2.6.3 Une interface chimiquement parfaite Fe/MgO est-elle possible ?.....	49
II.2.2.7 Double jonction tunnel / Structure à double barrière.....	51
II.3 UTILISATION DE DIVERSES COUCHES TAMPONS.....	52
II.3.1 Couche tampon de vanadium.....	53
II.3.2 Couche tampon d'argent.....	54
II.3.3 Couche tampon de palladium.....	57

II.4	STRUCTURATION DES JTM PAR PHOTOLITHOGRAPHIE.....	59
II.4.1	<i>Le procédé technologique</i> .....	59
II.4.2	<i>Limitations du procédé pour les JTM Fe/MgO/Fe et améliorations</i> .....	62
II.4.2.1	Influence des ultrasons.....	62
II.4.2.2	Faisceau non neutralisé.....	63
II.4.2.3	Réactivité de la couche inférieure de Fe.....	64
II.4.2.4	Redépôts.....	66
II.4.2.5	Sous gravure de la première électrode.....	67
II.4.2.6	Sur gravure de la deuxième électrode et nouveaux masques.....	68
II.4.2.7	Ouverture de l'isolant.....	70
II.4.3	<i>Récapitulatif</i> .....	72
II.5	CONCLUSION.....	73

## CHAPITRE III

### INTERACTIONS MAGNETIQUES DANS LE SYSTEME FE/MGO/FE.....75

III.1	PROPRIETES MAGNETIQUES DES JTM.....	76
III.1.1	<i>Magétisme de la couche de Fe simple</i> .....	76
III.1.2	<i>Bicouche magnétique dure Fe/Co</i> .....	78
III.1.2.1	Le paramètre critique : $\delta_{Fe}^{critique}$ .....	78
III.1.2.2	Pour une épaisseur de Fe inférieure à $\delta_{Fe}^{critique}$ .....	79
III.1.2.3	Pour une épaisseur de Fe supérieure à $\delta_{Fe}^{critique}$ .....	80
III.1.3	<i>Conclusion</i> .....	81
III.2	COUPLAGE PAR EFFET TUNNEL POLARISE EN SPIN.....	81
III.2.1	<i>Mise en évidence expérimentale</i> .....	82
III.2.1.1	Cycles M(H) avec décalage du cycle mineur.....	82
III.2.1.2	Evolution de J en fonction de $d_{MgO}$ .....	84
III.2.1.3	Evolution de $H_{ex}$ en fonction de $t_{Fe}$ .....	84
III.2.1.4	Analyse des origines possibles du couplage.....	86
III.2.2	<i>Introduction au couplage d'échange par effet tunnel</i> .....	87
III.2.3	<i>Confrontation avec les modèles théoriques</i> .....	89
III.2.3.1	Modèle de Slonczewski.....	89
III.2.3.1.1	Hypothèses du modèle.....	89
III.2.3.1.2	Calcul de la conductance.....	91
III.2.3.1.3	Calcul de l'expression du couplage d'échange.....	92
III.2.3.2	Comparaison théorie/expérience.....	93
III.2.3.3	Limitations du modèle de Slonczewski.....	94
III.2.3.4	Dépendance en température : le modèle de Bruno.....	95
III.2.3.5	Explication dans le cadre de systèmes épitaxiés.....	98
III.2.4	<i>Conclusion</i> .....	99
III.3	SYSTEMES ANTIFERROMAGNETIQUES ARTIFICIELS CREEES PAR EFFET TUNNEL POLARISE EN SPIN.....	100
III.3.1	<i>Fonctionnement d'un système AAF</i> .....	100
III.3.2	<i>Comportement magnétique suivant l'axe facile</i> .....	102
III.3.2.1	Description du cycle.....	102
III.3.2.2	Comparaison cycle expérimental/cycle théorique.....	104
III.3.2.3	Comparaison avec un système polycristallin.....	105
III.3.3	<i>Calcul analytique de <math>H_c^{AAF}</math>, <math>H_S</math> et <math>H_p</math></i> .....	106
III.3.3.1	Mécanisme de coercivité dans les systèmes AAF.....	106
III.3.3.2	Valeurs analytiques des champs $H_S$ et $H_p$ .....	107
III.3.4	<i>Le transport tunnel utilisé comme sonde du magnétisme</i> .....	107
III.3.5	<i>Constantes d'anisotropie différentes pour les deux axes faciles</i> .....	111
III.3.6	<i>Utilisation d'une couche tampon de Pd</i> .....	112
III.4	CONCLUSION.....	113
III.5	PERSPECTIVES.....	114

## CHAPITRE IV

### APPROCHE THEORIQUE DU TRANSPORT TUNNEL DANS LES SYSTEMES EPITAXIES – L'EXEMPLE DU SYSTEME FE/MGO/FE..... 117

IV.1	SELECTION DES ETATS DE BLOCH DANS LES ELECTRODES.....	118
IV.1.1	Orbitales atomiques du Fe.....	118
IV.1.2	Zone de Brillouin et utilité de la théorie des groupes.....	119
IV.1.3	Structure de bande.....	122
IV.1.4	Importance de la notion de symétrie.....	123
IV.1.5	Variation spatiale de la fonction d'onde.....	124
IV.1.6	Récapitulatif.....	128
IV.2	FILTRAGE DE LA BARRIERE.....	128
IV.2.1	Bandes complexes et MIGS.....	128
IV.2.2	Analyse pour $k_{\parallel}=0$ .....	129
IV.2.3	Analyse qualitative pour $k_{\parallel}\neq 0$ .....	130
IV.2.4	Analyse qualitative pour $q=2\pi/a$ .....	131
IV.2.5	Récapitulatif.....	131
IV.3	APPROCHE QUALITATIVE DU TRANSPORT TUNNEL.....	132
IV.3.1	Configuration parallèle.....	132
IV.3.2	Configuration antiparallèle.....	132
IV.3.3	Importance de l'orientation cristalline du métal ferromagnétique.....	133
IV.3.4	Conclusion.....	134
IV.4	CALCUL DE LA CONDUCTANCE TUNNEL.....	135
IV.4.1	Formule de Landauer et descriptif rapide de la méthode LKKR.....	135
IV.4.2	Transport en configuration parallèle.....	136
IV.4.2.1	Transmission du canal majoritaire en configuration parallèle.....	136
IV.4.2.2	Transmission du canal minoritaire en configuration parallèle.....	137
IV.4.2.3	Probabilité de transmission pour $k_{\parallel}=0$ en configuration parallèle.....	139
IV.4.3	Transmission et TDOS pour $k_{\parallel}=0$ en configuration antiparallèle.....	140
IV.4.4	Variation de la TMR avec l'épaisseur.....	141
IV.4.5	Raccordement à l'interface : notion d'efficacité d'extraction et d'injection de spin.....	142
IV.4.6	Système hors équilibre.....	144
IV.4.7	Récapitulatif.....	145
IV.5	ETATS DE RESONANCE INTERFACIALE.....	145
IV.5.1	Origine physique des états de surface / d'interface.....	146
IV.5.2	Impact sur le transport tunnel.....	147
IV.5.3	Régime des faibles épaisseurs.....	149
IV.5.4	Couplage des états de résonance avec le volume.....	150
IV.5.5	Récapitulatif.....	151
IV.6	INFLUENCE DES LIAISONS CHIMIQUES A L'INTERFACE SUR LE TRANSPORT TUNNEL.....	151
IV.6.1	Effet d'une couche d'oxyde de Fe.....	152
IV.6.2	Influence de la séquence d'empilement.....	155
IV.6.2.1	Fe/ZnSe/Fe.....	155
IV.6.2.2	Co/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Co.....	156
IV.6.2.3	Co/SrTiO <sub>3</sub> /Co.....	156
IV.6.3	Influence des effets de désordre.....	157
IV.7	CONCLUSION.....	158

## CHAPITRE V

### PHENOMENES DE TRANSPORT TUNNEL POLARISE EN SPIN DANS LE SYSTEME EPITAXIE FE/MGO/FE ..... 159

V.1	MAGNETORESISTANCE TUNNEL.....	160
V.1.1	<i>Forte valeur de la TMR</i> .....	160
V.1.2	<i>Simulation des courbes courant-tension</i> .....	161
V.1.2.1	Courbes I(V) expérimentales .....	161
V.1.2.2	Pourquoi le modèle de Brinkman est-il inadapté ? .....	162
V.1.2.3	Rapprochement du transport tunnel dans les systèmes épitaxiés avec le modèle simple des électrons libres .....	163
V.1.3	<i>Etude en température</i> .....	165
V.1.3.1	Influence de la température sur la configuration P .....	166
V.1.3.2	Influence de la température sur la configuration AP .....	166
V.1.3.3	Variation de la TMR avec la température .....	167
V.1.4	<i>Influence de la nature chimique de l'interface sur le transport tunnel</i> .....	167
V.2	MISE EN EVIDENCE D'UN ETAT DE RESONANCE INTERFACIALE .....	169
V.2.1	<i>Mise en évidence expérimentale</i> .....	169
V.2.2	<i>Observation par STM</i> .....	171
V.2.3	<i>Symétrie électronique</i> .....	172
V.2.4	<i>Création du canal antiparallèle <math>\Delta_1</math></i> .....	174
V.2.5	<i>Déplacement en énergie de l'IRS</i> .....	174
V.2.6	<i>Etude en température</i> .....	176
V.2.7	<i>Etat de résonance sondé par STM polarisée en spin</i> .....	178
V.3	MANIPULATION DES PROPRIETES MAGNETORESISTIVES VIA LA STRUCTURE ELECTRONIQUE.....	180
V.3.1	<i>TMR faiblement dépendante de la tension</i> .....	180
V.3.2	<i>Pd/Fe/MgO/Fe : inhibition/découplage électronique de l'IRS</i> .....	182
V.4	LE TRANSPORT TUNNEL COMME SONDE DU MAGNETISME.....	185
V.4.1	<i>Magnétisme des JTM standard</i> .....	185
V.4.2	<i>Découplage de l'IRS par exchange spring magnet</i> .....	187
V.5	CONCLUSION.....	189

### CONCLUSION ET PERSPECTIVES ..... 191

### ANNEXE A STOECHIOMETRIE DU MGO..... 195

### ANNEXE B DEFAUTS INDUITS PAR LE FAISCEAU RHEED ..... 197

### ANNEXE C COUPLAGE DE NEEL..... 203

### ANNEXE D EXPRESSIONS ANALYTIQUES DES CHAMPS DE PLATEAU ET DE SATURATION SUIVANT LES AXES FACILE ET DIFFICILE DANS LES SYSTEMES AAF..... 205

### ANNEXE E TRANSPORT TUNNEL POLARISE EN SPIN DANS LE SYSTEME FE/MGO/FE : L'APPROCHE DE MATHON ET UMERSKI..... 211

### ANNEXE F VALEUR DE LA RESISTANCE TUNNEL ..... 215

### REFERENCES ..... 219

## Introduction

Bien qu'il fût envisagé théoriquement par Uhlenbeck et Goudsmit dès 1925 suite aux expériences de Stern et Gerlach en 1921, le spin de l'électron fut ignoré par l'électronique jusqu'en 1988 et la découverte simultanée de la magnétorésistance géante par A. Fert et P. Grünberg. La manipulation de l'information contenue dans le spin offrit une nouvelle dimension à l'électronique conventionnelle et, depuis, l'électronique de spin connaît un développement fulgurant.

En réalité, l'effet tunnel polarisé en spin entre deux électrodes constituées de métaux de transition fut observé pour la première fois par Jullière en 1975. Suite aux immenses progrès récents réalisés sur l'élaboration des couches métalliques, les jonctions tunnel magnétiques sont apparues au devant de la scène technologique après que Miyazaki puis Moodera aient obtenu des résultats prometteurs à la température ambiante en 1995. Depuis cette période, les perfectionnements constants dans les procédés d'élaboration ont contribué à améliorer les propriétés de ces systèmes de sorte que les premières mémoires magnétiques non volatiles<sup>1</sup> sont produites industriellement depuis cette année. Les applications des jonctions tunnel magnétiques sont désormais nombreuses et variées (éléments de mémoire, capteurs magnétiques, transistors magnétiques à effet tunnel). Nous orientons le lecteur vers les ouvrages suivants qui en présentent toutes les applications industrielles potentielles [Prinz\_JMMM200\_1999 ; Ziese\_2000].

Jusqu'à présent, les structures utilisant l'effet tunnel polarisé en spin étaient constituées dans leur grande majorité d'électrodes magnétiques polycristallines séparées par une barrière isolante amorphe. Une description correcte et précise des mécanismes de transport tunnel dans de tels systèmes est extrêmement complexe. En effet, dans l'état actuel des modélisations théoriques, seule la connaissance des positions atomiques, notamment dans la barrière tunnel, permet de modéliser les phénomènes électroniques dans la multicouche. Les systèmes épitaxiés autorisent justement une telle modélisation grâce à l'arrangement régulier de leurs atomes et, d'un point de vue expérimental, le perfectionnement des techniques d'élaboration autorise désormais la réalisation de structures conservant un empilement monocristallin dans toute la multicouche.

---

<sup>1</sup> La Magnetic Random Access Memory, ou MRAM, présente tous les avantages cumulés de ses concurrents : non volatilité (Flash), haute densité (DRAM) et rapidité d'accès (SRAM).

L'étude des phénomènes de transport dans les systèmes épitaxiés met en avant l'impact de la symétrie cristalline qu'il s'agisse de celle des métaux ferromagnétiques ou de la barrière. Ces résultats nous invitent à ne plus considérer le caractère orbital des électrons mais leur comportement dans l'environnement cristallin qu'ils perçoivent : les mécanismes de transport sont alors différents suivant la symétrie électronique. Ces systèmes introduisent également une idée nouvelle : la polarisation en terme de symétrie électronique, notion intimement liée à la structure de bande et au magnétisme du cristal métallique. Ce concept novateur est à l'origine des fortes valeurs de magnétorésistance tunnel prédites dans de nombreux systèmes épitaxiés.

Le sujet de recherche de cette thèse s'inscrit dans ce contexte scientifique nouveau. Au delà de la première vision considérant le système Fe/MgO/Fe comme une simple jonction tunnel magnétique susceptible de présenter une magnétorésistance tunnel (TMR) extrêmement élevée, la croissance épitaxiale d'une telle structure en fait un système modèle autorisant la confrontation des prédictions théoriques avec les mesures expérimentales et permettant ainsi une meilleure connaissance de nombreux aspects de la physique fondamentale.

Si, pour l'instant, seule l'épitaxie par jets moléculaires permet de s'approcher du système modèle, la dernière génération de bâtis industriels de pulvérisation cathodique autorisent des conditions de dépôt assez proches et diverses études récentes ont permis de montrer qu'il était possible d'élaborer des barrières de MgO polycristallines par pulvérisation. Ainsi, l'amélioration des procédés de croissance (augmentation de la taille de grain) et de lithographie (diminution de la taille des éléments définis) permettront bientôt de réaliser des jonctions « monocristallines » de la taille d'un grain. Pour ces raisons, de nombreuses équipes de recherche industrielle considèrent le MgO comme l'alumine du futur. L'étude en amont réalisée dans cette thèse pour comprendre et maîtriser la physique et les paramètres sous-jacents est donc primordiale.

Le premier chapitre rappelle brièvement les mécanismes de transport dans les jonctions tunnel magnétiques ainsi que les principaux résultats obtenus sur les systèmes épitaxiés ou semi-épitaxiés afin de préciser le contexte dans lequel cette thèse commença.

Le deuxième chapitre présente la brique indispensable à la conception d'un système modèle : la maîtrise de l'élaboration et de l'épitaxie des couches minces. La croissance et la structure des multicouches ont été étudiées à diverses échelles spatiales grâce aux techniques de diffraction d'électrons à haute énergie en incidence rasante, microscopie à force atomique et microscopie électronique à transmission. La fin de cette partie est consacrée à la description du procédé de lithographie et aux améliorations apportées tout au long de cette thèse.



Dans le troisième chapitre, nous abordons les propriétés magnétiques d'une JTM. L'essentiel de ce chapitre porte sur la mise en évidence expérimentale d'un couplage entre deux couches ferromagnétiques via un mécanisme prévu théoriquement mais jamais observé expérimentalement : le couplage par effet tunnel polarisé en spin. Cette nouvelle interaction magnétique a été utilisée pour la conception de systèmes antiferromagnétiques artificiels.

Le quatrième chapitre est dédié à l'approche théorique et à la compréhension des mécanismes qui gouvernent le transport polarisé en spin dans les jonctions cristallines. Il regroupe les bases indispensables pour appréhender les phénomènes magnétorésistifs propres aux systèmes épitaxiés.

Enfin, le dernier chapitre concerne les résultats magnétorésistifs obtenus sur notre système. En nous appuyant sur les principes théoriques vus au quatrième chapitre, nous analyserons les fortes valeurs de TMR observées ainsi que le comportement en température et l'impact de la contamination en carbone à l'interface métal/isolant sur la TMR. Nous mettrons également en évidence la participation à la conductance tunnel d'un état de résonance interfaciale entraînant une inversion du signe de la TMR.



# Chapitre I

## Introduction à la physique des jonctions tunnel magnétiques

De manière simple, une jonction tunnel magnétique (JTM) est constituée de deux métaux ferromagnétiques de champs coercitifs différents et séparés par une fine couche isolante de quelques nanomètres d'épaisseur. Parce que les électrons obéissent aux lois de la physique quantique, la probabilité de passage d'un électron «à travers» l'isolant n'est pas nulle. L'effet tunnel représente le passage de cette particule quantique à travers une barrière de potentiel quand l'énergie de la particule ne dépasse pas la hauteur de la barrière. Lorsqu'on applique une tension, un courant net d'électrons s'établit. La résistance électrique du système dépend alors de la configuration magnétique des électrodes. De plus, le magnétisme d'un métal est lié à l'existence d'un champ moléculaire entraînant une asymétrie de la structure de bandes : les populations des électrons de spin *up* et *down* dans les métaux ne sont pas égales. Ainsi, par analogie avec l'optique, on peut considérer que la première électrode magnétique agit comme un polariseur. Les électrons, alors polarisés en spin, franchissent la barrière de potentiel et « arrivent » dans la deuxième électrode : l'analyseur. Si l'analyseur est dans la même configuration magnétique que le polariseur, alors le courant d'électrons est fort, sinon il est très faible. Il s'en suit une modification de la conductance électrique, et donc de la résistance, en fonction de la configuration magnétique du système : c'est ce que l'on appelle l'effet magnétorésistif.

La première partie de ce chapitre est une introduction à la physique des jonctions tunnel magnétiques. Elle a pour but la compréhension des différents mécanismes que sont l'effet tunnel, la conductance et leur association avec le magnétisme des électrodes métalliques au sein d'une JTM.

L'état de l'art sur les systèmes semi-épitaxiés puis ensuite sur les JTM totalement épitaxiées est présenté dans une seconde partie afin de situer le contexte dans lequel s'inscrit cette thèse, notamment en ce qui concerne le système Fe/MgO/Fe.

## **I.1 Le transport polarisé en spin dans les JTM**

### **I.1.1 Origine de la magnétorésistance tunnel et principe de fonctionnement d'une JTM**

Au delà de l'analogie « polariseur-analyseur », les mécanismes du transport tunnel dans les JTM sont illustrés à la figure I-1. L'application d'une différence de potentiel  $V$  entre les deux électrodes ferromagnétiques se traduit par le décalage d'énergie  $eV$  des bandes électroniques de l'électrode reliée à la borne + (celle de droite dans la figure I-1). Les électrons de l'électrode de gauche, ou électrode émettrice, dont l'énergie est comprise entre  $E_F - eV$  et  $E_F$  vont alors pouvoir passer par effet tunnel et occuper les états libres dans la deuxième électrode qui correspondent à des énergies entre  $E_F$  et  $E_F + eV$  dans le référentiel de droite. Nous supposons que le spin est conservé lors du passage par effet tunnel.

**En configuration magnétique parallèle (P)**, les densités d'états de spin  $up$ ,  $n_1^\uparrow$  et  $n_2^\uparrow$ , sont majoritaires dans les deux électrodes ferromagnétiques. La conductance du canal de spin  $up$  associé est donc élevée, autrement dit, sa résistance électrique est faible. A l'inverse, les populations de spin  $down$  sont minoritaires et la résistance associée au canal de spin  $down$  est élevée. Si les deux canaux de spin sont considérés comme indépendants, la résistance totale de la jonction correspond à l'association en parallèle des résistances de deux canaux de spin. Ainsi, la résistance de la jonction en configuration magnétique parallèle est faible.

**En configuration magnétique antiparallèle (AP)**, le canal de spin  $up$  correspond au passage des électrons  $n_1^\uparrow$  majoritaires vers les états  $n_2^\uparrow$  minoritaires. Le canal de spin  $down$  concerne les états  $n_1^\downarrow$  minoritaires et  $n_2^\downarrow$  majoritaires. Les résistances de chaque canal de spin sont donc élevées et par conséquent, la résistance totale de la jonction est élevée.

La magnétorésistance tunnel, qui sera abrégée  $TMR$  par la suite, correspond à la variation relative de la résistance du système entre ses deux valeurs extrêmes soit :

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

où  $G=1/R$  représente la conductance.

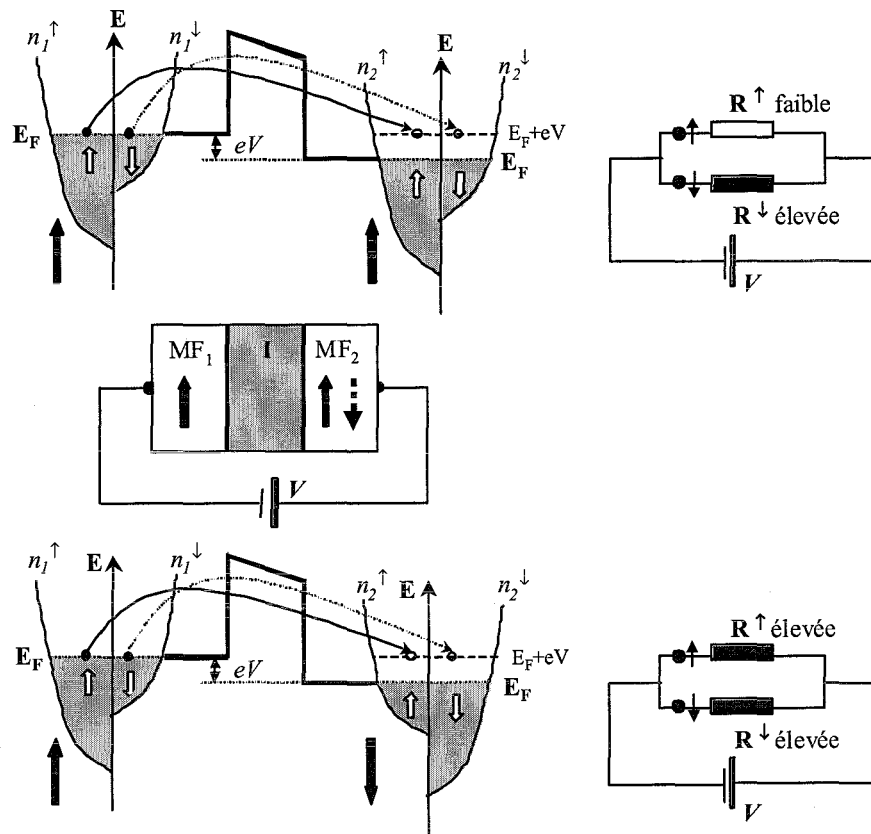


figure I-1

Effet tunnel entre deux métaux ferromagnétiques ( $MF_1$  et  $MF_2$ ) séparés par une barrière rectangulaire, déformée par une tension électrique appliquée  $V$ . Les densités d'états  $n_1^\uparrow(E)$ ,  $n_2^\uparrow(E)$ ,  $n_1^\downarrow(E)$  et  $n_2^\downarrow(E)$  sont schématisées dans cette figure par des paraboles décalées en énergie par l'échange. En considérant que le spin de l'électron est conservé lors du processus tunnel, les électrons de spin up et de spin down peuvent traverser la barrière tunnel de manière indépendante. Alors, la conduction électrique dans une jonction tunnel peut être modélisée en parallèle de deux résistances électriques, chaque résistance correspondant à un canal de spin. La résistance totale de la jonction tunnel est analysée dans les situations pour lesquelles les aimantations dans les deux électrodes se trouvent dans une configuration parallèle ou antiparallèle. Après leur arrivée dans l'électrode de droite, les électrons sont thermalisés à une énergie inférieure à  $E_F$ .

L'utilisation de l'effet magnétorésistif repose ainsi sur la capacité à contrôler précisément l'orientation magnétique des couches. Ceci est rendu possible en utilisant des matériaux avec des champs coercitifs fortement différents. Le principe de fonctionnement de cette architecture douce-dure est expliqué en détails à la figure I-2 au travers de la description du cycle magnétorésistif d'une JTM en fonction de l'orientation magnétique de ses électrodes. Nous supposons que le système est parfait, à savoir que les axes faciles des deux couches sont identiques et que les renversements d'aimantation sont abrupts. A fort champ magnétique, la JTM est en configuration P et la résistance associée est faible (état (1), figure I-2). Lorsque le champ magnétique appliqué diminue, cette configuration P est conservée jusqu'à un champ négatif égal au champ coercitif de la couche magnétique douce ( $-H_{c1}$ ). La couche douce se renverse alors et la JTM est en configuration AP : sa résistance augmente fortement (état (2), figure I-2). Cette configuration est maintenue jusqu'au renversement de la couche magnétique dure pour un champ négatif égal à  $-H_{c2}$ .

La JTM est alors de nouveau en configuration P (état (3), figure I-2) et sa résistance redevient faible. Enfin, lorsque la variation du champ magnétique appliqué change de sens (champ négatif → champ positif), on observe un cycle retour similaire (états (4) puis (1), figure I-2).

Après avoir saturé l'échantillon dans une direction particulière, supposons que l'on applique un champ magnétique compris entre  $H_{c1}$  et  $H_{c2}$  : la couche dure reste rigide alors que la couche douce est libre de tourner pour suivre la direction du champ. En appelant  $\theta$  l'angle entre les aimantations, une configuration magnétique quelconque du système conduit à :

$$R(\theta) = \left( \frac{R_P + R_{AP}}{2} \right) + \left( \frac{R_P - R_{AP}}{2} \right) \cos \theta \text{ soit } TMR(\theta) = TMR_{\max} \left[ \frac{1 - \cos \theta}{2} \right]. \quad (I-2)$$

Cette propriété est utilisée par exemple dans les capteurs magnétiques de position angulaire [Coerhoon\_1999 ; Daughton\_IEEE30\_1994].

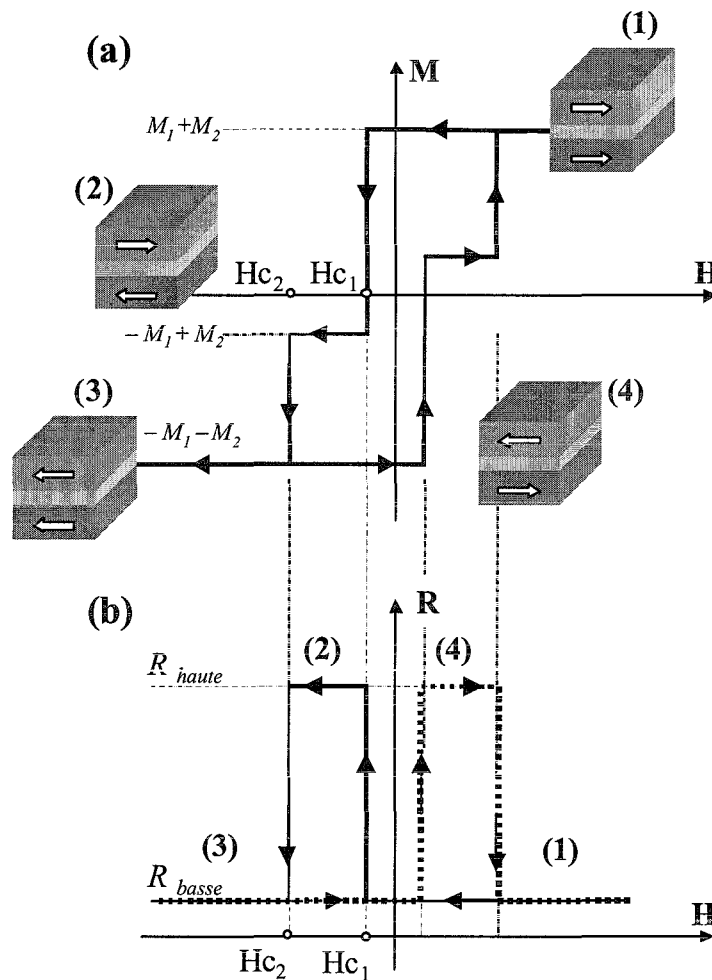


figure I-2

Fonctionnement d'une jonction tunnel magnétique idéale. Les deux électrodes magnétiques ont des champs coercitifs différents ( $H_{c2} > H_{c1}$ ) et leurs cycles d'aimantations sont supposés parfaitement carrés. A partir du cycle d'aimantation total  $M$ - $H$  (a), on peut estimer l'allure du cycle de magnétorésistance  $R$ - $H$  (b). Les schémas (1)-(4) montrent la configuration magnétique des électrodes dans la jonction tunnel, pour des valeurs représentatives du champ magnétique.

## I.1.2 Conduction par effet tunnel entre deux métaux

Bardeen [Bardeen\_PRL6\_1961] a exprimé la probabilité par unité de temps pour qu'un électron d'énergie  $E$  dans l'électrode de gauche ( $MF_1$ ) passe par effet tunnel et se retrouve dans un état de la même énergie mais dans l'électrode de droite ( $MF_2$ ) (on peut remarquer l'analogie avec la règle d'or de Fermi) :

$$P_{12}(E) = \frac{2\pi}{\hbar} |M_{12}(E, V)|^2 f_1(E) n_1(E) (1 - f_2(E + eV)) n_2(E + eV) \quad (I-3)$$

où  $f_1(E)$  et  $f_2(E+eV)$  sont les probabilités d'occupation des états dans les électrodes  $MF_1$  et  $MF_2$  aux énergies  $E$  et  $E+eV$  respectivement,

$n_1(E)$  et  $n_2(E+eV)$  sont les densités d'états aux énergies  $E$  et  $E+eV$  dans les électrodes correspondantes,

$M_{12}(E, V)$  est l'élément de matrice de la transition.

Le calcul de  $M_{12}$  montre que l'effet tunnel conserve la composante du vecteur d'onde parallèle au plan de la jonction,  $k_{\parallel}$ . Par conséquent, la densité de courant  $J_{12}$  qui passe de  $MF_1$  vers  $MF_2$  s'écrit :

$$J_{12} = -\frac{4\pi e}{\hbar} \sum_{k_{\parallel}} \int_{-\infty}^{\infty} |M_{12}(E)|^2 f_1(E) n_1(E) (1 - f_2(E + eV)) n_2(E + eV) dE. \quad (I-4)$$

Le courant inverse  $J_{21}$  passant de l'électrode  $MF_2$  vers l'électrode  $MF_1$  est donné par :

$$J_{21} = -\frac{4\pi e}{\hbar} \sum_{k_{\parallel}} \int_{-\infty}^{\infty} |M_{12}(E)|^2 f_2(E + eV) n_2(E + eV) (1 - f_1(E)) n_1(E) dE. \quad (I-5)$$

La densité de courant total est alors  $J_{12} - J_{21}$ , soit :

$$J = -\frac{4\pi e}{\hbar} \sum_{k_{\parallel}} \int_{-\infty}^{\infty} |M_{12}(E)|^2 n_1(E) n_2(E + eV) (f_1(E) - f_2(E + eV)) dE \quad (I-6)$$

avec  $f_1(E) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{E - E_F}{kT}\right)}$  et  $f_2(E + eV) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{E + eV - E_F}{kT}\right)}$

La conductance dynamique  $dJ/dV$  par unité de surface s'écrit alors :

$$G(V) = \frac{dJ}{dV} = -\frac{2e^2}{\hbar} \sum_{k_{\parallel}} \int_{-\infty}^{\infty} |M_{12}(E)|^2 n_1(E) n_2(E + eV) \frac{df_2(E + eV)}{d(eV)} dE \quad (I-7)$$

A une température nulle, le terme  $\frac{df_2(E+eV)}{d(eV)}$  a une largeur à mi-hauteur égale à  $kT$  si bien qu'à température nulle et pour de faibles valeurs de la tension appliquée, la conductance dynamique est proportionnelle au produit des densités d'états au niveau de Fermi :  $G_{T=0K} \propto n_1(E_F)n_2(E_F)$  ; ce résultat sera exploité par Jullière pour construire son modèle explicité au paragraphe suivant. Dans le calcul ci-dessus, le spin des électrons n'a pas été pris en compte : suivant la configuration magnétique considérée, il suffit d'ajouter un indice supplémentaire ( $\sigma = \uparrow$  ou  $\downarrow$ ) aux populations  $n_1(E_F)$  et  $n_2(E_F)$ .

### I.1.3 Modèle de Jullière

Jullière utilisa la formule précédente pour expliquer les premiers résultats de magnétorésistance tunnel obtenus sur le système Fe/Ge/Co [Jullière\_PL54\_1975]. Il supposa que la conduction se fait selon deux canaux de spin indépendants ( $\uparrow$  et  $\downarrow$ ) et que le spin est conservé lors du processus

tunnel. En utilisant la définition suivante de la polarisation d'un ferromagnétique :  $P = \frac{n^\uparrow - n^\downarrow}{n^\uparrow + n^\downarrow}$ ,

il obtint une formule reliant la magnétorésistance avec les polarisations des électrodes :

$$TMR = \frac{G_P - G_{AP}}{G_{AP}} = \frac{[n_1^\uparrow(E_F)n_2^\uparrow(E_F) + n_1^\downarrow(E_F)n_2^\downarrow(E_F)] - [n_1^\uparrow(E_F)n_2^\downarrow(E_F) + n_1^\downarrow(E_F)n_2^\uparrow(E_F)]}{n_1^\uparrow(E_F)n_2^\downarrow(E_F) + n_1^\downarrow(E_F)n_2^\uparrow(E_F)} = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2} \quad (I-8)$$

Dans ce modèle, la TMR dépend uniquement des densités d'états des matériaux au niveau de Fermi, mais la barrière ne joue aucun rôle.

### I.1.4 Modèle des électrons libres

Considérons des électrons libres, arrivant sur une barrière de potentiel de profil rectangulaire (figure I-3). Les potentiels vus par un électron dans les trois régions sont  $V_1$ ,  $V_b$  et  $V_2$  respectivement, avec  $V_1 \leq E_F$ ,  $V_2 \leq E_F$  et  $V_b > E_F$ . Nous supposons que les métaux ferromagnétiques peuvent être décrits par deux demi-bandes paraboliques décalées l'une par rapport à l'autre par le champ moléculaire  $h_i$ . Suivant le spin  $\sigma$  considéré, les potentiels  $V_1^\sigma$  et  $V_2^\sigma$  correspondront à  $V_1^\uparrow$  ou  $V_1^\downarrow$ . Le champ moléculaire est alors donné par  $(V_1^\uparrow - V_1^\downarrow)$ .



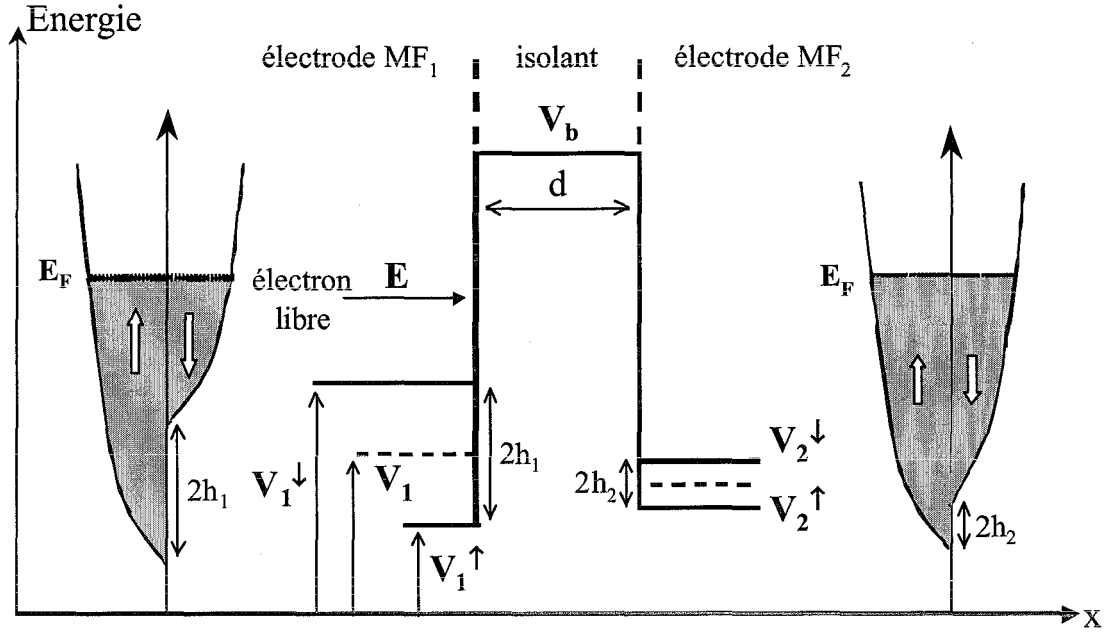


figure 1-3

Electron libre arrivant sur une marche de potentiel  $V_b$ . Voir le texte pour la définition de chaque terme.

La résolution de l'équation de Schrödinger en utilisant la continuité de la fonction d'onde et de sa dérivée aux interfaces dans chacune des régions montre que pour un électron d'énergie  $E$  dans l'électrode  $MF_1$ , la composante du vecteur d'onde associé perpendiculaire au plan de la barrière vaut  $k_1^\sigma = \sqrt{(2m/\hbar^2)(E - V_1^\sigma - k_{||}^2)}$  et pour un électron dans l'électrode  $MF_2$   $k_2^\sigma = \sqrt{(2m/\hbar^2)(E - V_2^\sigma - k_{||}^2)}$ . A l'intérieur de la barrière, la fonction d'onde est une combinaison linéaire d'exponentielles croissantes et décroissantes avec le vecteur d'onde  $\kappa = \sqrt{(2m/\hbar^2)(V_b - E + k_{||}^2)}$  (fonctions de Airy).

En notant  $d$  l'épaisseur de la barrière, la probabilité de transmission en fonction de  $k_{||}$  s'écrit alors [Duke\_1969 ; MacLaren\_PRB56\_1997] :

$$T_{12}(k_{||}) = \frac{16k_1\kappa^2 k_2 e^{2d\kappa}}{\{ \kappa(k_1 + k_2)[1 + \exp(2d\kappa)] \}^2 + \{ (\kappa^2 - k_1 k_2)[1 - \exp(2d\kappa)] \}^2}. \quad (I-9)$$

Le coefficient de réflexion  $R$  est égal à  $1-T$ . Pour des épaisseurs de barrière importantes ( $\exp(2kd) \gg 1$ ),  $T$  est faible et  $R$  est proche de 1. Ainsi,

$$T_{12}(k_{||}) = \frac{16\kappa^2 k_1 k_2 e^{-2d\kappa}}{[\kappa(k_1 + k_2)]^2 + (\kappa^2 - k_1 k_2)^2} \text{ et } G_{12} = \int T_{12}(k_{||}) dk_{||}. \quad (I-10)$$

Considérons que les électrodes MF<sub>1</sub> et MF<sub>2</sub> sont de nature identique. Les deux canaux de spin ont des vecteurs d'onde différents :  $k^\uparrow = \sqrt{(2m/\hbar^2)(E_F - V^\uparrow - k_{||}^2)}$  et  $k^\downarrow = \sqrt{(2m/\hbar^2)(E_F - V^\downarrow - k_{||}^2)}$  au niveau de Fermi<sup>2</sup>. Ainsi, en configuration parallèle, la conductance des électrons majoritaires est obtenue simplement en posant  $k_1=k_2=k^\uparrow$  et celle des électrons minoritaires en posant  $k_1=k_2=k^\downarrow$ . De même, la conductance antiparallèle correspond à  $k_1=k^\uparrow$  et  $k_2=k^\downarrow$ .

De plus, le modèle des électrons libres considère des bandes dispersives de telle sorte que la densité d'états de ces bandes au niveau de Fermi est proportionnelle à leur vecteur d'onde de Fermi [Stearns\_JMMM5\_1977]. Dans le cadre de ce modèle, la polarisation utilisée par Jullière se traduit

$$\text{par } P = \frac{k_\uparrow - k_\downarrow}{k_\uparrow + k_\downarrow}.$$

### I.1.5 Modèle de Slonczewski

La première approche théorique précise de la magnétorésistance tunnel entre deux électrodes identiques (MF<sub>1</sub>=MF<sub>2</sub>) fut faite par Slonczewski [Slonczewski\_PRB39\_1989]. Nous verrons ce modèle plus en détail au chapitre III pour expliquer le couplage entre deux couches ferromagnétiques séparées par une très fine barrière isolante. Toujours en restant dans le cadre du modèle des électrons libres, il supposa que seuls les électrons au niveau de Fermi participent au courant ; après intégration en  $k_{||}$  et en ne conservant que les termes dominants en  $1/d$ , les conductances dans les configurations magnétiques P et AP, notées  $G_P$  et  $G_{AP}$  sont telles que :

$$G_P \propto \frac{\kappa_0}{d} [T_{\uparrow\uparrow}(k_{||}=0) + T_{\downarrow\downarrow}(k_{||}=0)] = \frac{\kappa_0}{d} \left[ \frac{16\kappa_0^2 k_\uparrow^2 e^{-2d\kappa_0}}{(\kappa_0^2 + k_\uparrow^2)^2} + \frac{16\kappa_0^2 k_\downarrow^2 e^{-2d\kappa_0}}{(\kappa_0^2 + k_\downarrow^2)^2} \right]$$

(I-11)

et

$$G_{AP} \propto \frac{\kappa_0}{d} [T_{\uparrow\downarrow}(k_{||}=0) + T_{\downarrow\uparrow}(k_{||}=0)] = \frac{\kappa_0}{d} \left[ \frac{32\kappa_0^2 k_\uparrow k_\downarrow e^{-2d\kappa_0}}{[\kappa_0(k_\uparrow + k_\downarrow)]^2 + (\kappa_0^2 - k_\uparrow k_\downarrow)^2} \right]$$

où  $\kappa_0$  est le vecteur d'onde des électrons dans la barrière pour  $k_{||}=0$ .

La magnétorésistance s'écrit alors :

$$TMR = \frac{G_P - G_{AP}}{G_{AP}} = \frac{2P_{eff}^2}{1 - P_{eff}^2} \text{ avec } P_{eff} = \frac{k_\uparrow - k_\downarrow}{k_\uparrow + k_\downarrow} \frac{\kappa_0^2 - k_\uparrow k_\downarrow}{\kappa_0^2 + k_\uparrow k_\downarrow}. \quad (I-12)$$

<sup>2</sup> En général on limite l'étude aux électrons situés au niveau de Fermi car d'une part, on se place à la température de 0K et d'autre part, ce sont ceux qui ont la plus grande probabilité de passer par effet tunnel compte tenu de leur énergie.

Le résultat obtenu par Slonczewski a la même forme que celui du modèle de Jullière mais en considérant cette fois une polarisation effective, produit de la polarisation des électrodes ferromagnétiques et d'un terme qui dépend de la hauteur de la barrière<sup>3</sup>. Ainsi, à la différence du modèle de Jullière, la magnétorésistance dépend du type de jonction tunnel : Slonczewski fut le premier à considérer que la polarisation « tunnel » n'est pas une propriété intrinsèque des métaux mais dépend du couple {métal-isolant} considéré. Des expériences récentes ont clairement validé ce concept et ont montré la forte dépendance entre la polarisation en spin et les propriétés structurales et électroniques des métaux, de l'isolant et de leurs interfaces [DeTeresa\_PRL82\_1999].

## 1.1.6 Conclusion

Les modèles décrits ci-dessus permettent de comprendre les bases des phénomènes du transport tunnel polarisé en spin. Ces approches ont le mérite d'être facilement abordables et surtout physiquement transparentes. Leur attractivité réside dans la simplicité de la description du potentiel et de la structure de bande.

D'un point de vue expérimental, le modèle des électrons libres est suffisant pour expliquer les résultats magnétorésistifs obtenus pour des jonctions tunnel magnétiques constituées d'électrodes polycristallines et d'une barrière amorphe ; il donne le bon (et unique !) taux d'atténuation de la fonction d'onde électronique associée aux électrons en fonction de l'épaisseur de l'isolant. Il est également à la base des formules permettant de simuler les courbes  $I(V)$  et d'en extraire les données relatives à la hauteur de la barrière de potentiel de l'isolant et à son épaisseur [Simmons\_JAP34\_1963 ; Brinkman\_JAP41\_1970]. Malgré les améliorations apportées à ce modèle simpliste au fil du temps [Zhang\_EPJB10\_1999 ; Davis\_JAP87\_2000 ; Montaigne\_PRB64\_2001], divers travaux théoriques en ont montré les limites.

En effet, la polarisation en spin du courant tunnel dépend des liaisons chimiques aux interfaces métal-isolant [Tsymbal\_JPCM9\_1997] et du profil de potentiel énergétique de la barrière [Zhang\_EPJB10\_1999]. De plus, une description plus réaliste de la structure de bande des métaux a mis en évidence l'existence de mécanismes de transport impossibles à décrire avec un raisonnement basé sur les électrons libres [Butler\_JAP81\_1997 ; MacLaren\_PRB56\_1997]. Ainsi, le chapitre IV sera consacré aux caractéristiques du transport tunnel dans les systèmes épitaxiés. Brièvement, dans de tels systèmes, l'épitaxie implique une périodicité du cristal de telle sorte que le potentiel ressenti par les électrons possède la périodicité de la structure. Par conséquent, les électrons sont décrits par des ondes de Bloch. Ainsi, la symétrie cristalline joue

---

<sup>3</sup> Dans le cas de barrières hautes ( $\kappa \gg k_{\uparrow, k_{\downarrow}}$ ) on retrouve le résultat de Jullière.

un rôle essentiel dans le transport tunnel : les électrons ne sont plus distingués suivant leur caractère orbital mais classés par rapport à la symétrie de leur fonction d'onde électronique associée. Ceci donne naissance à différents taux de décroissance de la probabilité de transmission dans l'isolant, suivant leur symétrie [MacLaren\_PRB59\_1999].

## **I.2 Systèmes partiellement ou totalement épitaxiés**

Les phénomènes de transport dans les structures épitaxiées sont donc particulièrement intéressants mais, avant le début de cette thèse et jusqu'à présent, peu de systèmes totalement monocristallins ont été élaborés avec succès et seules les jonctions tunnel semi-épitaxiées, c'est-à-dire dont l'unique partie monocristalline est l'électrode inférieure, présentaient une croissance et des propriétés magnétorésistives suffisamment maîtrisées pour étudier la relation entre la structure électronique et les mécanismes de transport tunnel. Cette partie présente quelques-uns des travaux réalisés sur des systèmes épitaxiés.

### **I.2.1 Systèmes semi-épitaxiés**

Après les expériences récentes de LeClair et al. montrant le rôle décisif de la structure interfaciale sur l'effet tunnel polarisé en spin [LeClair\_PRL84\_2000 ; LeClair\_PRL86\_2001], cette même équipe a clairement mis en évidence l'impact de la structure cristalline sur le transport tunnel [LeClair\_PRL88\_2002]. Pour ce faire, ils ont réalisé des JTM de type  $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ , soit avec une électrode inférieure texturée cubique à faces centrées (cfc) (111) et une électrode supérieure polycristalline (mélange de structures hexagonale compacte, cfc et de fautes d'empilement), soit avec deux électrodes polycristallines. L'utilisation du même métal mais sous deux phases cristallines différentes permet de se concentrer uniquement sur les changements induits dans les structures électronique et cristalline. Leurs travaux mettent en évidence la participation d'une bande minoritaire de l'électrode de Co cfc (111). Cette bande est située au dessus du niveau de Fermi, elle ne participe donc au courant tunnel que lorsque les électrons sont injectés de l'électrode polycristalline vers l'électrode cfc, augmentant la conductance du canal minoritaire. La participation de cette bande au processus tunnel seulement pour une polarisation donnée des électrodes explique l'asymétrie de la courbe  $G(V)$  obtenue. Les résultats de LeClair et al. sont confirmés qualitativement par le modèle développé par Davis et MacLaren qui étend celui de Slonczewski (électrons libres arrivant sur une marche de potentiel) en considérant le décalage des bandes en énergie et la déformation de la barrière, phénomènes résultant de l'application d'une tension [Davis\_JAP87\_2000].

L'influence de l'orientation cristalline des métaux ferromagnétiques a également été étudiée par Yuasa et al. [Yuasa\_EPL52\_2000]. En variant les substrats et les couches tampons, ils ont pu réaliser des échantillons semi-épitaxiés du type  $\text{Fe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$  avec des électrodes inférieures monocristallines de Fe cubique centré d'orientations successives (100), (110) et (211). A  $T=2\text{K}$ , les TMR moyennes sont de 13% pour le Fe(100), 32% pour le Fe(110) et 42% pour le Fe(211). Ce résultat montre le fort impact de l'anisotropie de la surface de Fermi mais va à l'encontre des prédictions théoriques de Butler et ses collaborateurs qui prévoient une TMR maximale pour le Fe(100) [Butler\_PRB63\_2001a]. Ils préconisent en effet de s'intéresser aux symétries électroniques et à leurs propagations à travers l'isolant plutôt qu'à la polarisation globale au niveau de Fermi du métal massif [MacLaren\_PRB59\_1999 ; chapitre IV]. Ces résultats contradictoires s'expliquent par le fait que la barrière utilisée par Yuasa et al. est l'alumine amorphe alors que les calculs de Butler traitent le cas d'une barrière monocristalline de MgO. En supposant que les liaisons aux interfaces sont grossièrement les mêmes pour toutes les symétries électroniques, le seul effet d'une barrière amorphe est de favoriser le passage des électrons d'incidence normale, indépendamment de leur symétrie, à l'inverse d'une barrière cristalline. Cette approximation nécessite, de plus, de supposer que la croissance de l'alumine, bien qu'amorphe, ne dépend pas de l'orientation cristalline du Fe ce dont les auteurs ne discutent pas dans leur article. De plus, aucun changement significatif de l'amplitude de la TMR n'est observé lorsque l'épaisseur de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  augmente. Ceci traduit l'absence d'effet de filtrage en symétrie par la barrière amorphe, contrairement à une barrière épitaxiée (voir partie IV.2).

Cette même équipe a mis en évidence la modification des états électroniques par la présence de puits quantiques dans une fine couche monocristalline de Fe(100) au sein de la structure  $\text{MgO}(100)/\text{Cr}(100)(20\text{nm})/\text{Fe}(100)(\text{fin})/\text{Al}_2\text{O}_3(1.7\text{nm})/\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}(20\text{nm})$  [Nagahama\_APL79\_2001]. Les calculs montrent que la structure de bande du Fe minoritaire est similaire à celle du Cr. Ainsi, les puits quantiques ne sont formés que pour le spin majoritaire (la bande  $\Delta_1$  du Cr n'apparaît qu'à 0.9eV au dessus du niveau de Fermi). Ils se manifestent par l'apparition d'oscillations dans la conductivité différentielle et uniquement lorsque les électrons sont injectés dans la couche ultramince de Fe. Lorsque la tension dépasse 0.9V, les oscillations disparaissent quelle que soit l'épaisseur de la couche de Fe : les électrons majoritaires ne sont plus confinés dans la fine couche de Fe puisqu'ils peuvent alors pénétrer dans le Cr. Nous pouvons également citer leurs travaux sur l'étude de puits quantiques non magnétiques dans le système semi-épitaxié  $\text{Co}(001)/\text{Cu}(001)(\text{fin})/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  [Yuasa\_Science297\_2002].

Récemment, le groupe de Kirschner a voulu identifier l'origine de ce que l'on appelle Zero Bias Anomaly (ZBA) : la TMR chute très rapidement lorsque la tension appliquée augmente de 0 à environ 100mV. En général, les mesures de magnétorésistance sont effectuées pour des faibles tensions appliquées<sup>4</sup>. Cependant, la potentialité des JTM comme composants de l'électronique de

---

<sup>4</sup> Typiquement 10mV.

demain nécessite qu'elles conservent des propriétés magnétorésistives similaires pour des tensions relativement élevées, ceci en vue de leur intégration dans des architectures plus complexes. Le phénomène de ZBA est particulièrement visible dans le cas de barrières amorphes. Trois facteurs sont généralement invoqués : effets de structure de bande [DeTeresa\_PRL82\_1999], diffusion aux interfaces via les magnons [Mooder\_PRL80\_1998] et dépolarisation via des défauts dans la barrière [Zhang\_JAP83\_1998]. Ding et al. ont alors utilisé une « JTM » constituée d'une pointe STM<sup>5</sup> magnétique comme première électrode, le vide comme barrière et un échantillon monocristallin de Co(0001) [Ding\_PRL90\_2003]. Bien que dans leur système les magnons soient toujours présents, le vide présente l'avantage d'être une barrière parfaite, sans impureté ni défaut, à l'inverse des barrières « physiques » utilisées dans les JTM *tout solide*, ce qui permet d'éliminer l'une des causes probables de cette anomalie. Lorsque la pointe STM est relativement éloignée de la surface de Co, ils observent une TMR constante jusqu'à  $\pm 0.9V$ . Ce résultat montre que les magnons ne sont pas suffisants pour expliquer la ZBA dont les auteurs attribuent ainsi l'origine à la dépolarisation des électrons par des défauts présents habituellement dans les barrières amorphes.

## 1.2.2 Jonctions tunnel totalement épitaxiées

De Teresa et al ont étudié divers types de barrière et ont montré que le signe de la TMR dépend du couple {métal-isolant} [DeTeresa\_PRL82\_1999]. Après avoir démontré le caractère quasi demi-métallique de la manganate  $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$  associée à une barrière de  $SrTiO_3$  (la polarisation interfaciale a été estimée égale à +95%), ils ont pu utiliser le couple  $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3/SrTiO_3$  comme un analyseur de spin. Ils ont ainsi observé une inversion du signe de la TMR avec la tension appliquée sur des échantillons du type  $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3/SrTiO_3/Co$ . Pour une tension de  $-0.4V$  (borne positive connectée à l'électrode  $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$ ), la TMR est maximale et négative puis elle devient positive au delà de  $0.8V$ . Leurs résultats qualitatifs sont en très bon accord avec la forme de la densité d'états du Co et montrent son influence sur le transport tunnel. De plus, l'inversion de TMR observée dans le cas de jonctions  $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3/I/Co$  ( $I = SrTiO_3, TiO_2, Ce_{0.69}La_{0.31}O_{1.845}$ ) met également en avant la polarisation négative à l'interface Co/I. Ceci s'explique par des liaisons interfaciales favorables aux électrons  $d$ , alors que dans le cas de l'alumine, les liaisons chimiques Co-O favorisent le tunnel d'électrons de type  $s$  [Oleinik\_PRB62\_2000] et la polarisation est positive. Les résultats de cette équipe montrent clairement que le processus tunnel doit prendre en compte non plus le métal et l'isolant séparément, mais comme formant un ensemble. Peu avant, Sharma et al. étaient arrivés à des conclusions similaires mais sur des jonctions polycristallines avec des barrières amorphes, oxydées par plasma, en  $Ta_2O_5$  et  $Ta_2O_5/Al_2O_3$  [Sharma\_PRL82\_1999] ; l'interprétation de leurs résultats reste sujette à débat quant à la similarité de l'oxydation à chaque interface, autre explication possible des effets observés.

<sup>5</sup> Scanning Tunneling Microscopy, technique de microscopie à champ proche utilisant l'effet tunnel.

Dans le cas de barrières semi-conductrices, le gap est plus faible que celui des barrières isolantes. D'un point de vue technologique, ceci permet d'obtenir des produits  $R \times A$  nettement inférieurs<sup>6</sup> pour des épaisseurs relativement importantes de barrière limitant ainsi l'apparition de trous dans la couche isolante. Le ZnSe ayant un paramètre de maille double de celui du Fe (1.1% de désaccord paramétrique), Gustavsson et al. ont réalisé des barrières épitaxiées Fe/ZnSe/FeCo sur des substrats de GaAs par épitaxie par jets moléculaires [Gustavsson\_PRB64\_2001]. Une TMR de 16% fut obtenue à 10K mais à partir de 50K, l'apparition de canaux de conduction parasite détruit la TMR. Récemment Jiang et al. ont combiné plusieurs techniques (pulvérisation cathodique et par faisceaux d'ions, cellule d'évaporation) pour élaborer des échantillons Fe/ZnSe/Fe montrant 10% de TMR à T=295K et 20% à 15K [Jiang\_APL83\_2003]. Lorsque l'épaisseur de la barrière devient supérieure à 100Å, la TMR chute rapidement et la résistance tunnel augmente plus lentement avec l'épaisseur, ce qui traduit l'apparition d'un transport via les défauts dans le ZnSe qui apparaissent à partir de cette épaisseur.

### I.2.3 Le système Fe/MgO/Fe

Les premiers essais de mesures de propriétés magnétorésistives sur le système Fe/MgO/Fe furent réalisées par Keavney et al. [Keavney\_JAP81\_1996]. Malheureusement, bien qu'élaborés par épitaxie par jets moléculaires<sup>7</sup>, leurs échantillons présentaient des trous dans la couche de MgO persistant pour des épaisseurs allant jusqu'à 1000Å, preuve d'une forte rugosité interfaciale directement liée au protocole expérimental; le résultat est un contact ohmique direct entre les deux électrodes métalliques.

De son côté, l'équipe de Kirschner (Max-Planck Institut für Mikrostrukturphysik, Halle, Allemagne) s'est intéressée dès 2000 à la réalisation de JTM épitaxiées Fe/MgO/Fe sur des whiskers de Fe(100) [Klaauw\_PRB64\_2001]. Les couches de MgO déposées par bombardement électronique furent étudiées directement *in situ* par STM. En plus d'une simple cartographie topographique de la surface de MgO, cette équipe a mesuré des courbes I(V) en chaque point des images STM. Leur étude confirme la grande qualité du MgO déposé sur une couche de Fe monocristalline et plane. De plus, leurs résultats montrent que la hauteur de la barrière tunnel dépend de l'épaisseur de MgO, soit 2.5eV pour 2 monocouches et atteignant 3.6eV, i.e. proche de la valeur attendue pour le MgO massif, à partir de 6 monocouches [Wulfhekel\_APL78\_2001].

---

<sup>6</sup> Le produit  $R \times A$  représente la résistance de la jonction multipliée par sa surface. Il s'agit de l'une des grandeurs physiques intéressantes dans le domaine des JTM ; pour les têtes de lecture, des produits  $R \times A$  de quelques  $\Omega \cdot \mu\text{m}^2$  sont nécessaires.

<sup>7</sup> Cette technique de dépôt est celle utilisée dans le cadre de cette thèse ; elle est décrite au chapitre II.

Cependant ces résultats correspondent à des mesures locales. Dans les JTM, dont la surface est de l'ordre de  $10^9$  fois supérieure à la zone d'intégration du signal d'une pointe STM (inférieure à  $1\text{nm}^2$ ), il faut prendre en considération tous les défauts éventuels (trous ou même tout simplement une faible rugosité) dont l'effet est de diminuer la hauteur effective moyenne. Cependant, il est indéniable que le comportement d'une couche de MgO est affecté par son épaisseur sans doute parce que la structure de bande n'est pas la même et/ou parce que les états de résonance interfaciale à la surface du Fe monocristallin se font fortement ressentir dans le régime des faibles épaisseurs (voir partie IV.5). Les résultats publiés par l'équipe de Kirschner concernent plutôt la caractérisation de la couche de MgO mais aucune étude de transport polarisé en spin n'est parue.

Bowen et ses collaborateurs (Thalès, Orsay et Instituto de Microelectronica, Madrid) furent les premiers à obtenir des résultats magnétorésistifs sur le système épitaxié Fe(100)/MgO/Fe<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> déposé par pulvérisation et ablation laser [Bowen\_APL79\_2001]. Ils utilisèrent un substrat de GaAs(001) sur lequel une couche tampon de MgO recuite à 400°C présente une bonne cristallinité et empêche la diffusion de As dans l'électrode de Fe. La TMR atteint 60% à 30K et 27% à température ambiante (figure I-4). Comme cela sera vu également à la partie V.1 de cette thèse, leurs jonctions présentent une augmentation linéaire de la TMR lorsque la température décroît.

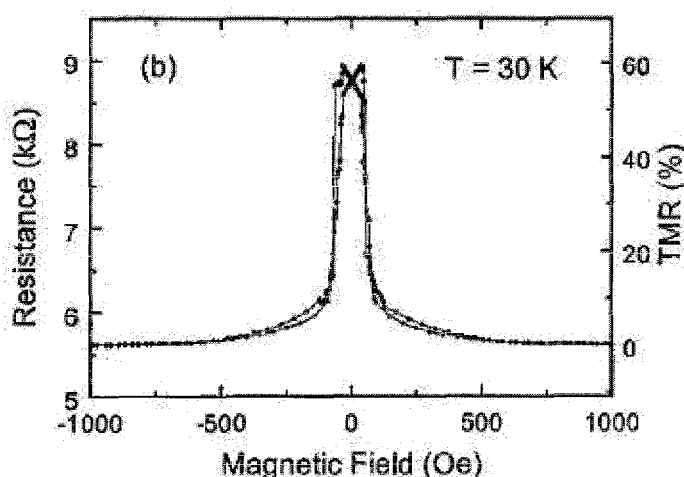


Figure I-4  
 Variation de la résistance et de la TMR d'une jonction pour une tension appliquée de 10mV et à la température de 30K [Bowen\_APL79\_2001].

De plus, leur étude sur des jonctions épitaxiées La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub>/MgO/Fe a permis de montrer que la polarisation tunnel de Fe/MgO est positive malgré une polarisation interfaciale négative au niveau de Fermi. Ces résultats montrent encore une fois l'importance de considérer le couple {métal-insulant} comme un ensemble indissociable et la notion incontournable de symétrie électronique dans les systèmes monocristallins.

De notre côté, peu après le début de cette thèse en 2001, les premières JTM Fe/MgO/Fe élaborées à Nancy ont montré une magnétorésistance de 17% à température ambiante. Tout au long des



diverses réflexions et améliorations apportées, la mise en évidence de la forte influence de la structure électronique et la compréhension des mécanismes entrant en jeu dans le transport tunnel au sein des systèmes épitaxiés ont permis d'obtenir un effet magnétorésistif de 100% à température ambiante en 2003. Parallèlement, un nouveau type d'interaction magnétique, le couplage d'échange par effet tunnel polarisé en spin, a été mis en évidence expérimentalement.

Depuis peu, le groupe de Suzuki (Nanoelectronics Research Institute, Tsukuba, Japon) s'intéresse également au système Fe/MgO/Fe. Leurs jonctions épitaxiées sont déposées par épitaxie par jets moléculaires et leur structure est similaire à la nôtre : MgO(100)/Fe(500Å)/MgO(20Å)/Fe(100Å)/Co(100Å) [Yuasa\_JJAP43\_2004]. La TMR atteint 88% à température ambiante et 146% à  $T=20\text{K}$ . Ils observent une forte asymétrie de la courbe MR(V) (figure I-5) mais se contentent de l'expliquer par des considérations structurales (les interfaces Fe/MgO et MgO/Fe sont différentes), sans s'appuyer sur des arguments de symétrie propres aux jonctions épitaxiées. Contrairement à nos résultats qui ne montrent aucune ZBA, leur courbe représentant la variation de la TMR avec la tension appliquée présente une contribution importante des magnons (la TMR diminue rapidement entre 0 et 300mV). Le  $V_{1/2}$ <sup>8</sup> est de 1.25V, une valeur comparable à celle que nous obtenons (voir paragraphe V.3). Cependant, ils n'observent pas de phénomène d'inversion de TMR lorsque les électrons sont injectés dans l'électrode inférieure alors que nous avons relié cette caractéristique à la présence d'un état de résonance interfaciale (voir paragraphe V.2).

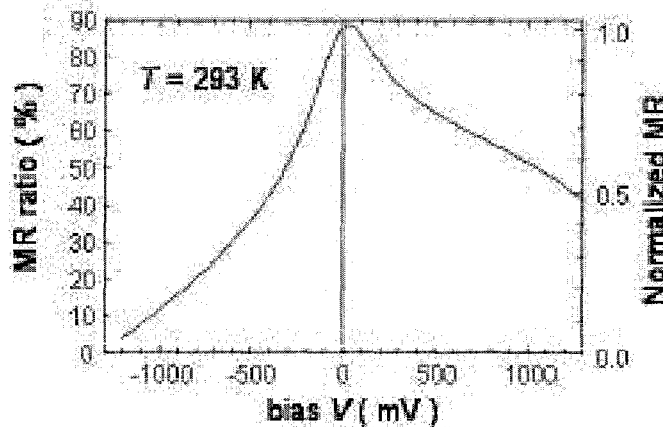


figure I-5

Variation de la TMR en fonction de la tension appliquée. La couche supérieure de Fe est connectée à la borne positive de l'appareil de mesure. Le  $V_{1/2}$  vaut 1.25V et -0.4V [Yuasa\_JJAP43\_2004].

Mitani et ses collaborateurs (Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai, Japon) ont voulu déposer la barrière de MgO par une méthode différente de l'épitaxie par jets moléculaires couramment utilisée jusque-là. Ils ont élaboré des jonctions épitaxiées Fe/MgO/Fe<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> en utilisant la technique d'oxydation réactive à la suite d'un dépôt de Mg [Mitani\_JAP93\_2003].

<sup>8</sup>  $V_{1/2}$  désigne la tension pour laquelle la TMR est diminuée de moitié par rapport à sa valeur maximale obtenue à faible tension. Pour les jonctions réalisées jusqu'à présent, le  $V_{1/2}$  se situe aux alentours de 0.8V.

Le dépôt de la couche complète de MgO se fait par plusieurs dépôts de Mg et oxydations successifs. La vérification par RHEED<sup>9</sup> de la cristallinité du dépôt de MgO montre que l'oxydation réactive peut également être utilisée pour former des barrières épitaxiées de MgO. Mitani et al. obtiennent 23% de TMR à T=4K mais aucun effet magnétorésistif n'est observé pour des températures supérieures à 150K sans doute à cause d'une conduction à travers le grand nombre de défauts dans la couche de MgO. La même équipe élaborera par épitaxie par jets moléculaires des barrières de MgF<sub>2</sub> mais qui ne présentaient qu'une faible TMR de 10% à T=4.2K et qui disparaissait également à température ambiante [Mitani\_JAP91\_2002].

Bien que rien n'ait été publié jusqu'au moment de la rédaction de cette thèse, la forte potentialité du système Fe/MgO/Fe est à l'origine des recherches amorcées par des groupes industriels sur le sujet, notamment l'équipe de Parkin (IBM Almaden Research Center, Etats-Unis).

## **I.2.4 Conclusion**

L'élaboration de JTM semi-épitaxiées a permis de mettre en avant l'impact de la structure électronique sur les propriétés de magnéto-transport et l'importance de la maîtrise de la structure cristalline. L'étape suivante fut la maîtrise de l'épitaxie à travers tout l'empilement. Grâce à de telles structures totalement épitaxiées, la compréhension des mécanismes du transport tunnel dépendant du spin a progressé à grands pas, de nouvelles idées et expériences venant balayer les anciens concepts.

Cependant, la confrontation entre théorie et expérience nécessite une croissance des couches parfaitement maîtrisée, avec des interfaces extrêmement planes, des barrières sans défauts, fines et continues sur plusieurs dizaines de micromètres. Ces difficultés d'élaboration expliquent le peu de résultats publiés sur les structures épitaxiées avant le début et même au cours de cette thèse.

Parmi les multicouches susceptibles de s'épitaxier, le système Fe/MgO/Fe attire l'attention de nombreux groupes de recherche suite aux calculs théoriques prédisant un effet magnétorésistif de plusieurs milliers de pour-cent. De plus, il s'agit d'un système modèle pour la validation de nouveaux concepts de la physique fondamentale.

---

<sup>9</sup> Reflexion High Energy Electron Diffraction ou diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante, technique décrite au paragraphe II.1.2.

## Chapitre II

# Elaboration, caractérisation et structuration des jonctions tunnel magnétiques

Les films monocristallins sont des systèmes modèles pour l'étude de nombreux phénomènes physiques tels que les états de surface, la stabilisation de phases métastables et la relation entre structure cristalline, épaisseur du film et magnétisme. Dans le cas du transport tunnel polarisé en spin, l'obtention de JTM épitaxiées présente un intérêt fondamental. En effet, les modèles théoriques actuels ne peuvent décrire les phénomènes électroniques dans une barrière isolante amorphe (la plus communément élaborée à ce jour) puisqu'ils s'appuient sur la périodicité du potentiel, autrement dit sur des empilements réguliers d'atomes, ce qui implique l'épitaxie de ces derniers. L'élaboration de JTM épitaxiées permet la confrontation des prédictions théoriques avec les mesures expérimentales afin d'améliorer la compréhension des mécanismes de transport tunnel.

Jusqu'à présent, la plupart des JTM étaient réalisées par pulvérisation cathodique. Cette technique est parfaitement maîtrisée mais son principe de fonctionnement<sup>10</sup> entraîne des flux d'évaporation relativement importants, de l'ordre de 1nm/s, rarement compatibles avec la synthèse de films monocristallins.

L'élaboration de JTM épitaxiées est assez contraignante. Premièrement, la stœchiométrie des films doit être parfaitement contrôlée, ce qui nécessite d'une part de travailler sous ultravide et d'autre part de connaître précisément les flux d'évaporation (également indispensable pour la réalisation de films minces). De plus, la croissance épitaxiale doit être maîtrisée dès les premiers stades du dépôt afin d'obtenir une structure cristalline bien définie assurant la conservation de la symétrie à travers la multicouche, ce qui nécessite de pouvoir jouer sur de nombreux paramètres (température et vitesse de dépôt, ...). Enfin, les techniques de caractérisation structurale et chimique *in situ*

---

<sup>10</sup> Dans une enceinte sous vide, on crée un plasma de gaz neutre (argon par exemple). Le matériau à évaporer est polarisé négativement et bombardé par les ions du plasma qui éjectent à leur tour les atomes de la cible sur le substrat situé en face.

nécessitent l'ultravide. Pour toutes ces raisons, l'épitaxie par jets moléculaires s'impose comme la technique de réalisation de JTM épitaxiées par excellence.

Dans la première partie de ce chapitre, nous décrivons la technique d'épitaxie par jets moléculaires ainsi que les divers moyens de caractérisation que sont la diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (RHEED), la microscopie à force atomique et la microscopie électronique à transmission. Ces trois techniques ont été largement utilisées pour étudier la croissance et la structure de la multicouche (deuxième partie de ce chapitre). Des expériences complémentaires ont apporté des informations très précieuses sur la nature chimique de l'interface Fe/MgO, paramètre critique du transport tunnel polarisé en spin.

Ensuite, nous détaillerons notre étude sur l'utilisation de diverses couches tampons non magnétiques. De telles couches sont nécessaires pour obtenir, après recuit, une surface extrêmement plane, étape indispensable à l'élaboration d'un empilement quasi parfait du type Fe(fin)/MgO/Fe (voir les phénomènes de puits quantiques traités aux paragraphes III.5 et V.3.2).

Enfin, la dernière partie concerne la structuration des JTM par photolithographie. Nous décrivons d'abord le procédé technologique avant d'en aborder les limitations et de détailler les améliorations apportées afin d'obtenir des résultats magnétorésistifs sur le système fragile Fe/MgO/Fe.

## **II.1 Dispositif expérimental et moyens de caractérisation**

### **II.1.1 La technique d'Épitaxie par Jets Moléculaires**

Dans cette partie, l'appareillage est décrit de manière succincte. Des descriptions plus complètes d'appareils similaires sont disponibles dans les thèses de Hélène Fischer et d'Alexandra Mougín [Fischer\_thèse\_1995 ; Mougín\_thèse\_1999] ainsi que dans l'ouvrage suivant [Herman\_2004].

#### **II.1.1.1 Principe**

Les méthodes d'évaporation de métaux sont connues depuis fort longtemps déjà. Par contre, ce n'est que depuis la fin des années 1960 que les progrès de la technique permettent de réaliser ces évaporations sous ultravide. C'est ainsi qu'est née l'Épitaxie par Jets Moléculaires (EJM), ou encore la « Molecular Beam Epitaxy » (MBE) en anglais. Cette technique a vite fait ses preuves, car la synthèse sous ultravide permet l'utilisation de systèmes de caractérisation, dits *in situ*,

propres aux techniques du vide. La MBE s'est développée essentiellement dans le cadre de la croissance épitaxiale de composés III-V.

La méthode consiste à faire interagir des flux atomiques ou moléculaires dans une enceinte à très basse pression résiduelle (inférieure à  $10^{-10}$  torr). La relation dite de Knudsen exprime le flux de particules  $\phi$  (par unités de temps et d'aire) en fonction de la pression partielle  $P$ , de la masse de l'atome  $m$  et de la température  $T$  :

$$\phi = \frac{P}{\sqrt{2\pi m k_B T}} \quad (\text{II-1})$$

Pour une densité de sites de l'ordre de  $10^{15}$  sites par  $\text{cm}^2$ , une pression de  $10^{-10}$  torr d'oxygène donne naissance à une monocouche complète adsorbée sur la surface au bout d'une dizaine d'heures. De plus, ce vide limite est tel que les dimensions de la chambre sont inférieures au libre parcours moyen des atomes dans ces conditions (typiquement  $10^6$  m), ce qui permet de parler de régime moléculaire. Ces flux, issus de cellules d'évaporation, sont orientés sur un substrat monocristallin porté à la température convenable pour que les atomes évaporés s'y adsorbent. Le dépôt ainsi obtenu peut être ordonné, épitaxié selon les conditions expérimentales. On effectue souvent sur un même système des hétéroépitaxies successives pour la synthèse d'un superréseau. La MBE est particulièrement adaptée à la préparation de ces matériaux monocristallins en couches très minces, grâce au contrôle possible de la stœchiométrie. Ses principaux avantages sont les suivants :

- possibilité de l'étude *in situ* de l'interface de croissance par toute technique faisant intervenir un transport d'électrons dans le vide (diffraction d'électrons),
- les dépôts s'effectuent sous ultra vide d'où une très faible pollution (quelques  $10^{-9}$  torr en cours de dépôt pour les flux que nous utilisons),
- la faible vitesse de dépôt (quelques Angströms par seconde) et un système de caches pneumatiques permettent la réalisation d'interfaces abruptes,
- excellent contrôle de la vitesse de croissance,
- possibilité de réaliser des profils de concentrations,
- très bonne résolution géométrique de la surface.

### II.1.1.2 Descriptif technique

Tous les échantillons étudiés ont été élaborés dans une enceinte MBE dessinée par Marc Alnot et réalisée par Meca 2000, couplée à une chambre d'introduction qui sert principalement de sas d'introduction des échantillons (figure II-1). Les principaux éléments du bâti MBE sont les suivants : l'enceinte à vide équipée pour obtenir et contrôler une pression résiduelle extrêmement faible, le porte-substrat équipé d'un four chaud ( $20^\circ\text{C} \rightarrow 1000^\circ\text{C}$ ) et d'un four froid ( $-180^\circ\text{C} \rightarrow 200^\circ\text{C}$ ), les cellules d'évaporation, les canons à électrons, les systèmes d'analyse annexes.

Un ensemble de différents types de pompage permet d'obtenir un vide limite de l'ordre de  $2.10^{-11}$  torr : pompes à palettes primaire et turbomoléculaire secondaire, pompage ionique et par sublimation de titane, plus les panneaux cryogéniques qui doublent presque uniformément l'intérieur de l'enceinte et sur lesquels, une fois refroidis à 77K, viennent se condenser les gaz résiduels de l'enceinte.

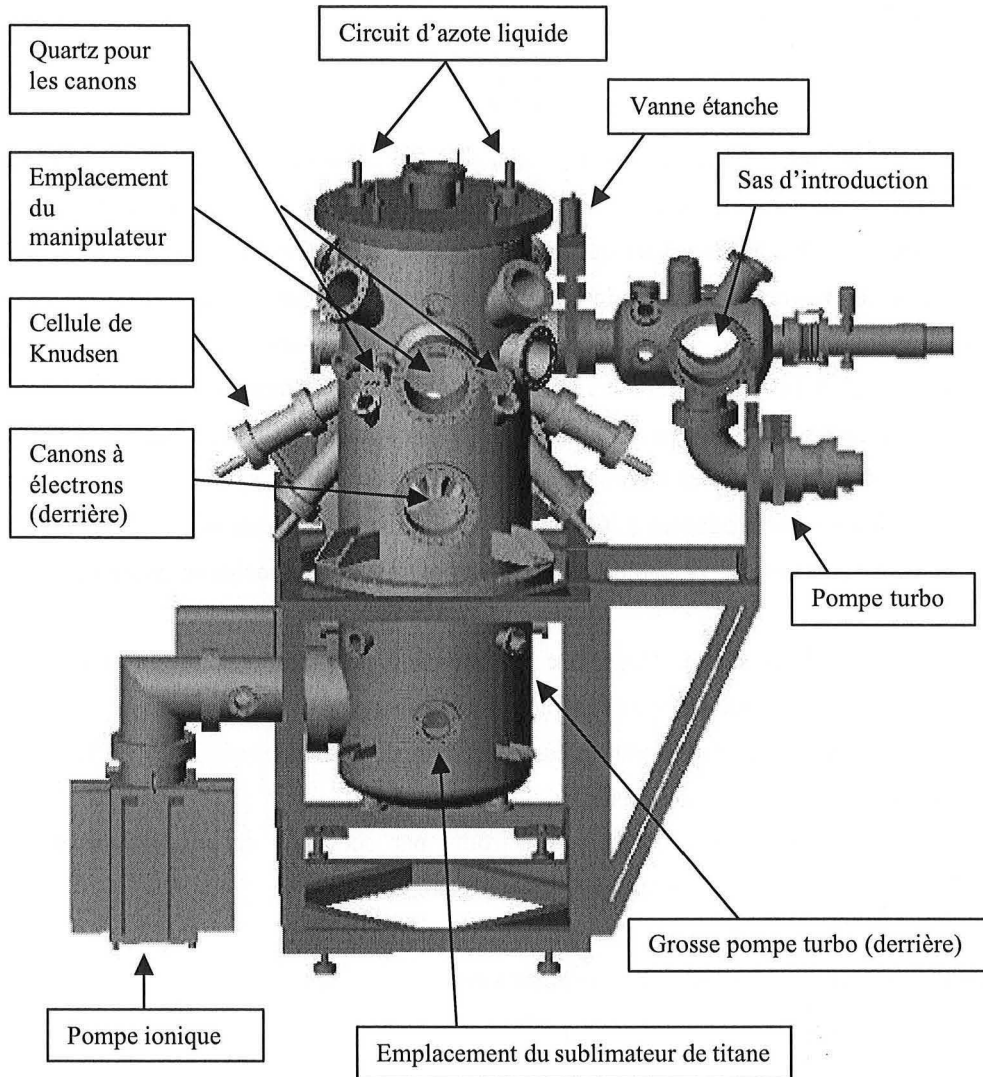


figure II-1

Schéma de l'enceinte d'Epithaxie par Jets Moléculaires. Les brides représentent les endroits où les différents éléments sont fixés (manipulateur, canons à électrons, sublimateur de titane,...).

Notre bâti est équipé de deux types de sources d'évaporation différentes : les canons à électrons ou les cellules de Knudsen. Le choix du type de source se fait en fonction du matériau à évaporer et de ses caractéristiques (température d'évaporation, réactivité avec le creuset). Ainsi, les éléments Fe, Pd, Cu et Ag ont été évaporés par des cellules de Knudsen ; pour le Co, V, Au et MgO, nous avons utilisé les canons à électrons.

L'étalonnage des flux de dépôt des différents matériaux se fait soit de manière *in situ* (microbalances à quartz, oscillations de RHEED) soit de manière *ex situ* (diffraction de rayons X aux petits angles, mesures magnétiques) [Faure-Vincent\_DEA\_2001].

L'étude structurale des couches est réalisée *in situ* au moyen d'un canon à électrons de haute énergie. Cette méthode de caractérisation sera décrite plus loin.

### II.1.1.3 Préparation des substrats

- *nettoyage ex situ*

Au début de ma thèse, le protocole de nettoyage des substrats de MgO consistait en trois bains successifs de 15 minutes chacun : trichloréthylène avec ultrasons, puis acétone bouillant et enfin propanol bouillant avant séchage à l'azote sec. L'étude en microscopie à force atomique a mis en évidence la présence de trous d'une centaine d'Angströms de profondeur induits par les ultrasons qui fragilisent le substrat. Cette méthode de préparation a donc été abandonnée. En effet, ces mêmes substrats sont très propres à la sortie de leur emballage (mis à part une forte pollution en carbone), sans nettoyage *ex situ* supplémentaire.

- *nettoyage in situ*

Les substrats subissent alors un flash thermique (500°C pendant 15 minutes). Le but est d'éliminer tous les gaz, comme CO ou l'eau, adsorbés en surface de l'échantillon. De plus, nous verrons que le recuit permettant d'aplanir la surface de Fe s'effectue à 450°C. Il est donc essentiel que la température du dégazage soit supérieure, de façon à éviter toute désorption d'espèces chimiques provenant du molybloc et du four. Désormais, les échantillons ne sont plus exposés à l'air jusqu'à la fin du processus d'épitaxie.

### II.1.2 Caractérisation in situ par RHEED

La technique de diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (RHEED : Reflexion High Energy Electron Diffraction) a été développée lors de l'élaboration de structures artificielles de semi-conducteurs (puits quantiques,...), afin d'en contrôler en continu le mode de croissance. Elle permet non seulement de connaître la structure d'une surface (monocristal, polycristal, amorphe,...), d'en apprécier la planéité mais également d'en suivre le mode de croissance au cours du dépôt, ainsi que d'étalonner les flux d'évaporation grâce au phénomène d'oscillations d'intensité. Les oscillations de paramètre fournissent des renseignements complémentaires sur la taille des îlots en cours de croissance. La diffraction RHEED est devenue un outil indispensable pour étudier la croissance de films minces *in situ* et en temps réel. En effet son fonctionnement

sous ultravide et le fait que le faisceau d'électrons soit dirigé parallèlement à la surface (donc perpendiculairement à l'axe de croissance) facilitent son implantation sur un bâti d'épitaxie.

Une description claire et détaillée du principe de RHEED se trouve dans la thèse de Pascal Turban [Turban\_thèse\_2001] et dans l'ouvrage suivant [Braun\_1999].

### II.1.2.1 Principe

On envoie un faisceau monocinétique d'électrons de haute énergie (30keV dans notre cas) sur l'échantillon. La longueur d'onde associée aux électrons est de l'ordre de 0.1Å. Le libre parcours moyen étant de plusieurs dizaines de plans atomiques, travailler en incidence rasante permet d'avoir uniquement accès à la structure des premiers plans atomiques<sup>11</sup>. Dans la pratique, on aura une contribution selon la direction de croissance, qui sera d'autant plus prononcée que la rugosité est grande.

Dans le cas d'une surface plane, l'absence de condition de diffraction selon la normale à la surface permet d'assimiler le réseau réciproque à un ensemble de tiges perpendiculaires à la surface et réparties suivant les nœuds du réseau réciproque 2D de la surface. Le diagramme de diffraction visualisé sur l'écran fluorescent correspond à l'intersection du réseau réciproque de la surface (de paramètre de maille  $2\pi/a$  où  $a$  est le paramètre de maille du réseau direct) et de la sphère d'Ewald de rayon  $k$  où  $k$  est le nombre d'onde des électrons du faisceau ( $k=2\pi/\lambda$ ). Dans le cas idéal d'une surface parfaitement plane et d'une sphère d'Ewald d'épaisseur nulle, la figure de diffraction serait constituée de points (figure II-2). C'est effectivement ce qui est observé sur des substrats de silicium (111).

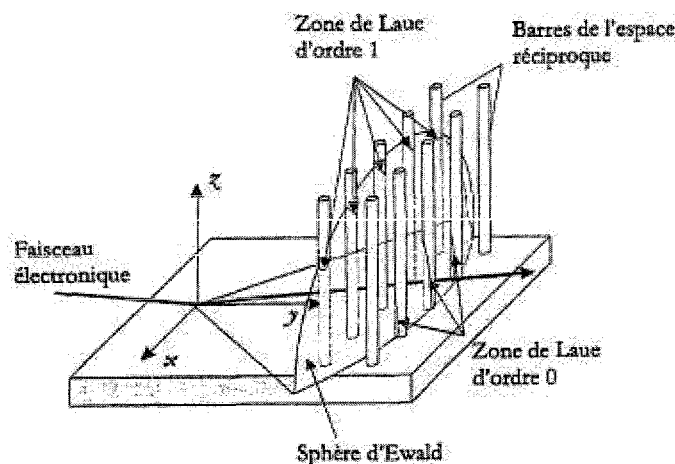


figure II-2  
Intersection entre la sphère d'Ewald et le réseau réciproque 2D [Fruchart\_thèse\_1998].

<sup>11</sup> Pour un angle d'incidence de  $1^\circ$ , la profondeur de pénétration du faisceau d'électrons est de l'ordre du plan atomique



Cependant, dans le cas de métaux, d'une part la surface n'est jamais parfaite (agitation thermique, taille finie des terrasses) et d'autre part la dispersion en angle et en énergie du faisceau d'électrons donnent une certaine épaisseur  $\Delta k$  non nulle à la sphère d'Ewald. Tous ces éléments expliquent que le cliché de diffraction soit constitué en réalité de bâtonnets d'épaisseur finie dont la forme plus ou moins fine fournit de précieux renseignements cristallographiques.

Il est indispensable de connaître la longueur de cohérence spatiale du faisceau afin de bien avoir à l'esprit l'échelle pour laquelle ces phénomènes d'interférence interviennent. Compte tenu des spécificités techniques de notre appareillage, sa longueur de cohérence est de l'ordre de 100Å.

## **II.1.2.2 Informations fournies par RHEED**

### **II.1.2.2.1 Morphologie de la surface et mode de croissance**

En fonction du cliché RHEED obtenu, nous pouvons extraire quelques informations qualitatives relatives au mode de croissance et à la surface du matériau :

- dans le cas d'une surface amorphe, l'absence d'ordre à grande distance se traduit par un fond diffus quelque soit l'azimut,
- si on obtient des anneaux, cela signifie que la surface est polycristalline,
- dans le cas d'un polycristal texturé, on observe le même cliché de raies verticales suivant tous les azimuts,
- si les clichés de diffraction sont constitués de bâtonnets fins et bien allongés, cela signifie que la croissance est bidimensionnelle, dit mode de croissance Frank-van der Merwe. Les raies apparaissent d'autant plus fines et intenses que la qualité cristalline est bonne. Le RHEED permet de déterminer les relations d'épitaxie ainsi que l'éventuelle variation relative des distances interatomiques lors de phénomènes de relaxation [Turban\_thèse\_2001],
- si les clichés de diffraction sont constitués de points ou de taches plus ou moins allongées, cela signifie que la croissance est tridimensionnelle (surface rugueuse), dit mode de croissance Volmer-Weber,
- si on obtient des bâtonnets qui laissent la place à des taches au bout d'une certaine épaisseur critique, alors il s'agit d'une croissance 2D suivie d'une croissance 3D, dit mode de croissance Stranski-Krastanov.

Le RHEED permet également de mettre en évidence la présence de surstructure (surface (100) du Si) ou de contamination à la surface (carbone à la surface d'une couche de Fe : paragraphe II.2.2.6)

### **II.1.2.2.2 Oscillations RHEED**

Ce phénomène est utilisable dans le cas d'une croissance 2D sur une surface plane. Il s'agit d'examiner la variation de l'intensité de la raie 00 d'un diagramme de diffraction. Si la croissance

se fait couche par couche, on observera des oscillations d'intensité (figure II-3). L'utilité de cette technique vient du fait que la période des oscillations correspond exactement au temps nécessaire pour élaborer une couche de un ou deux plans atomiques selon les cas. Ce point est crucial pour maîtriser parfaitement l'épaisseur de l'isolant déposé.

La première explication du principe de base des oscillations RHEED a été donnée par le groupe de recherche qui avait découvert ce phénomène peu de temps auparavant [Harris\_SSL108\_1981]. Considérons une surface parfaitement plane et supposons que sa croissance est bidimensionnelle. Les atomes arrivant sur la surface forment alors des îlots. Du fait de la différence de marche entre les électrons incidents réfléchis sur la surface et ceux réfléchis sur les îlots, les interférences entre ces électrons deviennent de plus en plus destructives au fur et à mesure que les îlots croissent. Le minimum d'intensité réfléchi correspond à une demie couche déposée. Puis lorsque la couche se complète, les interférences redeviennent constructives et l'intensité atteint de nouveau sa valeur maximale correspondant à une couche parfaitement complétée (figure II-3). On obtient ainsi des oscillations d'intensité dont la période correspond au temps nécessaire pour déposer un plan atomique. Un exemple est donné à la figure II-4.

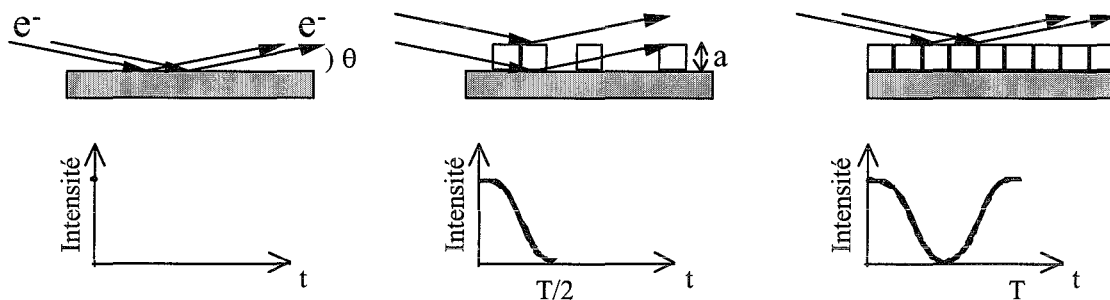


figure II-3  
Interprétation schématique des oscillations d'intensité RHEED.

Bien sûr, la dynamique des oscillations va dépendre de la différence de chemin entre les deux faisceaux d'électrons : les interférences sont évidemment toujours constructives quel que soit l'état de la surface si les conditions expérimentales satisfont à la loi de Bragg. Il vaut donc mieux se placer dans la condition dite d'anti-Bragg pour observer le maximum de dynamique, soit :

$$\text{Bragg} : 2a \sin \Theta = n\lambda \qquad \text{anti-Bragg} : 2a \sin \Theta = (n + \frac{1}{2})\lambda . \quad (\text{II-2})$$

On comprend donc ici que le choix de l'angle d'incidence joue un rôle important pour l'observation des oscillations de RHEED. Dans la pratique, ce n'est pas toujours crucial, car ce phénomène, lorsqu'il existe, ne nécessite pas un réglage très fin de la géométrie du système. En effet, le modèle précédent ne tient pas compte des phénomènes de diffusion non spéculaire (aussi appelée diffusion diffuse). En outre, nous savons que ce mécanisme n'est pas négligeable dans le cas des électrons, d'autant plus que nous travaillons en incidence rasante. Ainsi, une explication plus correcte des mécanismes conduisant aux oscillations RHEED doit prendre en

compte la diffusion des électrons en surface. La diffusion est ainsi minimale lorsque cette densité est minimale. On retrouve bien un processus périodique.

Un point important à souligner est que, si la présence d'oscillations RHEED est la preuve d'une croissance 2D, leur absence ne prouve en aucun cas le contraire [Fischer\_thèse\_1995].

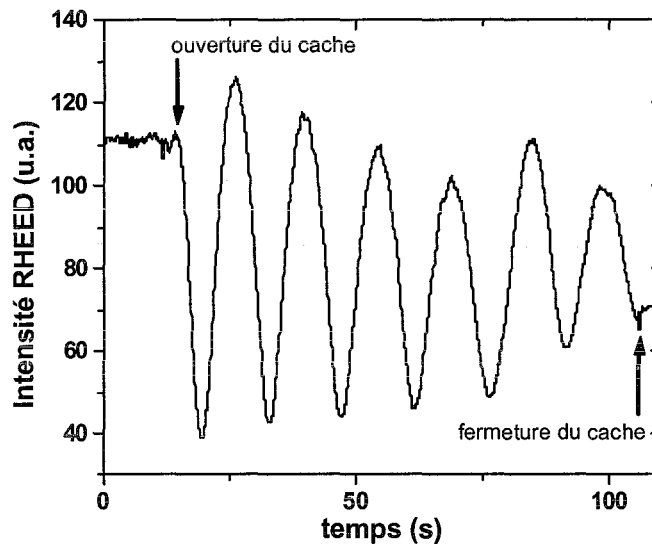


figure II-4  
Oscillations RHEED lors du dépôt de Fe sur Fe(001).

### II.1.3 Caractérisation ex situ par Microscopie à Force Atomique

Les propriétés des jonctions tunnels magnétiques dépendent fortement de la qualité topographique des interfaces. En effet, les barrières isolantes sont nécessairement fines (quelques nanomètres au maximum) pour permettre le passage des électrons par effet tunnel. Mais elles doivent également être continues de manière à proscrire tout chemin de conduction ohmique. De plus, Bardou a montré qu'une faible fluctuation de l'épaisseur entraîne d'importantes fluctuations du courant tunnel [Bardou\_EPL39\_1997]. Enfin, si l'on veut conserver de belles interfaces Fe/MgO planes ou, tout au moins, les plus proches possible d'un système modèle, il faut s'assurer que leur rugosité est minimale avant de déposer la couche suivante. La croissance de chaque film mince a donc été optimisée successivement.

La microscopie à force atomique (AFM) est parfaitement adaptée à notre problématique. En effet, cette technique, inventée en 1986 par Binnig et al. [Binnig\_PRL56\_1986], permet l'analyse topographique tridimensionnelle d'une surface avec une très haute résolution latérale et verticale. L'AFM est fondée sur la mesure des forces d'interaction entre les atomes de surface de l'échantillon et une pointe atomique supportée par un micro-levier flexible, de faible constante de raideur  $k$ . Cette dernière dépend de la forme géométrique et du type de matériau du levier

( $0.1\text{N/m} < k < 10\text{N/m}$ ). La figure II-5 illustre son principe de fonctionnement : un faisceau laser se réfléchit sur la partie supérieure du levier puis illumine une photodiode qui mesure la déviation du faisceau et donc de la pointe. Cette déflexion est proportionnelle à la force d'interaction entre les atomes de la pointe et ceux de la surface. Le balayage de la pointe permet alors d'obtenir une image tridimensionnelle de la surface dont on peut en extraire les paramètres de rugosité. Les déplacements fins en  $x$ ,  $y$  et  $z$  se font grâce à une céramique piézo-électrique. Suivant le type d'échantillon, deux modes de fonctionnement seront utilisés dans cette thèse.

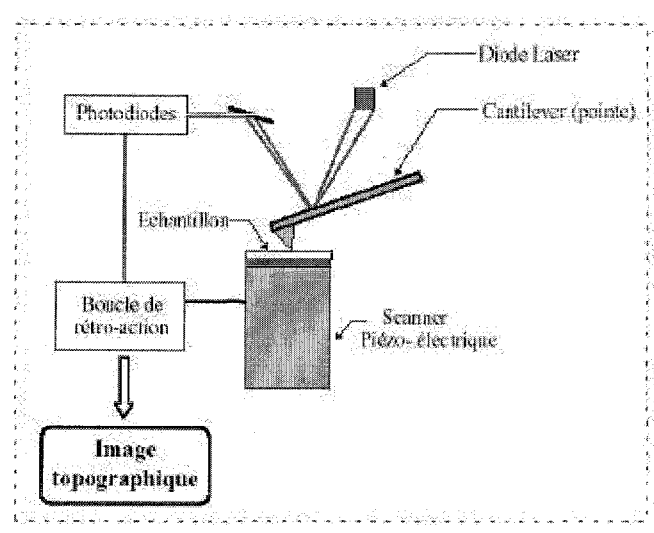


figure II-5  
Principe du microscope à force atomique.

### Le mode *contact*

Ce mode permet d'obtenir la résolution atomique avec des variations verticales en  $z$  de l'ordre de  $0.1\text{Å}$ . Les principales forces en jeu entre la pointe et la surface sont répulsives, à très courte portée (quelques nm au maximum). La déflexion du levier est maintenue constante par une boucle d'asservissement, qui pilote le déplacement de la céramique piézo-électrique sous l'échantillon. Le contraste de l'image est dû uniquement au déplacement en  $z$  de la céramique piézo-électrique.

Le mode *contact* permet certes d'avoir la meilleure résolution mais il n'est pas toujours utilisable, en particulier sur des échantillons anciens présentant une couche d'eau adsorbée à la surface (forces de capillarité parasites) ou sur des surfaces isolantes (forces électrostatiques parasites dues au frottement de la pointe sur la surface). Le mode *non-contact*, ou *tapping*, permet de s'affranchir de ces problèmes.

### *Le mode non-contact*

Le levier est soumis à une oscillation forcée. Les caractéristiques de l'oscillateur sont modifiées en présence de la surface via les interactions de type van der Waals. Les images tridimensionnelles sont obtenues en maintenant par exemple l'amplitude ou la fréquence de l'oscillation constante.

## **II.1.4 Caractérisation ex situ par Microscopie Electronique à Transmission**

La microscopie électronique en transmission (MET) permet l'observation et la caractérisation de la structure interne des matériaux. Cette méthode s'avère très précieuse dans l'étude de multicouches car elle fournit de nombreuses informations sur la structure locale des échantillons (orientation cristallographique, voisinage cristallographique et chimique, continuité de la barrière, rugosité, dislocations, défauts localisés dans la barrière,...).

L'échantillon à analyser doit être aminci de manière à le rendre transparent aux électrons. L'image est traduite par des contrastes d'absorption ou de diffraction. Cependant, il ne s'agit pas à proprement parler d'images d'atomes, mais d'une projection du potentiel créé par ces atomes.

L'étude en MET de notre système a été rendue possible dans le cadre d'une collaboration avec Etienne Snoeck du Centre d'Elaboration de Matériaux et d'Etudes Structurales à Toulouse. L'appareil utilisé est un CM30/ST de résolution 0.19nm.

## **II.2 Croissance et structure de la multicouche**

### **II.2.1 Etude bibliographique du système épitaxié Fe/MgO**

#### **II.2.1.1 Relation d'épitaxie Fe-MgO**

Nous utilisons des substrats monocristallins de MgO (001). Le MgO est un cristal ionique ayant une structure cubique de type NaCl constituée de deux sous-réseaux cubiques à faces centrées de Mg et d'O imbriqués l'un dans l'autre (figure II-6). Le paramètre de maille vaut  $a_{\text{MgO}} = 4.213\text{\AA}$ . Le réseau (001) de surface est représenté sur la figure II-7.

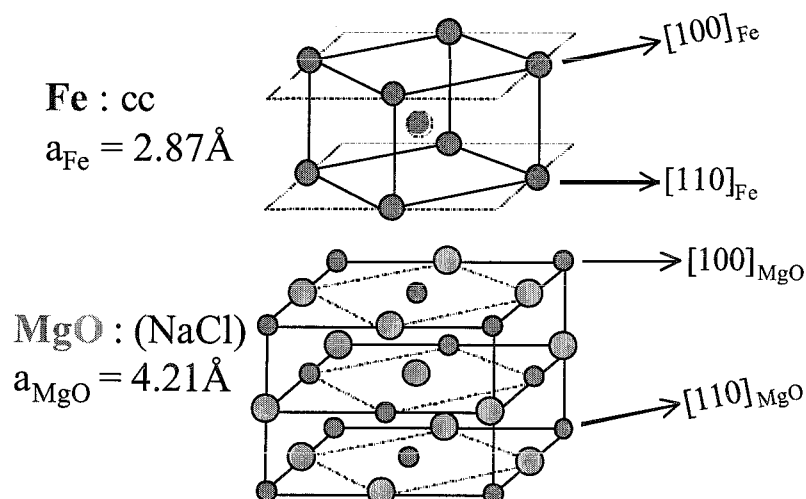


figure II-6  
 Schéma montrant l'empilement respectif des atomes de Fe sur ceux du MgO (Mg en gris et O en clair).

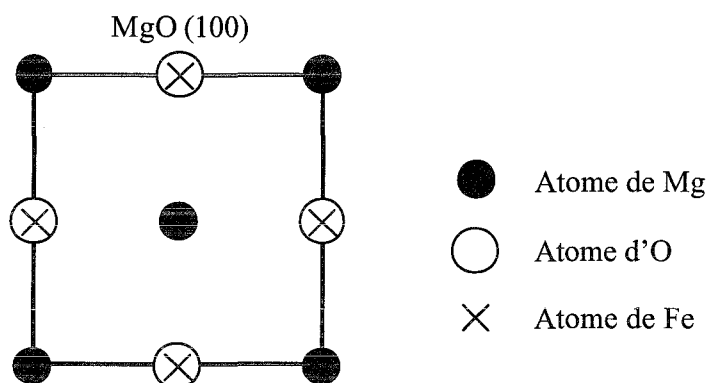


figure II-7  
 Structure cristalline du plan (001) du MgO. Les atomes de la couche de Fe sont symbolisés par des croix et se superposent aux atomes d'O.

Dans nos conditions expérimentales, le Fe adopte une structure cubique centrée (cc) sur le MgO. Compte tenu des paramètres cristallins ( $a_{\text{Fe}} = 2.866 \text{ \AA}$ ), le Fe s'épitaxie sur le MgO(001) suivant la relation Fe (001)  $[110] \parallel \text{MgO} (001) [100]$ . Les mailles de Fe et de MgO sont donc orientées à  $45^\circ$  l'une par rapport à l'autre : l'axe  $[110]$  du Fe est parallèle à l'axe  $[100]$  du MgO, comme cela est illustré à la figure II.6. Dans cette configuration, le désaccord paramétrique est faible et vaut  $(\sqrt{2} a_{\text{Fe}} - a_{\text{MgO}})/a_{\text{MgO}} = -3.8\%$ . Ceci a été confirmé dès 1973 par Kanaji et ses collaborateurs [Kanaji\_V23\_1973 ; Kanaji\_TSF32\_1976 ; Urano\_JPSJ57\_1988]. Ils ont également montré par LEED (Low Energy Electron Diffraction) que la structure des premières couches de Fe est tétragonale centrée et devient cubique centrée à partir de huit plans atomiques. Il est important de signaler pour les propriétés de transport tunnel que les atomes de Fe se superposent aux atomes d'O (voir chapitre IV).

L'obtention d'une surface de Fe aussi plane que possible avant tout dépôt de barrière tunnel dépend fortement de la diffusion de surface. Ce mécanisme est gouverné par la barrière énergétique de

Schwoebel [Ehrlich\_JCP44\_1966 ; Schwoebel\_JAP40\_1969 ; Wang\_PRL70\_1993]. Il s'agit du potentiel de bord de marche vu par un atome sur une terrasse et l'empêchant de descendre sur la terrasse inférieure. La simulation de ce mécanisme a montré qu'il était responsable d'une croissance 3D du matériau [Siegert\_PRL73\_1994]. Peu après, Thürmer et al. l'ont confirmé expérimentalement et ont également montré qu'une température élevée en cours de dépôt ou de recuit (500K dans leur expérience) donne lieu à une agitation thermique suffisante pour dépasser la barrière de Schwoebel ce qui entraîne la formation de larges terrasses atomiques planes sur plusieurs centaines de nanomètres [Thürmer\_PRL75\_1995].

### II.2.1.2 Dépôt de MgO sur Fe

L'épitaxie du MgO sur Fe obéit logiquement à la même relation que celle du Fe sur MgO.

La croissance et la relaxation des contraintes élastiques du MgO déposé sur une couche tampon de Fe ont été étudiées par Vassent et al [Vassent\_JAP80\_1996] et Dynna et al [Dynna\_JAP80\_1996]. Leurs travaux ont notamment permis d'établir les conditions nécessaires à une croissance bidimensionnelle de MgO sur Fe. Pour bénéficier pleinement de cette croissance couche par couche, le dépôt du MgO sur Fe doit se faire à température ambiante. En effet, Vassent et al. ont montré que l'amplitude des oscillations RHEED diminue lorsque la température de l'échantillon augmente : ces dernières disparaissent plus tôt parce que la température favorise la diffusion de surface, ce qui permet d'atteindre plus rapidement la longueur d'équilibre des terrasses. Dans le cas d'un dépôt à température ambiante, ils notent que les oscillations RHEED ont une très forte amplitude en début de croissance, preuve indiscutable d'une croissance 2D au cours de laquelle la croissance d'une couche est presque complétée avant que ne débute la croissance de la suivante. La croissance bidimensionnelle du MgO sur le Fe s'explique par les valeurs des énergies de surface, celle du MgO étant beaucoup plus faible que celle du Fe (1.16 et 2.9J.m<sup>-2</sup> respectivement [Tasker\_SS137\_1984]). A partir de la neuvième couche déposée, les oscillations diminuent en amplitude, signe que les couches suivantes se déposent avant que les précédentes ne soient complètement remplies.

Utilisant la technique du LEED, cette équipe a également mis en évidence la déformation élastique de la surface de fines couches de MgO induite par des dislocations de type  $\frac{1}{2}\langle 011 \rangle \{011\}$  dans le MgO pour une épaisseur critique d'environ cinq plans atomiques. Ceci est en bon accord avec les résultats publiés par Wulfhekel et al. [Wulfhekel\_APL78\_2001] selon lesquels la formation de dislocations permet de relaxer une partie des contraintes dans le MgO à partir de sept plans atomiques déposés. Toutes les épaisseurs de MgO réalisées par Wulfhekel et al. sont en dessous de cette limite de manière à minimiser les effets des défauts du réseau sur l'effet tunnel. Nous verrons plus loin le projet permettant de visualiser directement ces dislocations par AFM conducteur.

## II.2.2 Epitaxie du système Fe/MgO/Fe/Co

### II.2.2.1 Croissance de la couche tampon de Fe

Dans la plupart de nos JTM, nous utilisons une couche tampon de Fe dont l'épaisseur est typiquement de 500Å. Les clichés RHEED en fin de dépôt sont pointés (figure II-8) ce qui nous indique que la surface est fortement rugueuse. Les images AFM montrent en effet de larges terrasses (typiquement 0.3µm) mais séparées par des trous d'une profondeur allant jusqu'à 200Å ; la rugosité quadratique moyenne (rugosité RMS) vaut plus de 30Å (figure II-8). Un tel profil de rugosité est inacceptable en vue du système envisagé.

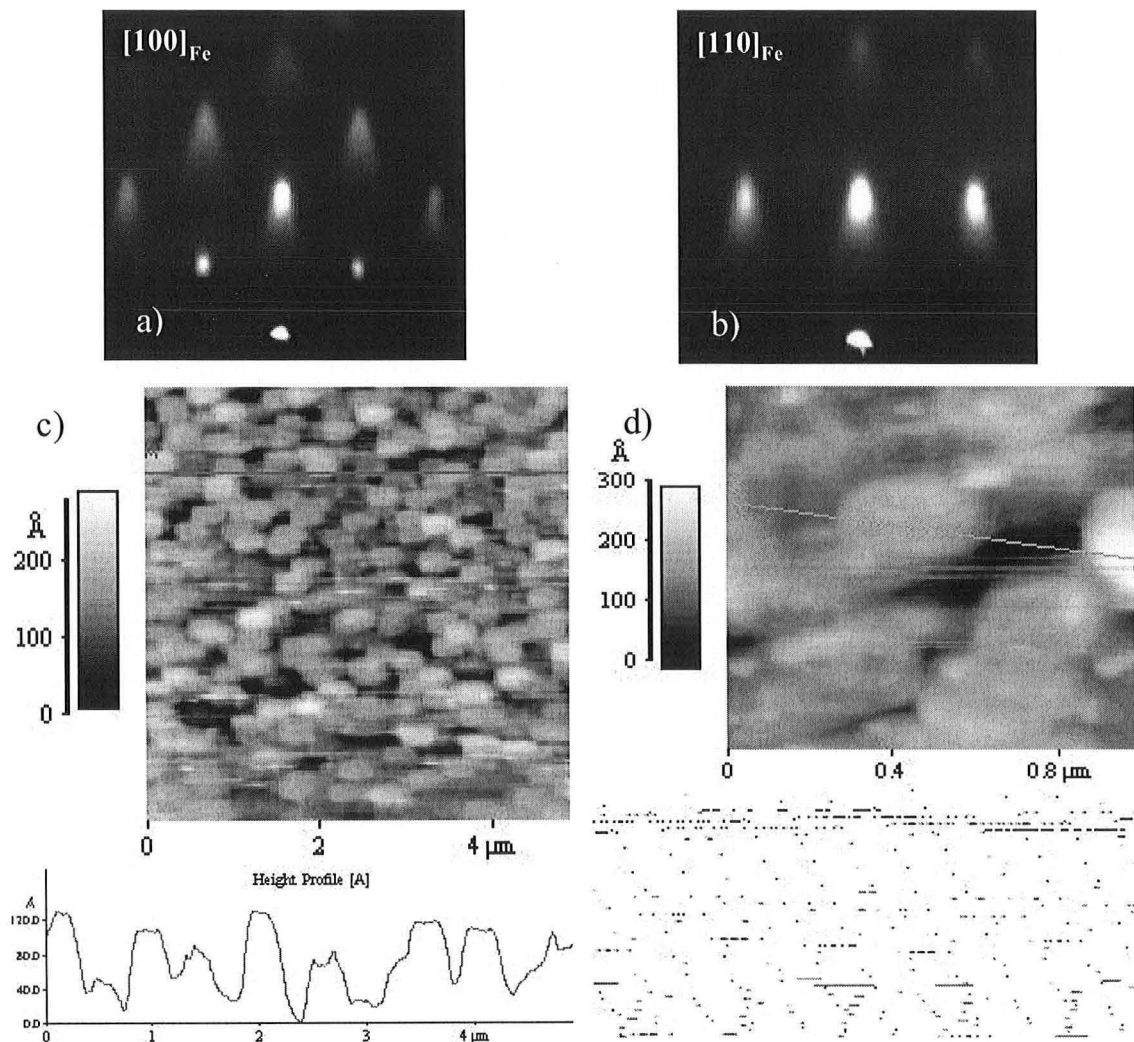


figure II-8

Clichés RHEED de la surface de Fe (400Å) avant recuit selon les directions (a)  $[100]_{Fe}$  et (b)  $[110]_{Fe}$  et (c) image AFM et profil de rugosité sur la même surface  $5 \times 5 \mu m^2$  et (d) agrandissement  $1 \times 1 \mu m^2$ .



Un recuit est nécessaire afin d'aplanir la couche : l'énergie apportée permet aux atomes des couches de surface de franchir la barrière de potentiel de Schwoebel en bord de marche. Ainsi, le processus d'activation thermique assure la mobilité et le réarrangement des atomes de surface : la surface s'aplanit. Après un recuit à 450°C pendant 15 minutes, les bâtonnets RHEED deviennent très fins (figure II-9), preuve d'une surface plane, du moins à l'échelle du RHEED (voir paragraphe II.1.2.1). Les études réalisées en AFM (figure II-9) et en MET (figure II-13) confirment, à des échelles spatiales différentes, la très bonne planéité de cette première électrode de Fe. Les images AFM indiquent que le Fe recuit présente une rugosité pic à pic et RMS de 5Å et 0.6Å, respectivement, avec des terrasses de l'ordre de 100nm de large.

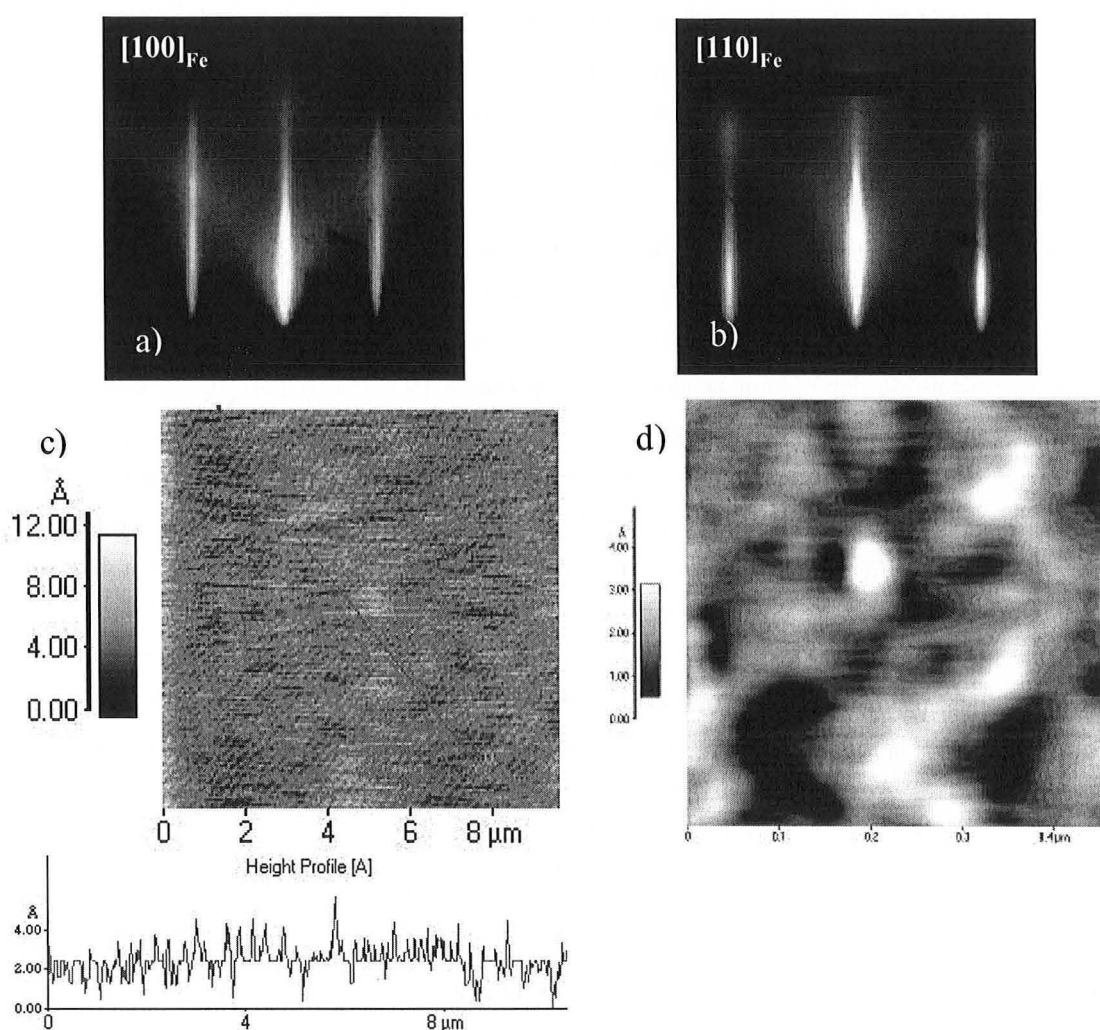


figure II-9  
 Clichés RHEED de la surface de Fe (400 Å) après recuit selon les directions (a)  $[100]_{Fe}$  et (b)  $[110]_{Fe}$   
 (c) image AFM et profil de rugosité sur la même surface  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  et (d) scan AFM sur une surface  $0.5 \times 0.5 \mu\text{m}^2$ . La rugosité RMS vaut 0.6Å.

### II.2.2.2 Croissance de la barrière isolante

Il s'agit de l'étape critique dans l'élaboration de tout dispositif utilisant le transport par effet tunnel. De manière générale, cette barrière tunnel doit être fine et, dans le cadre de l'étude expérimentale du transport dans le système Fe/MgO/Fe, elle doit également être épitaxiée, sans défaut et extrêmement plane pour s'approcher au plus près des modèles théoriques.

Le lecteur trouvera en annexe A les résultats de mesure de la bonne stœchiométrie du MgO déposé. Le contrôle de l'épaisseur de la barrière est également un point crucial puisque l'effet tunnel en dépend exponentiellement. L'épaisseur de l'isolant peut être évaluée par les oscillations d'intensité de RHEED (voir paragraphe II.1.2.2.2). Cependant, comme cela est expliqué en annexe B, l'envoi d'un faisceau d'électrons sur une couche isolante relativement épaisse (à partir de douze plans atomiques environ) induit l'accumulation de charges électriques dont la décharge est un phénomène violent qui détériore localement l'échantillon. Le contrôle du flux de MgO est donc effectué par quartz pour les barrières épaisses.

Le dépôt de MgO sur une surface de Fe plane est bien maîtrisé [Vassent\_JAP80\_1996 ; Wulfhekel\_APL78\_2001]. L'observation d'oscillations RHEED nous assure que la croissance est bidimensionnelle jusqu'à 12 monocouches (mode de croissance de Frank-van der Merwe), la température idéale de dépôt étant la température ambiante [Vassent\_JAP80\_1996]. Cependant, l'expérience montre que nous obtenons de très belles oscillations de RHEED, et donc une très belle croissance, de MgO sur Fe pour une température proche de 100°C (figure II-10). Les clichés RHEED indiquent que la relation d'épitaxie est celle attendue : Fe (100) [100] // MgO (100) [110] et montrent une surface de MgO relativement plane et donc une future interface MgO/Fe acceptable (figure II-11). De plus, bien que la surface d'une épaisse couche de MgO soit de moins bonne qualité qu'une fine couche, elle l'est suffisamment pour donner des clichés RHEED en forme de bâtonnets (figure II-11). La microscopie en champ proche montre en effet que la rugosité RMS est de 1Å pour une couche de 20Å de MgO (figure II-12).

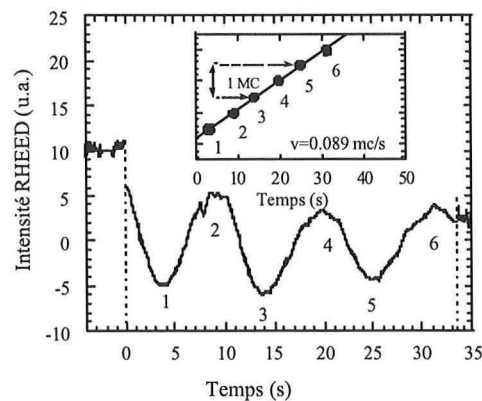


figure II-10

Oscillations RHEED lors du dépôt de trois couches de MgO sur une surface de Fe recuite. En insert, les positions des différents extrema sont alignés suivant une droite dont la pente permet de connaître précisément l'épaisseur déposée.

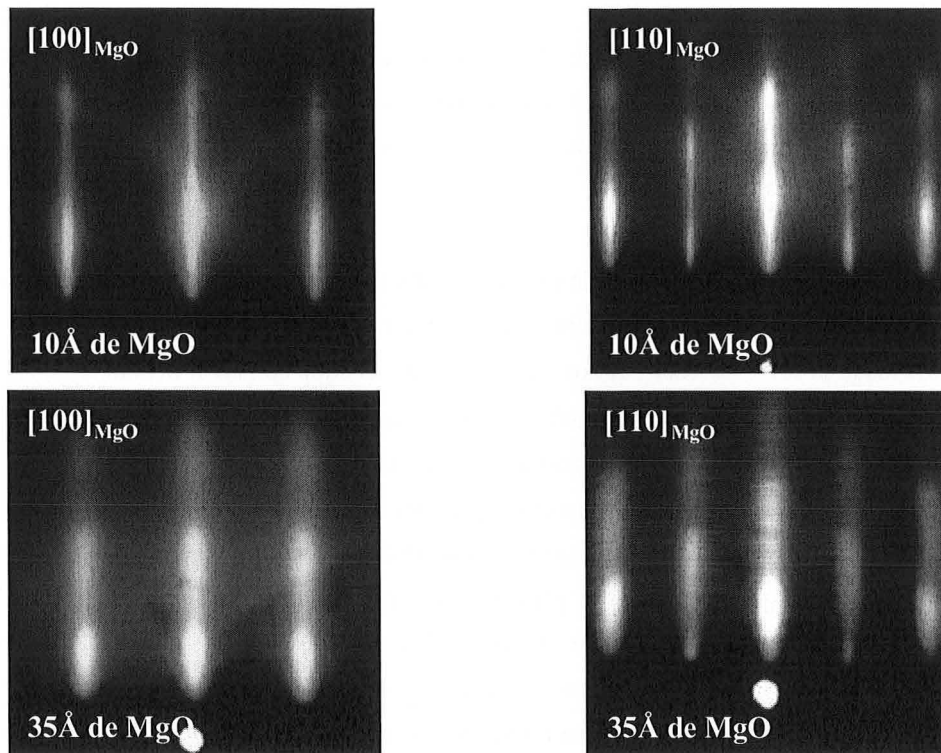


figure II-11

Clichés RHEED montrant l'évolution de la qualité cristalline de la barrière pour deux épaisseurs différentes de MgO (10Å en haut et 35Å en bas) et suivant les deux principales directions cristallines ( $[100]_{\text{MgO}}$  à gauche et  $[110]_{\text{MgO}}$  à droite). La barrière est déposée sur une couche tampon de Fe recuite.

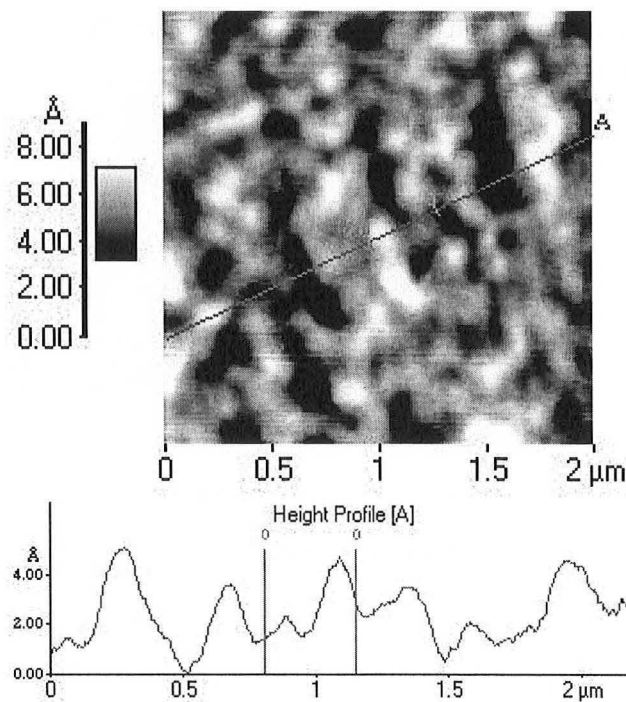


figure II-12

Image AFM d'une surface  $2 \times 2 \mu\text{m}^2$  de 20Å de MgO sur une couche tampon de Fe recuite. La rugosité RMS est de 1Å.

Etude MET de la barrière épitaxiée

Le transport tunnel dépend fortement de la qualité structurale de la barrière et des ses interfaces. Ainsi, une épitaxie parfaite est requise pour rester dans le cadre des modèles théoriques. La microscopie électronique à transmission (MET) est un outil performant pour s'assurer de la cristallinité des couches.

Les images MET montrent la très grande qualité cristallographique de nos jonctions (figure II-13). Des images en champ sombre confirment la continuité de la barrière tunnel pour des épaisseurs descendant jusqu'à  $5\text{\AA}$ <sup>12</sup> et ceci sur au moins  $0.3\mu\text{m}$ , ce qui est la taille latérale des clichés (figure II-14). La mesure du paramètre hors du plan  $d_{\text{MgO}(002)}$  en fonction de l'épaisseur de MgO est représenté à la figure II-15. Pour des épaisseurs inférieures à  $10\text{\AA}$ , soit cinq plans atomiques de MgO, le paramètre hors du plan a une valeur supérieure à celui attendu dans le cas d'une couche totalement relaxée ( $2.1\text{\AA}$ ). Cela signifie qu'en début de croissance, le MgO s'épitaxie de manière pseudomorphe, c'est-à-dire que, dans le plan de croissance, il conserve le paramètre du Fe. Cela conduit à une déformation tétragonale de la maille dont les dimensions à l'équilibre sont gouvernées par les constantes de déformation élastique. Au fur et à mesure que le dépôt de MgO progresse, la relaxation des contraintes se traduit par une diminution de  $d_{\text{MgO}(002)}$  vers la valeur du paramètre cristallin du MgO massif égal à  $2.1\text{\AA}$ . Cela se produit à partir de six plans atomiques : il y a alors apparition de dislocations pour permettre la relaxation plastique des contraintes. La figure II-16 montre l'image de phase<sup>13</sup> réalisée sur un échantillon avec une barrière de  $4.5\text{\AA}$  de MgO : aucune dislocation n'est observée dans la barrière. Ces résultats sont en très bon accord avec les expériences similaires rapportées dans la littérature [Wulfhekel\_APL78\_2001].

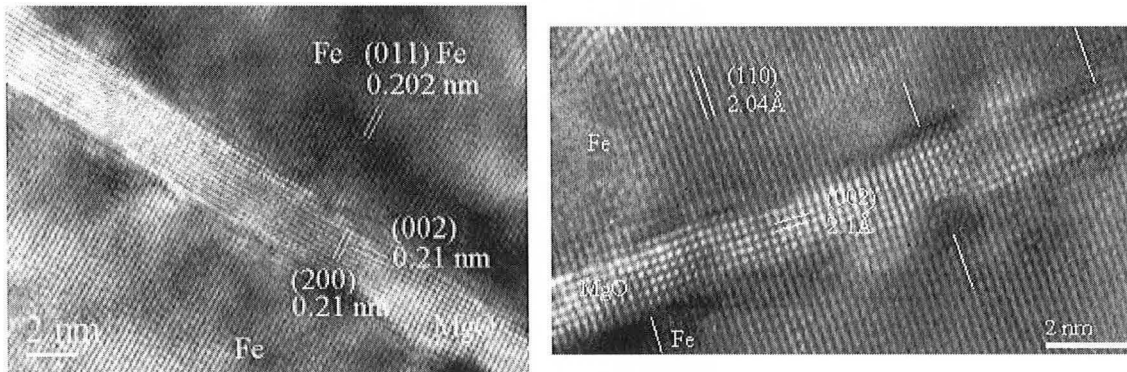


figure II-13

Images MET montrant la qualité cristallographique de nos jonctions

A gauche : barrière de  $20\text{\AA}$  de MgO

A droite : barrière de  $15\text{\AA}$  de MgO (les emplacements des dislocations sont indiqués par les traits blancs simples).

<sup>12</sup> Dans la pratique, une fine couche peut apparaître continue par simple effet d'intégration du signal électronique dans la largeur de l'échantillon. Ceci n'est pas le cas pour le MgO fin comme l'assure le fort couplage antiferromagnétique obtenu sur des échantillons de grande taille (voir chapitre III).

<sup>13</sup> L'image de phase donne le déphasage entre les rangées atomiques d'un matériau par rapport à un autre matériau dont la distance interréticulaire sert de référence. Un changement de  $2\pi$  dans la phase se traduit par un saut de contraste noir-blanc sur l'image de phase et correspond à un plan atomique en plus ou en moins. Il localise une dislocation de misfit.

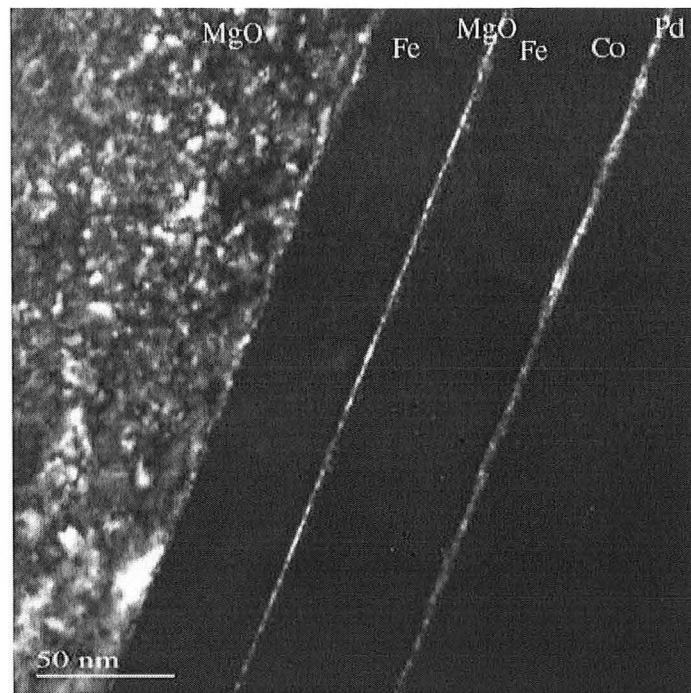


figure II-14

Image MET en champ sombre d'une jonction tunnel MgO//Fe/MgO(20Å)/Fe/Co/Pd montrant la continuité de la couche de la barrière tunnel à une grande échelle (0,3µm sur cette image).

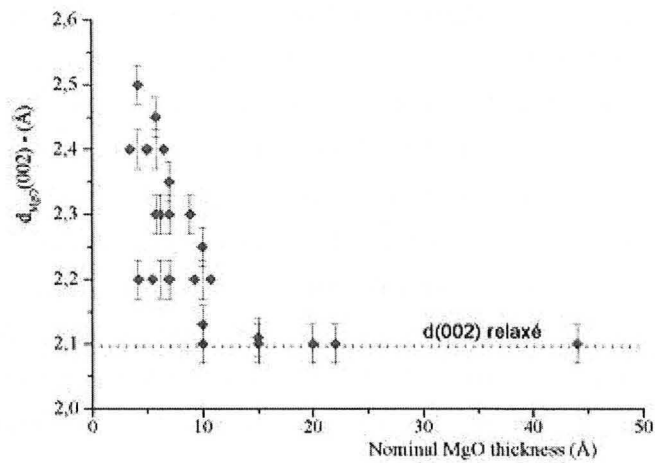


figure II-15

Variation du paramètre hors du plan  $d_{MgO(002)}$  en fonction de l'épaisseur de MgO. Lorsque l'épaisseur de la barrière augmente, la relaxation des contraintes entraîne un retour à la valeur du paramètre massif (2.1Å).

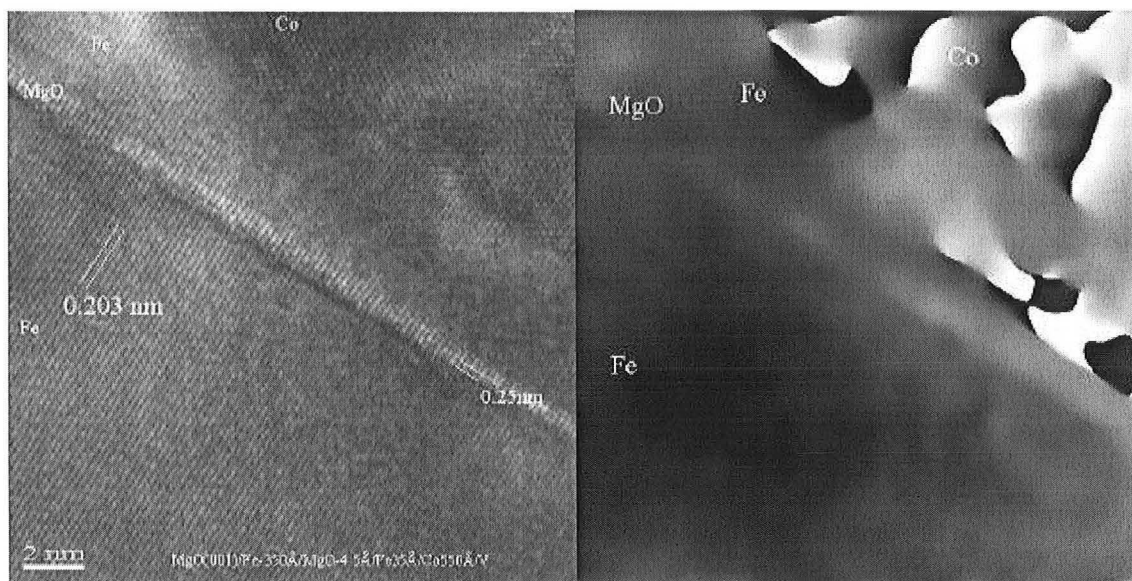


figure II-16

A gauche : Image MEHR d'un échantillon avec une barrière de  $4.5\text{\AA}$  de MgO.

A droite : Image de phase correspondante montrant la continuité des plans  $\text{Fe}(110)$  et  $\text{MgO}(200)$  au travers de la barrière pour fines couches isolantes.

Les images en Microscopie Electronique à Haute Résolution (MEHR) montrent la structure locale des interfaces Fe/MgO et MgO/Fe où l'on observe la continuité des plans  $(110)_{\text{Fe}}$  et  $(200)_{\text{MgO}}$ . Il a été vu précédemment que le désaccord paramétrique entre le Fe et le MgO est de 3.9% ce qui devrait amener, lors de la relaxation plastique, à l'apparition d'un plan supplémentaire tous les 25 plans environ. L'image de phase associée aux vecteurs  $\mathbf{g}_{110\text{Fe}}$  et  $\mathbf{g}_{200\text{MgO}}$  de la figure II-17b montre clairement la présence de ces dislocations de misfit. Celles-ci sont signalées sur l'image MEHR de la figure II-17a par des pointillés. Il s'agit de dislocations de type « coin » qui se propagent le long de la surface de Fe perpendiculairement au plan de l'image et qui correspondent à une rangée atomique (200) de MgO manquante. L'espacement entre ces dislocations est proche de la valeur théorique attendue. Les images de phase permettent de mesurer la distorsion de l'empilement cristallin due à ces dislocations. Lorsque les dislocations apparaissent, la distorsion du cristal se propage de part et d'autre de l'interface. Ceci affecte le transport tunnel local en perturbant la symétrie cristalline de l'empilement et donc en brisant la conservation de la symétrie des états de Bloch.

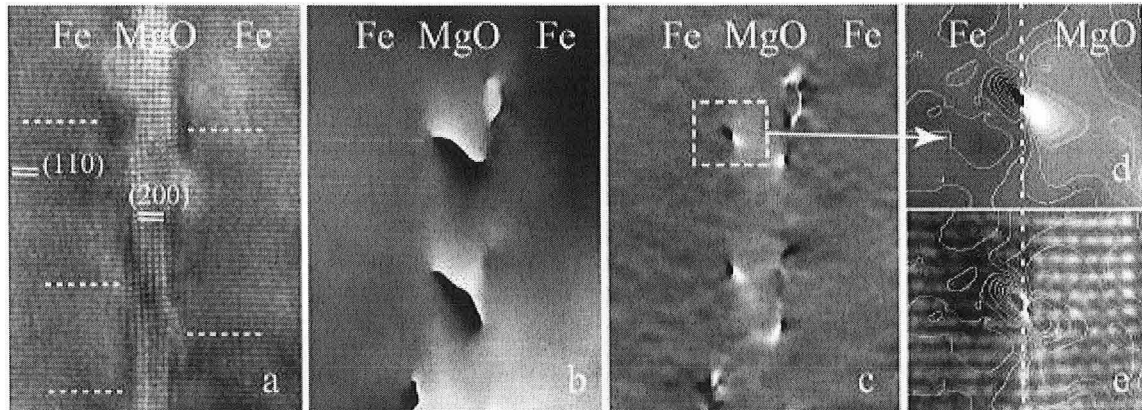


figure II-17

- a) Image MEHR d'une jonction Fe/MgO(15Å)/Fe  
 b) Image de phase associée aux vecteurs  $g_{(110)Fe}$  et  $g_{(200)MgO}$  mettant en évidence les dislocations  
 c) Images des déformations des plans  $(110)_{Fe}$  et  $(200)_{MgO}$  :  $\delta_{d110}/\delta_y$  (échelle : -15%, +15%)  
 d) Agrandissement de l'image précédente auquel on a ajouté des courbes de niveaux espacés de 2%. Une grande concentration de ces courbes de niveaux correspond une zone de forte déformation. Ainsi, le maximum de déformation est localisé dans la couche de Fe  
 e) Courbes de niveaux précédentes superposées à l'image MEHR de départ.

La figure II-17c représente les déformations des plans  $(110)_{Fe}$  et  $(200)_{MgO}$  et montre clairement les zones de déformation localisées autour des dislocations. Les figure II-17d et e sont des agrandissements des images précédentes sur lesquelles on a superposé les courbes de niveau de déformation. Ces courbes montrent clairement que les lobes de déformation sont asymétriques et que le maximum de déformation est localisé dans la couche de Fe puisqu'il s'agit de celle qui présente le module d'Young le plus faible ( $E_{Fe}=211\text{GPa}$  et  $E_{MgO}=290\text{GPa}$ ). L'étude de la déformation des couches est incomplète : les courbes de niveau représentées aux figure II-17d et e correspondent seulement à la déformation  $\epsilon_{yy} = du_{yy}/dy$  (la direction « y » est parallèle à l'interface). La résolution ponctuelle du MET utilisé est de  $1.9\text{\AA}$  ce qui ne permet pas d'observer les plans  $(002)$  de Fe espacés de  $1.4\text{\AA}$  parallèles à l'interface et donc ne permet pas d'analyser la déformation des plans suivant la direction x, c'est-à-dire suivant la direction de croissance.

Ainsi, lorsque l'épaisseur de MgO déposée dépasse les six plans atomiques, la barrière tunnel passe d'un état contraint associé à une croissance pseudomorphe à un état relaxé avec apparition de dislocations de part et d'autre de la couche isolante. Ceci induit une déformation locale de l'empilement cristallin. Les propriétés de transport du système Fe/MgO/Fe sont principalement basées sur la conservation de la symétrie pendant le transport tunnel : quel est l'impact réel de cette brisure de symétrie cristalline sur la symétrie des états de Bloch du courant tunnel? Une étude plus approfondie en STM (Scanning Tunneling Microscopy) ou AFM Conducteur sur la surface de MgO pourrait mettre en évidence le changement des propriétés locales de transport.

### II.2.2.3 Croissance de la deuxième électrode

La couche supérieure de Fe est ensuite déposée sur la barrière isolante en respectant la relation d'épitaxie. Les épaisseurs standard sont comprises entre 50 et 100Å. Au fur et à mesure du dépôt, les clichés RHEED se détériorent (figure II-18).

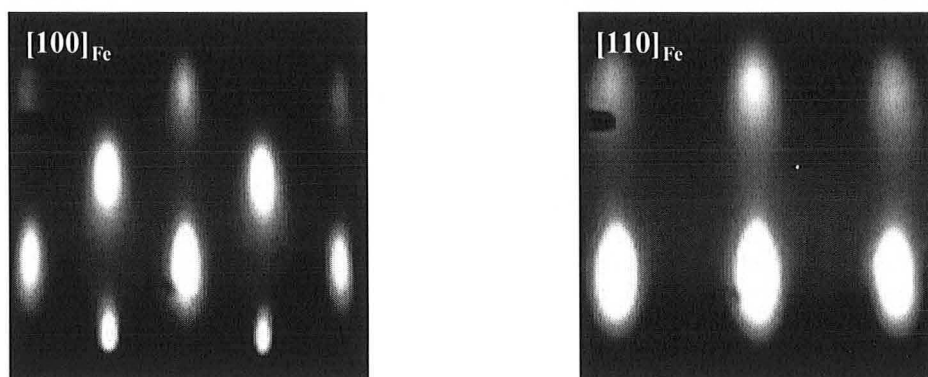


figure II-18  
Clichés RHEED de la surface non recuite de 50 Å de Fe et déposés sur 25 Å de MgO suivant les directions  $[100]_{Fe}$  et  $[110]_{Fe}$ .

Ces images indiquent une croissance tridimensionnelle du Fe et donc une surface de moins bonne qualité que l'interface inférieure Fe/MgO : en effet, à la surface d'une deuxième couche de Fe de 100Å d'épaisseur déposée sur 20Å de MgO, la rugosité pic à pic atteint 20Å et la rugosité RMS vaut 2.5Å (figure II-19). Heureusement, à ce stade de la croissance, seuls l'interface MgO/Fe et les premiers plans atomiques sont primordiaux.

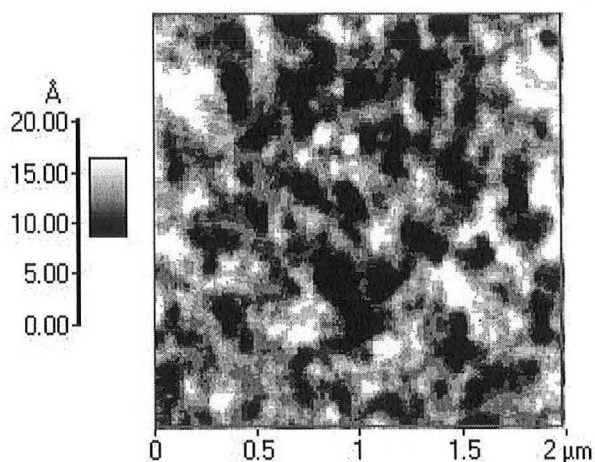


figure II-19  
Image AFM d'une deuxième couche de Fe (100Å) ; la rugosité RMS vaut 2.5Å.



### II.2.2.4 Durcissement magnétique de la deuxième électrode

L'architecture « couche douce-couche dure » est utilisée pour contrôler de manière indépendante les aimantations des deux couches magnétiques d'une JTM. L'accès aux configurations magnétiques extrêmes (parallèle et antiparallèle) peut être obtenu par différents moyens. La technique la plus utilisée consiste à déposer un matériau antiferromagnétique dont le champ d'échange avec le métal ferromagnétique va bloquer le renversement de l'aimantation de l'une des couches [Cowache\_IEEE34\_1998]. On peut également utiliser ce qui est communément appelé un matériau antiferromagnétique artificiel (AAF) au sein duquel un couplage de type RKKY (Rudderman-Kittel-Kasuya-Yosida) assure une configuration antiparallèle des aimantations et augmente le champ coercitif de l'une d'entre elles [vandenBerg\_JMMM165\_1997]. Une troisième solution possible serait de modifier les champs coercitifs en jouant sur la nature des matériaux (impossible dans notre système Fe/MgO/Fe puisque les deux électrodes magnétiques sont identiques) ou sur les épaisseurs des couches (mais le champ coercitif varie faiblement dans cette gamme d'épaisseur). Enfin, une méthode simple consiste à exploiter l'anisotropie magnétocristalline via l'épitaxie d'un matériau magnétique ayant un champ coercitif élevé : c'est le cas du Co. L'étude menée en RHEED, en diffraction de rayons X et en MET [Popova\_APL81\_2002] a permis de déterminer la relation d'épitaxie entre les deux métaux :  $\text{Co}(11-20)[0001]//\text{Fe}(001)[110]$  et  $\text{Co}(11-20)[0001]//\text{Fe}(001)[1-10]$ , conformément à l'étude bibliographique [Wormeester\_PRL77\_1996].

#### Structure du Co

Dans son état massif, le cobalt présente une structure hexagonale compacte (hcp). Mais lors des premiers stades d'une croissance sur une couche de Fe (100) cc, il adopte une structure tétragonale centrée (bct) métastable [Zhang\_SS298\_1993]. L'épaisseur critique jusqu'à laquelle cet empilement est conservé varie de 15Å pour une surface de Fe parfaite à 35Å en présence d'une monocouche d'oxygène adsorbé [Kim\_PRB54\_1996]. Au delà de cette épaisseur critique, afin de minimiser le désaccord de maille, le cobalt peut adopter soit une structure hcp suivant la relation  $\text{Co}(11-20)[0001]//\text{Fe}(001)[110]$  [Wormeester\_PRL77\_1996] soit une structure cfc suivant la relation  $\text{Co}(110)[-111]//\text{Fe}(001)[011]$  (ou  $\text{Co}(1-12)[011]//\text{Fe}(001)[011]$ ) [Bruce\_PMA40\_1979]. L'étude des clichés de diffraction RHEED montrent la présence d'une surface présentant une symétrie d'ordre 4 rendant la détermination de la structure du Co plus compliquée.

Nous avons alors eu recours dans un premier temps à la diffraction des rayons X aux grands angles. En effet, les fichiers JCDPS<sup>14</sup> nous indiquent dans quelle position devraient diffracter des plans correspondants uniquement à un empilement hcp du cobalt et sans qu'aucun plan équivalent

<sup>14</sup> Les fichiers JCPDS/ICDD (Joint Committee on Powder Diffraction Standards/International Center for Diffraction Data) sont des bases de données regroupant toutes les informations cristallographiques des matériaux.

n'existe dans le cas d'une structure fcc. La figure II-20 met en évidence la présence du plan (201) du Co hcp pour  $q=4.985\text{\AA}^{-1}$  alors qu'aucun pic ne devrait être présent s'il s'agissait d'une structure Co fcc. Nous pouvons donc conclure que le Co s'épitaxie suivant un empilement hexagonal compact.

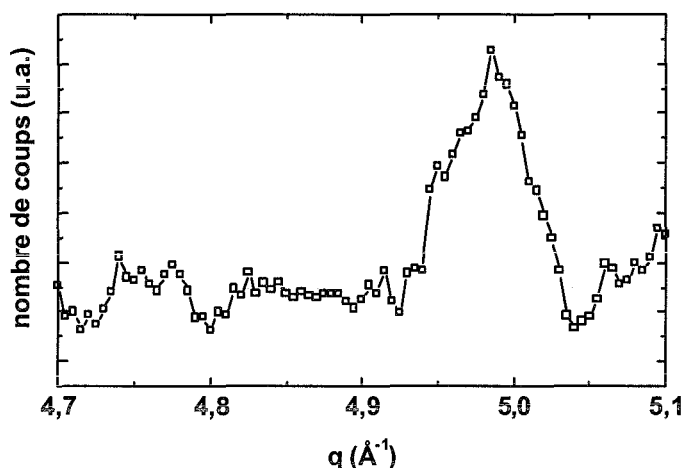


figure II-20

Spectre de diffraction  $\theta/2\theta$  de rayons X aux grands angles. Le plan (201) du Co hcp mis en évidence à  $q=4.985\text{\AA}^{-1}$  n'a pas d'équivalent dans une structure fcc.

Les images MEHR (figure II-21) montrent que la structure du Co projetée suivant la direction d'observation présente une symétrie d'ordre 6. Un tel ordre peut correspondre à une observation soit selon la direction [111] du Co fcc soit selon la direction [0001] du Co hcp. Le premier cas n'est pas possible car les réflexions (110) sont interdites et les plans (220) seraient situés à  $1.25\text{\AA}$ , ce que l'on n'observe pas sur l'image de diffraction électronique (figure II-22). Les clichés de diffraction en vue plane font clairement apparaître des réflexions situées à  $90^\circ$  l'une de l'autre correspondant à une distance réticulaire de  $4\text{\AA}$ . En sélectionnant successivement chaque réflexion pour faire une image en champ sombre, on obtient des images avec des contrastes complémentaires qui indiquent clairement que le Co a deux variants :  $[0001]\text{Co}/[100]\text{MgO}$  et  $[0001]\text{Co}/[010]\text{MgO}$  ; ceci entraîne la formation de deux domaines de Co orientés à  $90^\circ$  l'un par rapport à l'autre (figure II-23). On a donc les relations d'épitaxie suivantes :  $\text{Co}(11-20)[0001]/\text{Fe}(001)[110]$  et  $\text{Co}(11-20)[0001]/\text{Fe}(001)[1-10]$ , en accord avec les résultats obtenus par Wormeester et al. pour du Co hcp déposé sur une couche de  $\text{W}(001)$  cc [Wormeester\_PRL77\_1996].

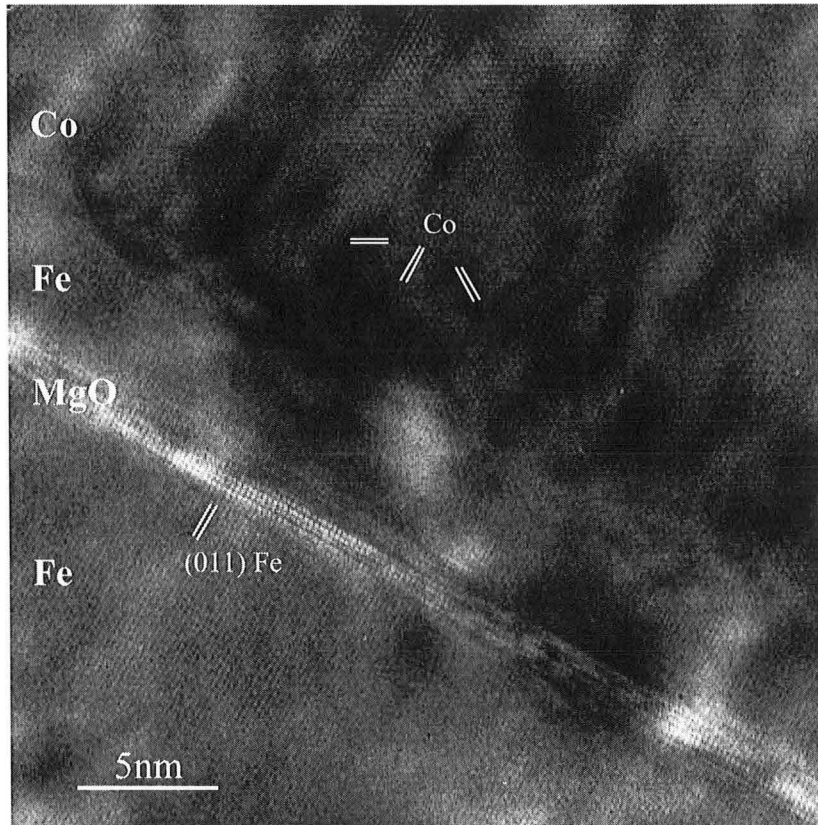


figure II-21  
Image MEHR montrant la symétrie d'ordre 6 de la structure du Co projetée suivant la direction d'observation  $[100]_{\text{MgO}}$ . Un tel ordre peut correspondre à une observation soit selon la direction  $[111]$  du Co cfc soit selon la direction  $[0001]$  du Co hcp.

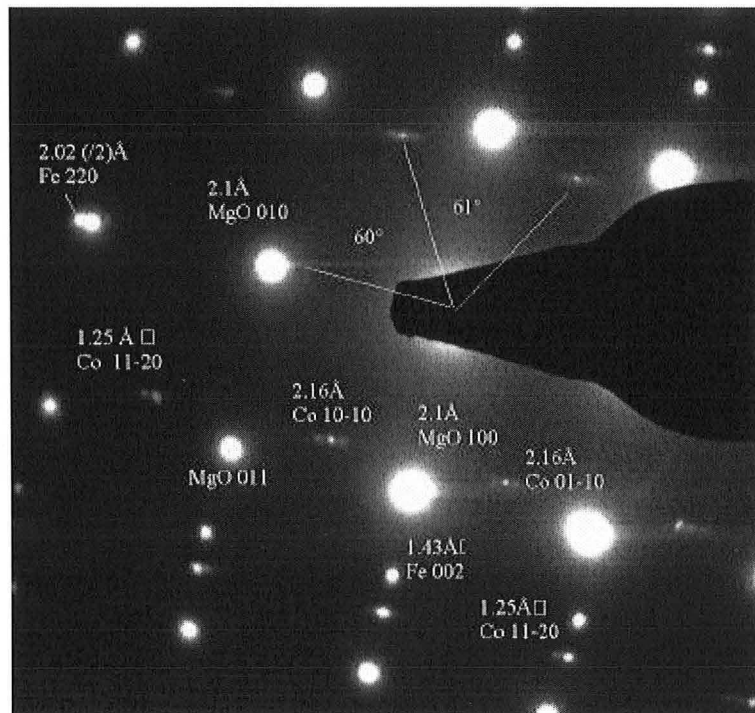


figure II-22  
Image de diffraction électronique d'un échantillon Fe/MgO/Fe/Co.

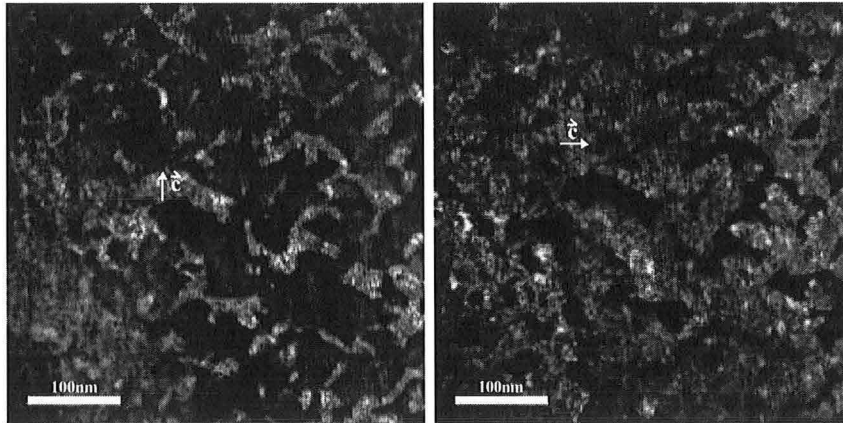


figure II-23  
Images complémentaires en champ sombre montrant les deux variants de Co. Vue plane.

La conclusion de cette étude en MET confirme notre observation en RHEED : les clichés RHEED (figure II-24) réalisés sur la surface de Co nous indiquaient que ce dernier semblait posséder une symétrie d'ordre 4 puisque nous obtenions les mêmes images en regardant suivant les directions orientées à 90°, 180° et 270° par rapport à une position de référence. L'apparente symétrie d'ordre 4 s'explique par la présence de ces deux variants de Co, orientés à 90° l'un par rapport à l'autre. La figure II-25 schématise l'empilement des atomes constituant les jonctions tunnel Fe/MgO/Fe/Co.

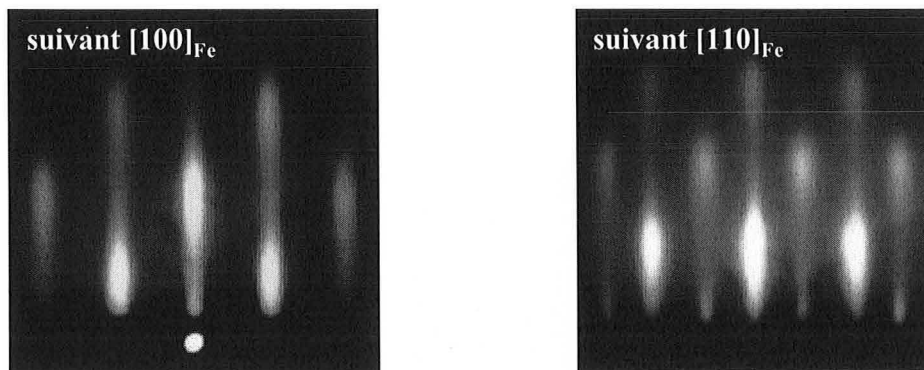


figure II-24  
Clichés RHEED du Co selon les deux directions cristallographiques principales du Fe.

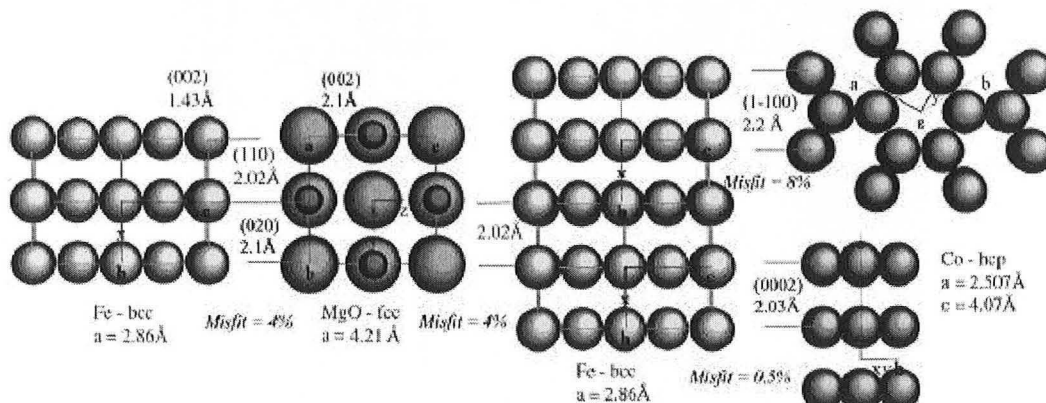


figure II-25  
Epitaxies des différentes couches constituant les jonctions Fe/MgO/Fe/Co. Notez les deux variants du Co hcp.

### II.2.2.5 Couche protectrice

Les échantillons destinés à la lithographie sont protégés par une double couche Pd (100Å) / Au(100Å). En effet, l'expérience montre qu'une simple couche d'Au déposée directement sur le Co ne supporte pas le traitement subi en photolithographie (notamment l'application d'ultrasons) et s'arrache au développement de la résine (paragraphe II.4).

Pour les autres échantillons (non destinés à la photolithographie), nous utilisons indifféremment plusieurs couches non magnétiques de protection (V, Pd ou Au).

### II.2.2.6 Nature chimique de l'interface Fe/MgO

La nature chimique de l'interface Fe-MgO conditionne les propriétés électroniques de la jonction. En effet, les éventuelles liaisons chimiques créées se traduisent par des transferts de charge et modifient considérablement les propriétés d'extraction/injection des électrons et les mécanismes de transport dans la jonction [Freyss\_PRB66\_2002 ; Zhang\_PRB68\_2003]. L'étude de l'interface métal/isolant est donc un point important et l'aspect théorique sera traité au chapitre IV.

#### II.2.2.6.1 Ségrégation du carbone à l'interface Fe/MgO

Nous avons observé deux types de reconstruction de la surface du Fe, la reconstruction C(2x2) (généralement attribuée à la présence de carbone (C) sur le substrat d'origine [Gewinner\_PRL43\_1979]) et une autre reconstruction présentant des raies approximativement en (1/3, 2/3) suivant l'azimut  $[110]_{Fe}$  dont l'origine est la présence d'une grande quantité de C à la surface du Fe recuit (voir paragraphe II.2.2.6.3) (figure II-26).

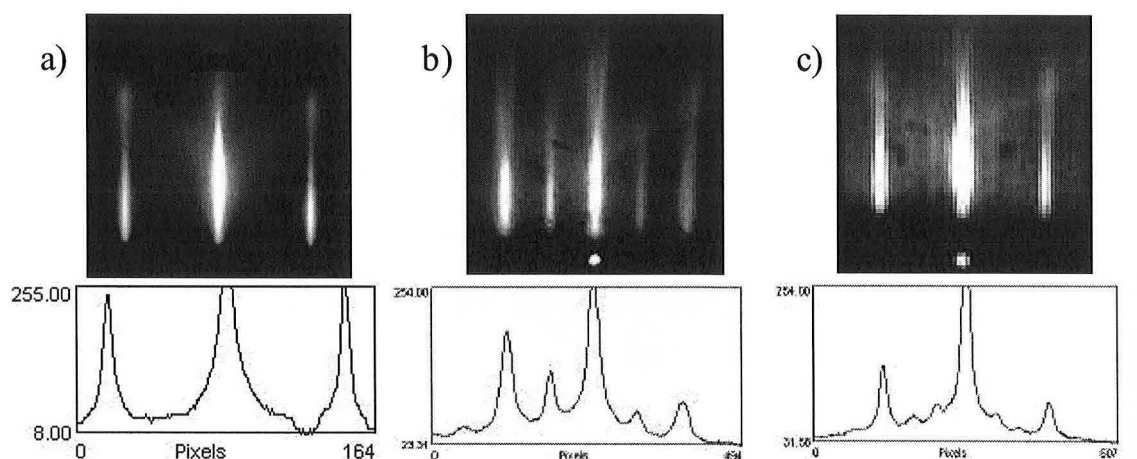


figure II-26  
Clichés RHEED de la surface de Fe après recuit selon la direction  $[110]_{Fe}$  montrant : (a) une absence de reconstruction, (b) une reconstruction C2x2 et (c) une reconstruction atypique. Les profils d'intensité réalisés perpendiculairement aux bâtonnets montrent clairement les raies supplémentaires.

### II.2.2.6.2 Présence d'oxygène

Meyerheim et al. ont montré la création d'une interface de FeO lors de la croissance d'une couche de MgO sur un whisker de Fe préalablement nettoyé par bombardement ionique [Meyerheim\_PRL87\_2001]. Dans leur expérience, le MgO est également évaporé grâce à un canon à électrons. Durant ce dépôt, la pression de l'enceinte augmente d'un ordre de grandeur. Nous observons le même phénomène et ceci est également confirmé par Vassent et al. [Vassent\_JCG219\_2000]. Nos analyses au spectromètre de masse sont en parfait accord avec les conclusions tirées par Vassent et ses collaborateurs : les espèces les plus présentes dans l'enceinte sont le Mg et l'O atomiques (respectivement de masse moléculaire 24 et 16), l'O<sub>2</sub> (masse moléculaire 32) est nettement moins présent et aucune trace de MgO (masse moléculaire 40) n'est détectée. Vassent et al. concluent à un excès d'O par rapport à Mg dans le flux incident sur la surface de l'échantillon. Meyerheim et al. pensent que ceci peut favoriser l'oxydation de la surface de Fe au tout début de la croissance de MgO. Leur étude s'appuie sur des expériences de diffraction de rayons X réalisées au LURE. La meilleure simulation de leurs clichés de diffraction donne 0.6 monocouche d'atomes d'O placés dans les sites interstitiels de la surface de Fe, comme cela est schématisé à la figure II-27.

Au sein de notre laboratoire, Sicot et ses collaborateurs ont étudié une surface recuite de Fe(001) protégée par deux monocouches de MgO au moyen de la spectroscopie de photoélectrons excités par rayons X (XPS) [Sicot\_PRB68\_2003]. Une liaison Fe-O forte, comme dans le cas d'une couche de FeO ou Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, devrait entraîner des modifications visibles sur le spectre de photoémission des niveaux de cœur 2*p* du Fe [Graat\_ASS100\_1996]. La comparaison des spectres obtenus avec ceux d'une couche épaisse de Fe (sans MgO) ne montre aucun décalage en énergie des pics 2*p*<sup>1/2</sup> ou 2*p*<sup>3/2</sup> du Fe ni aucune apparition de pic satellite. Si ces résultats ne permettent pas de conclure quant à la présence d'une couche de FeO, ils montrent que si elle existe, alors seule une faible hybridation Fe-O a lieu, à la différence du FeO massif.

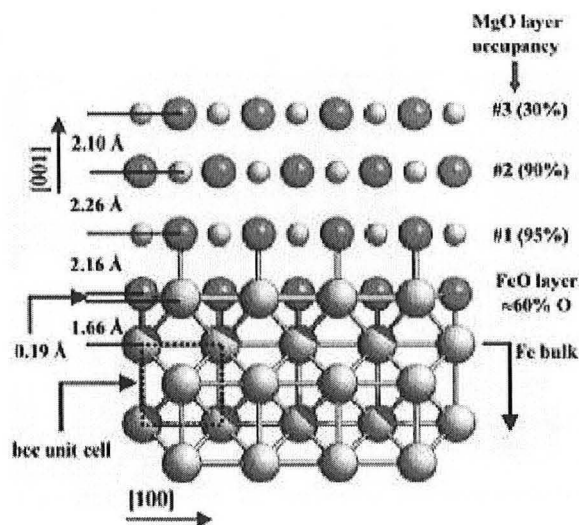


figure II-27

Vue en coupe transverse de la structure Fe/FeO/MgO correspondant à la meilleure simulation de [Meyerheim\_PRL87\_2001]. La barre d'erreur pour les distances interréticulaires du MgO est d'environ 0.15Å.

### II.2.2.6.3 Une interface chimiquement parfaite Fe/MgO est-elle possible ?

La différence observée entre toutes ces expériences pourrait s'expliquer par le fait que les échantillons ne sont pas préparés et élaborés de la même façon.

Dans le cas d'un dépôt du type MgO(substrat)//Fe, une série d'expériences a été réalisée grâce au bâti d'épitaxie par jets moléculaires de Stéphane Andrieu dans lequel nous avons élaboré le même empilement dans les conditions expérimentales les plus proches possibles des nôtres (la température donnée par un thermocouple est loin d'être exactement celle perçue par l'échantillon et varie d'un four à l'autre suivant le mode de fixation sur le molybde). Ces expériences ont clairement montré que la reconstruction « atypique » est due à une contamination du substrat en carbone beaucoup plus importante que celle à l'origine de la reconstruction C(2x2). De plus, aucune trace d'O n'a été détectée à la surface de la couche de Fe juste après son recuit (courbe a, figure II-28). Ensuite, le creuset de MgO est chauffé pendant 15 minutes par bombardement électronique (mais le cache situé devant le creuset est toujours fermé), nous observons la disparition progressive des raies de reconstruction. Cela atteste d'une modification structurale de la surface malgré le cache. On peut supposer que la pression qui règne localement au niveau du creuset est nettement supérieure à celle donnée par l'affichage et que par conséquent les atomes de Mg et O subissent des collisions si bien que certains parviennent à atteindre la surface de Fe<sup>15</sup>. Les analyses Auger et XPS révèlent la présence d'une faible quantité de MgO à la surface (courbe b, figure II-28).

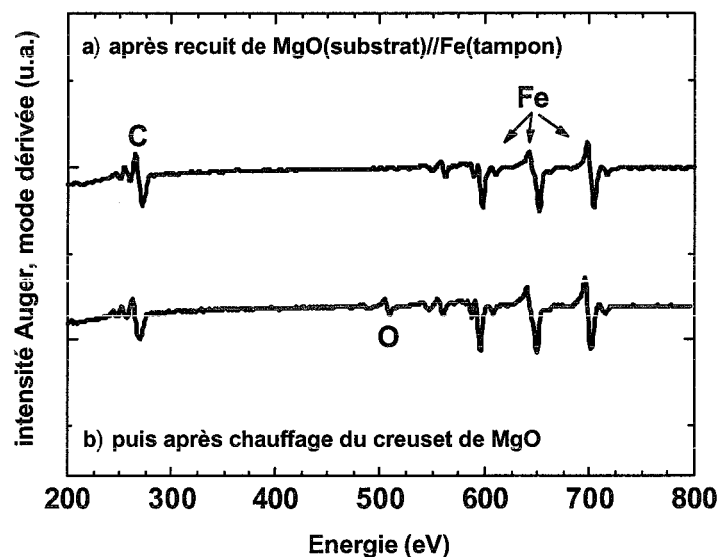


figure II-28

spectre Auger réalisé sur un échantillon MgO//Fe :

a) juste après le recuit de la couche tampon – on détecte beaucoup de C mais aucune trace de O

b) puis après 15 minutes de chauffage du creuset de MgO – on détecte de l'O et le pic de C a légèrement diminué.

<sup>15</sup> Ceci fût confirmé en ajoutant un cache supplémentaire devant l'échantillon : aucun changement n'a été détecté.

Afin d'éviter la ségrégation du carbone pendant le recuit de la couche tampon de Fe, nous avons élaboré un échantillon pour lequel une couche de 100Å de MgO a été déposée préalablement au dépôt de Fe. L'analyse chimique de la surface de Fe recuite ne montre aucune trace de C mais une légère présence d'O (figure II-29). A l'inverse de l'expérience précédente, les sites interstitiels de surface sont libres puisqu'ils ne sont plus occupés par les atomes de C. Les analyses chimiques réalisées après le chauffage du creuset de MgO montrent la présence de MgO en surface avec une proportion nettement favorable à l'O. Cette expérience semble très proche de celle réalisée par Meyerheim et al. qui ont nettoyé la surface de Fe par bombardement ionique jusqu'à ce qu'aucune trace de C ne soit détectable [Meyerheim\_PRL87\_2001], avant de chauffer le creuset de MgO.

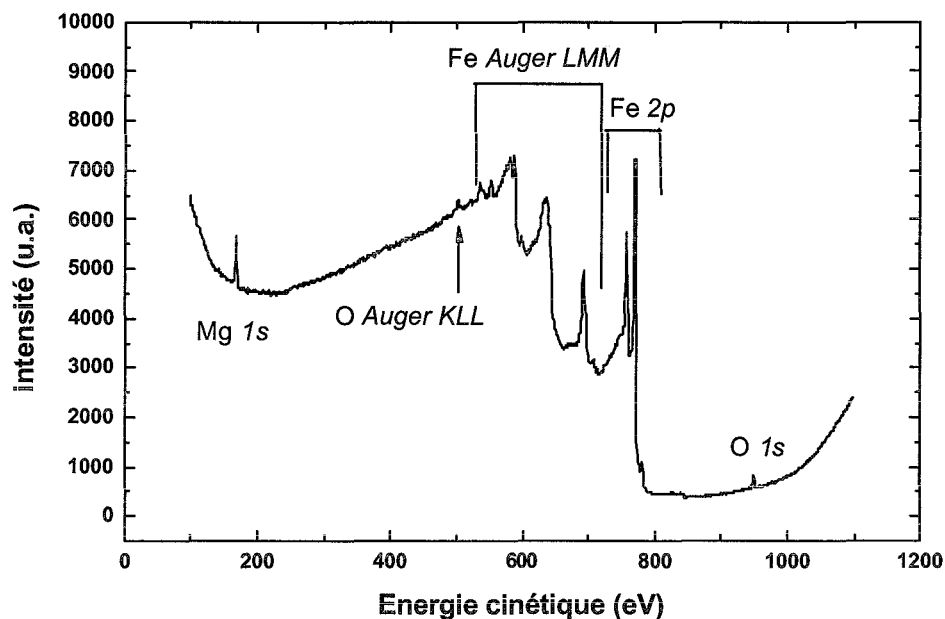


figure II-29

Spectre XPS réalisé sur un échantillon MgO//MgO(100Å)/Fe(tampon) après recuit et chauffage du creuset de MgO. La présence de MgO est clairement mise en évidence. Les comparaisons des hauteurs des pics de Mg et O par rapport à un substrat qui sert de référence montrent que le MgO déposé à la surface du Fe est nettement plus riche en O. Aucune trace de carbone n'est détectée car il a été piégé par la couche de 100Å de MgO déposée sur le substrat.

Dans l'expérience précédente, la durée pendant laquelle le creuset de MgO est bombardé (cache fermé) est exagérée par rapport au temps habituel de chauffage avant dépôt de la barrière isolante. Cependant, pendant l'élaboration des JTM, même si le temps de chauffage du MgO est court, nous ne pouvons pas exclure la présence d'atomes d'oxygène se plaçant dans les sites interstitiels de la surface de Fe. Vassent et al et Meyerheim et al ont expliqué que l'oxygène excédant pouvait provenir du flux de Mg+O lui-même. D'un autre côté, dans le cas d'une surface contaminée au carbone, moins d'oxygène est détecté. Ainsi, soit la surface de Fe recuite présente une forte contamination en C et peu d'oxygène vient s'adsorber, soit on bloque le carbone au niveau du substrat et il y a formation d'une interface FeO. Dans les deux cas, nous traiterons des conséquences électroniques aux chapitres IV et V.



### II.2.2.7 Double jonction tunnel / Structure à double barrière

Nous avons également réalisé des structures à double barrière dont l'empilement est le suivant : MgO//Fe1(500Å)/MgOa(20Å)/Fe2(50Å)/MgOb(20Å)/Fe3(120Å)/V(40Å). Dans ce cas, la qualité de l'interface Fe2/MgOb est conditionnée par la croissance de la deuxième électrode de Fe. Lorsque la première barrière tunnel (MgOa) est relativement épaisse (à partir de 20Å), les clichés RHEED de la surface de la couche Fe2 montrent qu'un recuit permet de l'aplanir efficacement. La multicouche présente alors une croissance épitaxiale et des interfaces planes comme le montrent les clichés RHEED des surfaces successives et l'image MET représentés aux figure II-30, figure II-31 et figure II-32. En revanche, dans le cas d'une couche MgOa très fine, aucun recuit n'est possible pour assurer une interface Fe2/MgOb d'une bonne qualité cristallographique. En effet, il sera mis en évidence par des mesures magnétiques au chapitre III lors de l'étude du couplage par effet tunnel en fonction de la température, que ce dernier est détruit pour des températures de recuit supérieures à 200°C et donc que la jonction Fe1/MgOa/Fe2 voit ses propriétés structurales changer.

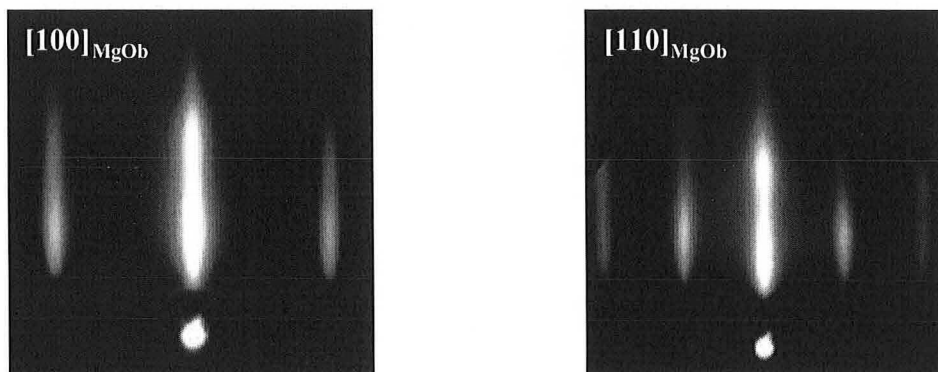


figure II-30  
Clichés RHEED de la surface de la deuxième barrière de MgO.

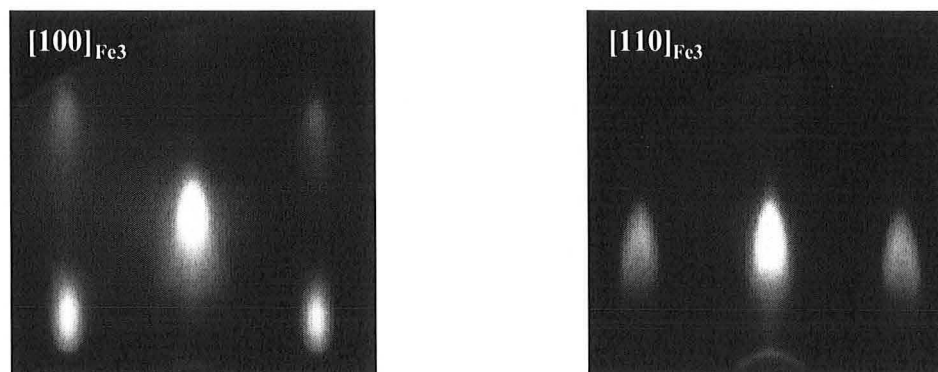


figure II-31  
Clichés RHEED de la surface de la troisième couche de Fe.

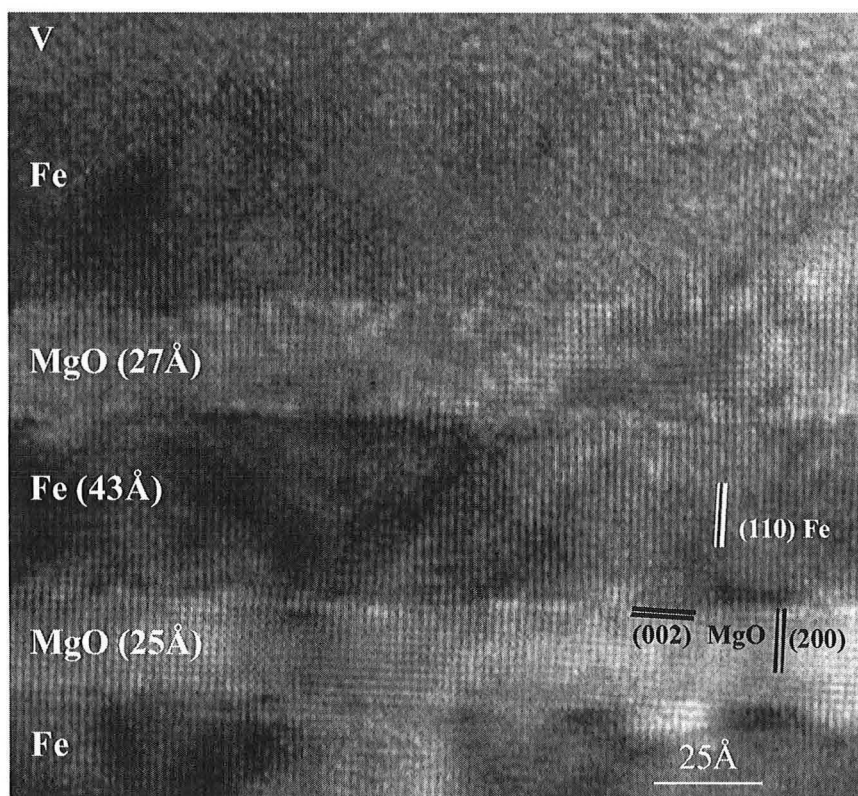


figure II-32

Image MET d'une structure à double barrière MgO//Fe/MgO/Fe/MgO/Fe/V. L'épitaxie et la planéité des couches sont conservées tout au long de l'empilement.

### II.3 Utilisation de diverses couches tampons

L'obtention d'une interface métal/isolant quasi parfaite nécessite l'utilisation d'une couche tampon de Fe dont le recuit assure la planéité. Cette couche est nécessairement épaisse puisque le dépôt d'une fine couche de Fe directement sur le substrat de MgO ne permet pas l'obtention d'une surface plane. Cependant, nous verrons plus loin dans ce mémoire que l'amplification du champ d'échange par effet tunnel (chapitre III) ou la réalisation de puits quantiques magnétiques (chapitre V) nécessitent la croissance d'une très fine couche douce inférieure de Fe extrêmement plane. La solution consistant à placer la couche douce au dessus de la barrière nécessite l'élaboration d'une couche dure inférieure Co/Fe. Dans cette optique, plusieurs tentatives variant les températures de recuit, les épaisseurs incluant également l'élaboration de multicouches  $[\text{Co}(\text{fin})/\text{Fe}(\text{fin})]_n$  fois ne donnèrent pas des résultats satisfaisants au regard de la qualité de l'interface inférieure. Finalement, nous nous sommes tournés vers l'utilisation d'une couche tampon non magnétique sur laquelle est déposée l'épaisseur de Fe souhaitée (une dizaine de monocouches en général).

En plus de s'épitaxier avec le Fe(001), le matériau non magnétique doit en permettre la croissance couche par couche, ce que nous pouvons vérifier grâce aux oscillations d'intensité RHEED. Compte tenu des divers matériaux présents dans les creusets de notre bâti, l'étude bibliographique nous a permis de retenir trois métaux : vanadium, argent et palladium.

### II.3.1 Couche tampon de vanadium

Le vanadium a l'avantage d'être supraconducteur à très basse température (5.4K) ce qui présente un intérêt pour l'étude des mécanismes de transport (modification des puits quantiques en fonction de la température par exemple). D'après la bibliographie [Turban\_thèse\_2001 ; Dulot\_SS473\_2001], la croissance épitaxiale du V (maille cc de paramètre  $a_V=3.03 \text{ \AA}$ ) sur MgO(100) se fait suivant la relation  $[100]_V // [110]_{MgO}$  et nécessite un recuit à  $900^\circ\text{C}$  afin d'obtenir une surface plane. Ainsi, les clichés RHEED sont constitués de raies fines (figure II-33), preuve que la surface est localement plane.

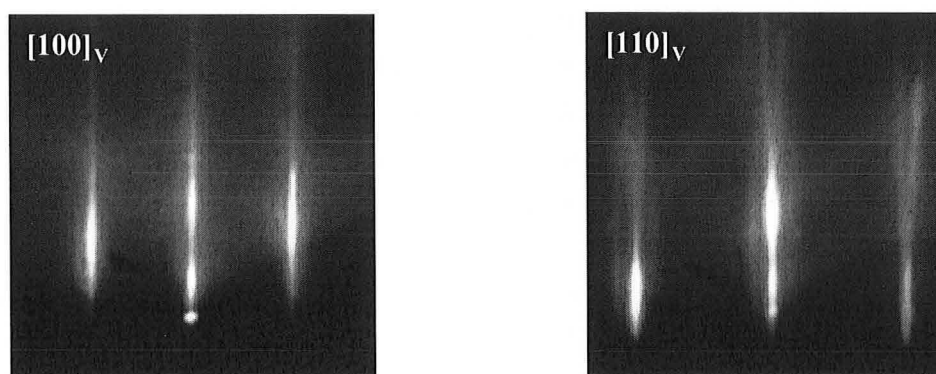


figure II-33  
Clichés RHEED sur une surface de V.

Malheureusement, l'étude en AFM révèle des problèmes à plus grande échelle et insoupçonnables en diffraction d'électrons. En effet, la figure II-34a montre des imperfections en forme de couronne de plusieurs dizaines d'Angströms de profondeur. Ceci est incompatible avec la croissance d'une fine couche de Fe (environ  $20\text{\AA}$ ) puis une très fine couche de MgO (typiquement  $6\text{\AA}$ ). Le risque est d'avoir un contact direct entre les deux couches ferromagnétiques et donc un couplage ferromagnétique et non antiferromagnétique (voir chapitre III). De plus, la figure II-34b montre des stries entre  $40$  et  $200\text{\AA}$  de profondeur sur la surface de V. Ces stries, visibles à l'œil nu, suivent les directions cristallographiques  $(100)_{MgO}$  et  $(010)_{MgO}$  et sont espacées de quelques micromètres. Ces derniers défauts ont été attribués au mode de fixation du substrat sur le molyblock : la fixation par pattes métalliques empêche la dilatation thermique du substrat et entraîne des contraintes internes importantes. Malgré le collage additionnel du substrat par indium, évitant d'une part d'utiliser des fixations trop rigides et assurant d'autre part une température plus homogène sous le substrat, les stries étaient toujours présentes. L'utilisation d'une couche tampon en V ne fut donc pas retenue.

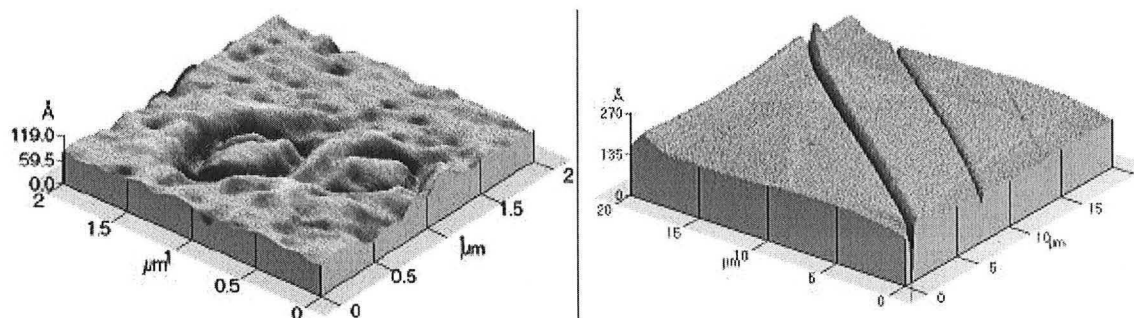


figure II-34

Images AFM de la surface de 1000 Å de vanadium après recuit à 900°C :

A gauche : présence de défauts profonds

A droite : stries profondes suivant les directions cristallographiques principales du MgO ([100] dans ce cas).

### II.3.2 Couche tampon d'argent

L'épitaxie du système Fe/Ag sur le MgO (100) a été étudiée notamment par Rickart et al. [Rickart\_SS495\_2001] et Bürgler et al. [Bürgler\_PRB56\_1997]. La croissance du Fe cc sur Ag fcc ( $a_{Ag} = 4.09 \text{ \AA}$ ) est bien connue : Fe (001)[100]//Ag(001)[110] [Grünberg\_JMMM107\_1992]. Le désaccord de maille n'est alors que de 0.8% [Hicken\_PRB55\_1997]. De plus, Fe et Ag sont connus pour leur non miscibilité d'où une faible diffusion interfaciale [Schurer\_PRB51\_1995]. L'Ag apparaît donc comme un candidat potentiel.

Dans le cas du dépôt direct de la couche tampon d'Ag sur un substrat de MgO, Rickart et al. ont montré qu'une faible pollution en carbone du substrat est nécessaire pour avoir une bonne croissance épitaxiale. Mais la grande mobilité des atomes d'Ag entraîne une croissance tridimensionnelle.

L'utilisation d'une couche d'accrochage de 10Å de Fe améliore fortement la croissance d'une couche d'Ag [Etienne\_JCG111\_1991]. La croissance de l'Ag est alors bidimensionnelle jusqu'à 50 plans atomiques (soit approximativement 100Å), situation idéale pour le dépôt d'une fine couche de Fe. Malheureusement, une telle épaisseur entraînerait une grande résistance d'électrode ce qui serait pénalisant dans les mesures électriques sur des barrières de faible épaisseur. Nous avons alors décidé d'optimiser par recuit la croissance d'une couche tampon d'épaisseur 1000Å. La figure II-35 montre les images AFM prises à deux instants différents du dépôt. La figure II-35a correspond à la surface non recuite de 300Å d'Ag et montre la formation de terrasses de taille approximative  $0.1 \times 0.1 \mu\text{m}^2$ . La figure II-35b représente la surface recuite de la couche tampon complète : on note la présence de trous répartis de façon homogène tous les  $0.4 \mu\text{m}$ , larges de 500Å et profonds d'environ une dizaine d'Angströms. En dehors de ces défauts, l'analyse statistique révèle une rugosité RMS de 1Å. Les conditions idéales permettant d'obtenir une couche fine et plane de Fe semblaient proches.

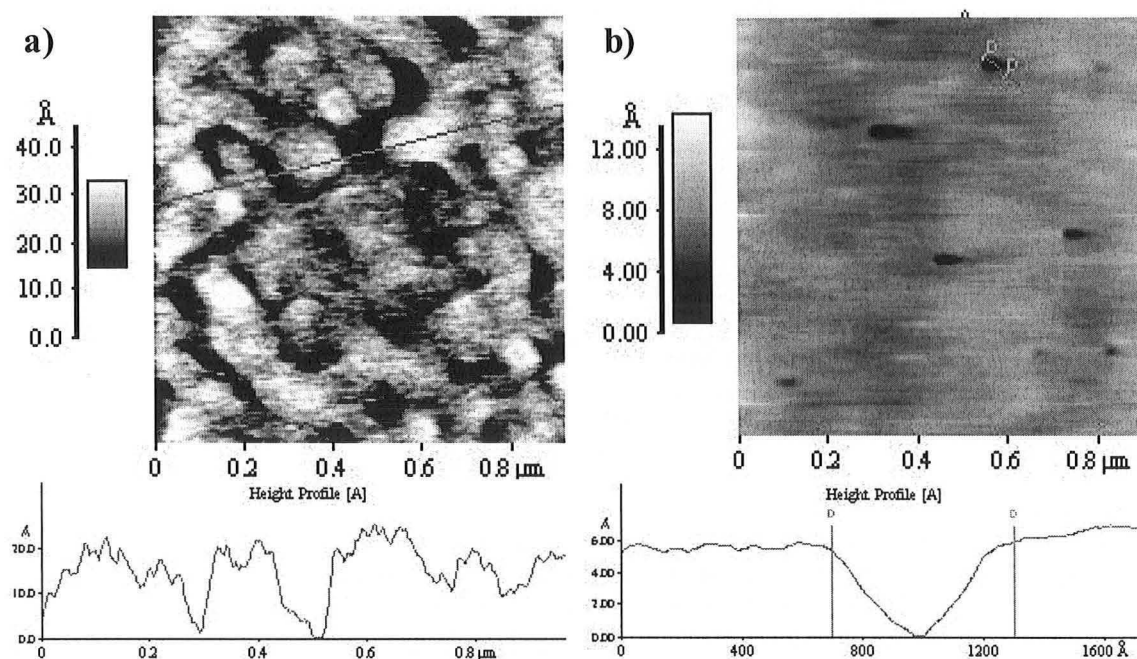


figure II-35

Image AFM et profil de rugosité sur une surface  $1 \times 1 \mu\text{m}^2$  :  
 a) pour une couche de 300Å d'Ag non recuite  
 b) pour une couche de 1000Å recuite.

Cependant, il est connu que l'Ag est surfactant [Bürgler\_PRB56\_1997]. Pour éliminer ce problème, Bürgler et al. forment une barrière à la diffusion de l'Ag en déposant une fine couche de Fe (20Å) à sa surface refroidie à 100K. Puis ils terminent le dépôt de Fe à haute température, ce qui facilite l'homoépitaxie du Fe. L'Ag restant piégé sous les premières couches de Fe, la couverture d'Ag en surface de Fe n'est alors que de 0.02 monocouche. Bien que ne disposant pas d'un four froid opérationnel, nous nous sommes inspirés de leur protocole expérimental et nous avons réalisé l'échantillon suivant : MgO(100) // Fe(10Å) / Ag(1000Å, recuit à 400°C) / Fe (20Å déposé à température ambiante) / Fe (80Å recuit à 400°C) / MgO(20Å) / Co (100Å) / Pd (100Å) pour lequel la première couche de 20 Å de Fe a été déposée à la température ambiante. Afin de savoir si l'Ag était toujours surfactant dans ces conditions, nous avons réalisé, après dépôt, une cartographie chimique des éléments en profondeur au moyen de la spectroscopie Auger associée à la gravure ionique sèche. La profondeur d'analyse des électrons Auger est d'environ 15Å : 95% du signal Auger vient donc des 10-15 premiers plans atomiques. La figure II-36 représente l'évolution des intensités Auger après chaque pas de gravure. Au fur et à mesure que la gravure progresse, les pics d'intensités des différents éléments se succèdent : Pd (non représenté), Co, O (MgO), Fe et Ag.

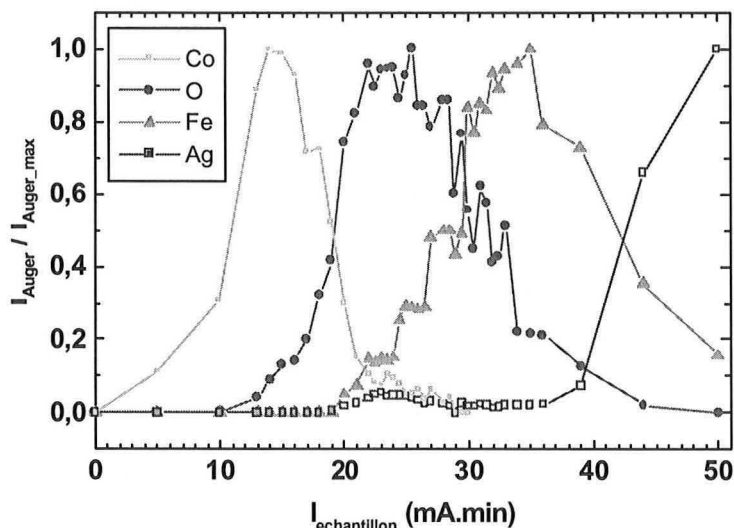


figure II-36

Courbe représentant la cartographie chimique d'un échantillon  $MgO(100) // Fe(10\text{\AA}) / Ag(1000\text{\AA}) / Fe(20\text{\AA}) / Fe(80\text{\AA}) / MgO(20\text{\AA}) / Co(100\text{\AA}) / Pd(100\text{\AA})$  montrant clairement la présence d'atomes d'Ag à l'interface Fe/MgO. Chaque spectre Auger correspond à une analyse très précise (pas en énergie de  $0.25\text{eV}$  et temps de comptage de 300ms par point du spectre Auger) du même endroit entre chaque étape de gravure. Chaque point de ce graphique a été obtenu en normalisant l'intensité du pic caractéristique de l'élément par rapport à sa valeur maximale. La courbe correspondant au Pd n'est pas représentée.

Le maximum du pic d'oxygène correspond approximativement au moment où la couche de MgO est «à nu». Le signal Auger correspondant à l'Ag est décelable légèrement avant celui du Fe : l'Ag est bien surfactant. Ceci est confirmé par l'allure de la courbe d'intensité Auger de l'Ag qui présente une légère bosse à 23mA.min, bien avant que le Fe n'ait atteint sa valeur maximale. Puis, à partir de 36mA.min, l'intensité Auger de l'Ag tend vers sa valeur maximale correspondant à la couche tampon d'Ag. Ceci est la preuve indéniable que certains atomes d'Ag ont migré en surface au fur et à mesure du dépôt de Fe.

De plus, dans la limite de détection de l'appareil, l'élément Ag n'apparaît que bien après l'élément O ce qui signifie qu'il n'est pas au dessus du MgO, mais qu'il est principalement bloqué à l'interface inférieure de la barrière tunnel. On peut également envisager des impuretés dans les premières couches de MgO. Bien qu'il soit impossible de déterminer quelle est la quantité d'atomes d'Ag à l'interface, il est clair qu'il s'agit de la plus mauvaise position imaginable. En effet, les propriétés de transport tunnel sont extrêmement sensibles aux espèces chimiques de l'interface [Freyss\_PRB66\_2002 ; Zhang\_PRB68\_2003 ; chapitre IV]. L'Ag est un matériau non magnétique et de ce fait, il risque de détruire (couche d'Ag pur à l'interface), ou tout au moins de réduire (alliage Fe-Ag) toute polarisation des électrons si l'on raisonne dans le modèle de Jullière, ou de fortement modifier les propriétés de symétries interfaciales si l'on se réfère aux mécanismes de transport dans les systèmes épitaxiés. L'effet est bien évidemment catastrophique pour la TMR.

Les mesures magnétiques réalisées sur un échantillon du type  $MgO(100) // Fe(10\text{\AA}) / Ag(1000\text{\AA}) / Fe(20\text{\AA}) / Fe(30\text{\AA}) / MgO(6\text{\AA}) / Fe(100\text{\AA}) / Pd(100\text{\AA})$  ont

montré que la présence d'Ag à l'interface détruit en partie le couplage antiferromagnétique attendu dans le cas d'une très fine couche de MgO (voir chapitre III) et nous ont conduits à abandonner les couches tampons en Ag.

Cependant, dans le cas où il serait prouvé que tous les atomes d'Ag sont bloqués à l'interface Fe/MgO et qu'aucun ne va former d'impuretés dans la barrière tunnel, alors la très bonne épitaxie de l'Ag en fait un excellent candidat pour l'élaboration de puits quantiques du type « Fe/métal non magnétique/MgO/Fe ».

### II.3.3 Couche tampon de palladium

Le Pd a une structure cubique à faces centrées de paramètre de maille 3.89Å, très proche de celui du MgO. Le système Fe/Pd s'építaxie donc très bien suivant la relation Pd[110](100)/Fe[100](100). Une fine couche d'accrochage de 15Å de Fe<sup>16</sup> [20Å de Cr cc dans Gehanno\_JMMM188\_1998] est déposée sur le MgO(100) de façon à amorcer la croissance építaxiale de la couche tampon de Pd. Un recuit permet d'aplanir la surface de Pd comme l'indiquent les fines raies sur les clichés RHEED (figure II-37). Lors de la croissance de la fine couche de Fe, nous disposons d'oscillations RHEED (figure II-38) qui, d'une part nous assurent que la croissance se fait couche par couche (ce qui est confirmé par les raies fines sur RHEED du Fe en fin de dépôt, figure II-39) et d'autre part nous permettent de contrôler précisément l'épaisseur de Fe (paragraphe II.1.2.2.2). Ces bons résultats cristallographiques à l'échelle de la diffraction d'électrons sont confirmés par imagerie AFM : la figure II-40 montre de très belles et grandes surfaces de Pd et de Fe avec une rugosité RMS de 1.2Å et environ 15Å en pic à pic sur une surface de 20×20µm<sup>2</sup>. L'utilisation d'une couche tampon de Pd est donc la solution retenue et son utilité sera démontrée aux paragraphes III.5, V.3.2 et V.4.2.

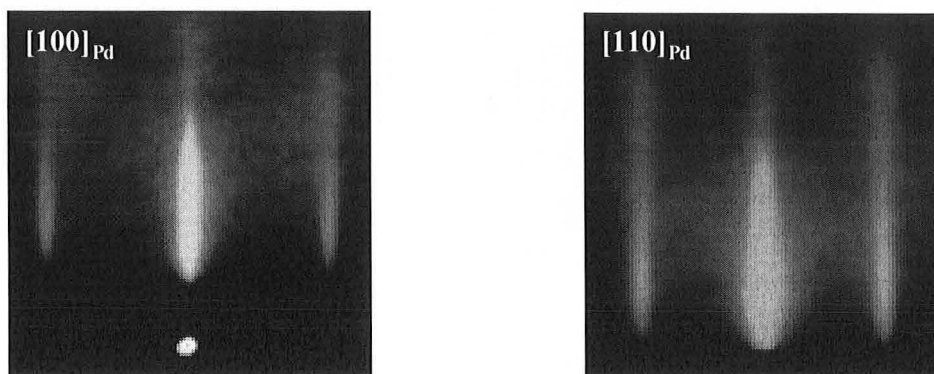


figure II-37  
Clichés RHEED de la surface d'une couche recuite de Pd.

<sup>16</sup> Pour cette épaisseur, le Fe adopte une structure tétragonale centrée.

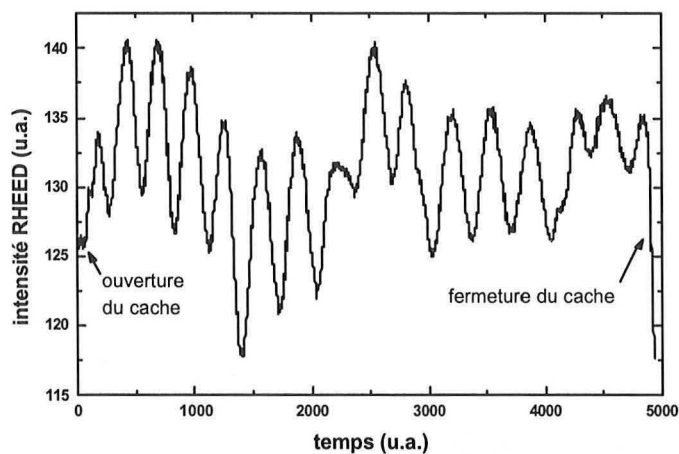


figure II-38

Oscillations d'intensité de RHEED lors du dépôt de 21 Å de Fe sur une couche tampon de Pd.

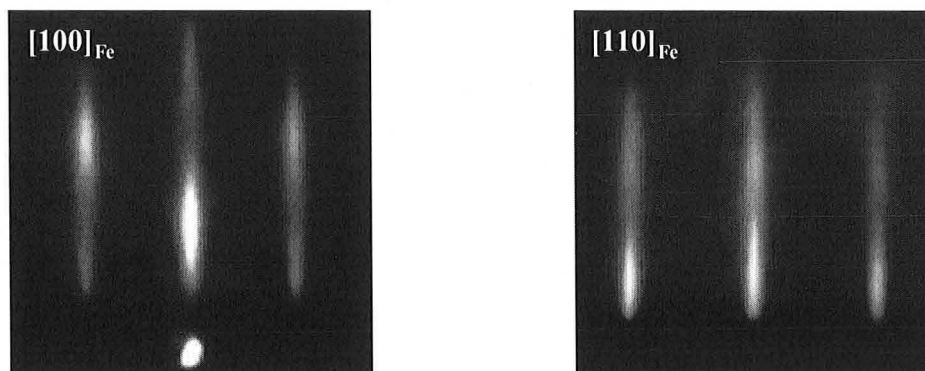


figure II-39

Clichés RHEED de la surface d'une couche de 20 Å de Fe sur le Pd recuit.

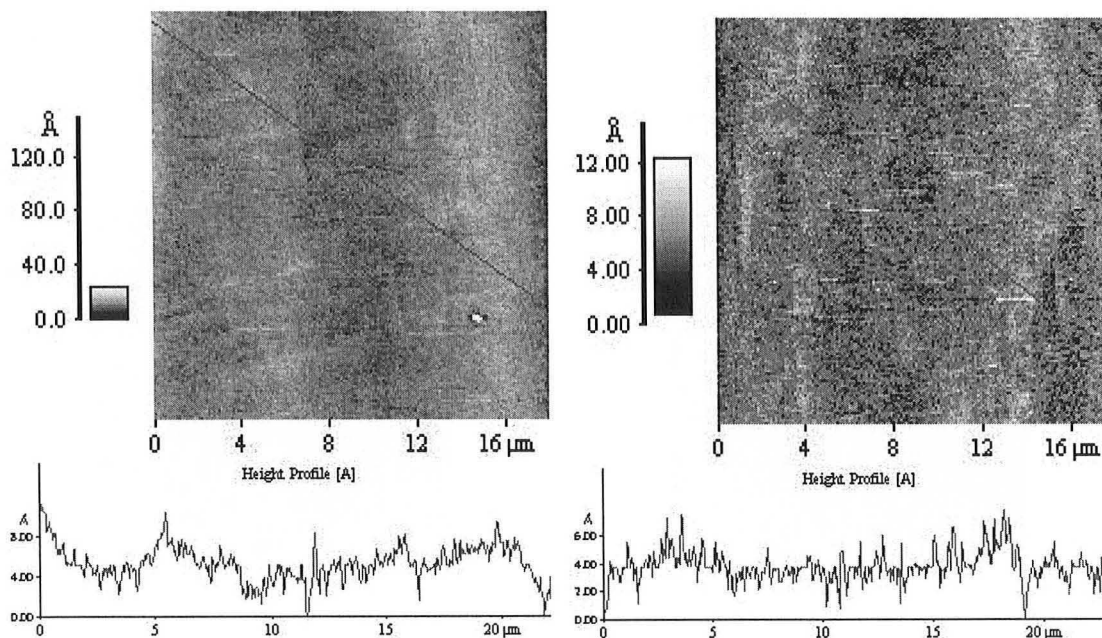


figure II-40

Image AFM et profil de rugosité sur une surface  $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ .

A gauche : pour une couche tampon de 400 Å de Pd recuite et

A droite : après le dépôt supplémentaire d'une fine couche de Fe (20 Å). Les rugosités RMS valent 1.2 Å.



## **II.4 Structuration des JTM par photolithographie**

La photolithographie développée dans la cellule de micro et nanotechnologie commune aux Laboratoire de Physique des Milieux Ionisés et Applications et Laboratoire de Physique des Matériaux nous a permis de réaliser des jonctions de dimensions comprises entre  $10\mu\text{m}$  et  $200\mu\text{m}$ . Vous pouvez en trouver une description très complète dans la thèse de François Montaigne [Montaigne\_thèse\_1999], qui a d'ailleurs développé ce procédé au sein de notre laboratoire. Le procédé technologique utilisé s'est avéré efficace dans la structuration des JTM  $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$  élaborées par pulvérisation cathodique. Cependant, divers problèmes liés à la spécificité de l'ensemble  $\{\text{MgO}(\text{substrat})/\text{Fe}/\text{MgO}/\text{Fe}\}$ , à savoir sa fragilité et sa réactivité chimique, nous ont contraints à des aménagements importants. Je me limiterai dans un premier temps au minimum nécessaire pour ensuite appréhender les difficultés rencontrées au cours de la thèse et comprendre les solutions proposées afin d'obtenir du transport tunnel à travers les jonctions dans le système  $\text{Fe}/\text{MgO}/\text{Fe}$ .

### **II.4.1 Le procédé technologique**

Le principe de la lithographie optique est illustré à la figure II-41. Après nettoyage à l'acétone et propanol sur une tournette, la surface de l'échantillon est enduite d'une résine photosensible. Notre procédé utilise une résine positive<sup>17</sup> Shipley S1813. Ensuite, on insole l'ensemble sous lumière ultraviolet (UV) à travers un masque sur lequel sont dessinés les motifs désirés. L'échantillon est alors placé dans un bain développeur qui dissout les chaînes polymères fragilisées aux endroits qui ont été éclairés par la lumière.

---

<sup>17</sup> Dans le cas d'une résine positive, les parties insolées sont fragilisées et deviennent solubles ; c'est l'inverse pour les résines dites négatives.

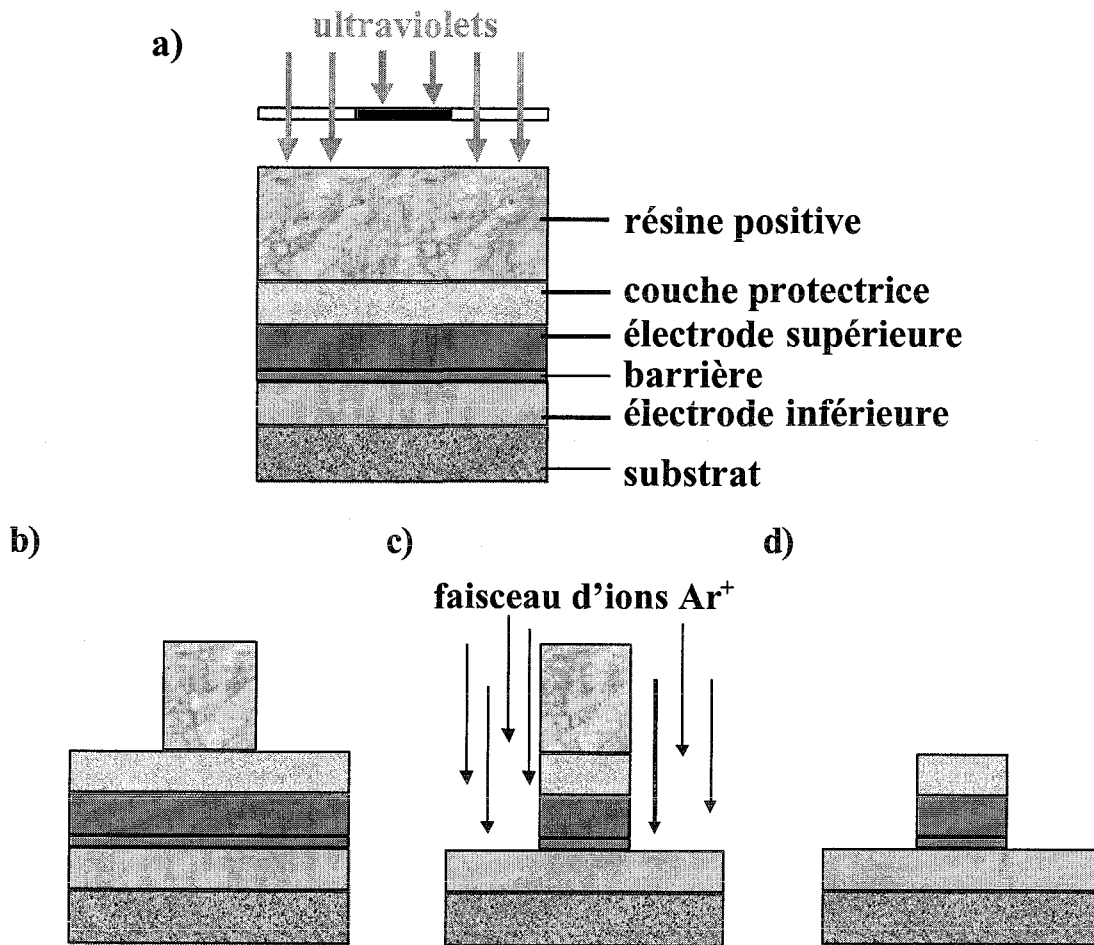


figure II-41

Principe de base de la lithographie UV

- a) Enrésinement et insolation à travers un masque opaque au rayonnement UV
- b) Développement du motif induit dans la résine
- c) Gravure ionique sèche (ions Ar<sup>+</sup>)
- d) Dissolution de la résine insolée à l'aide d'un solvant.

On peut ensuite effectuer deux types d'opération :

- soit la surface de l'échantillon est bombardée par un faisceau d'ions Ar<sup>+</sup>, les zones non protégées par la résine seront gravées (figure II-42). Le suivi de la gravure est réalisé au moyen de la spectroscopie Auger qui permet de connaître les espèces chimiques en surface et donc de savoir quand s'arrêter. Après la gravure, l'échantillon est plongé dans un bain de solvant afin d'éliminer la résine restante
- soit un métal ou un isolant est déposé sur toute la surface de l'échantillon avant de dissoudre la résine dans le solvant (opération appelée *lift-off*). A l'issue de cette opération, le dépôt ne subsiste que sur les régions de la surface qui n'ont pas été protégées par la résine.

Plusieurs étapes sont nécessaires pour définir la jonction tunnel en elle-même :

- une première étape de lithographie puis de gravure permettent d'obtenir la partie supérieure de la jonction (figure II-42b)
- l'électrode inférieure est ensuite définie par un procédé analogue (figure II-42c)
- une épaisse couche isolante (90nm de  $\text{SiO}_2$ ) est déposée sur toute la surface de l'échantillon après que les futurs contacts métalliques sur les électrodes inférieures et supérieures aient été protégés par des motifs de résine
- l'ouverture de l'isolant est réalisée au moyen d'une étape de lift-off d'autant plus facile que les motifs se présentent sous forme de « casquette » (figure II-42d)
- une dernière étape de lithographie, suivie d'un dépôt d'une couche d'aluminium (150nm) et d'un lift-off, permet de définir les contacts électriques des couches ferromagnétiques supérieure et inférieure des jonctions (figure II-42e).

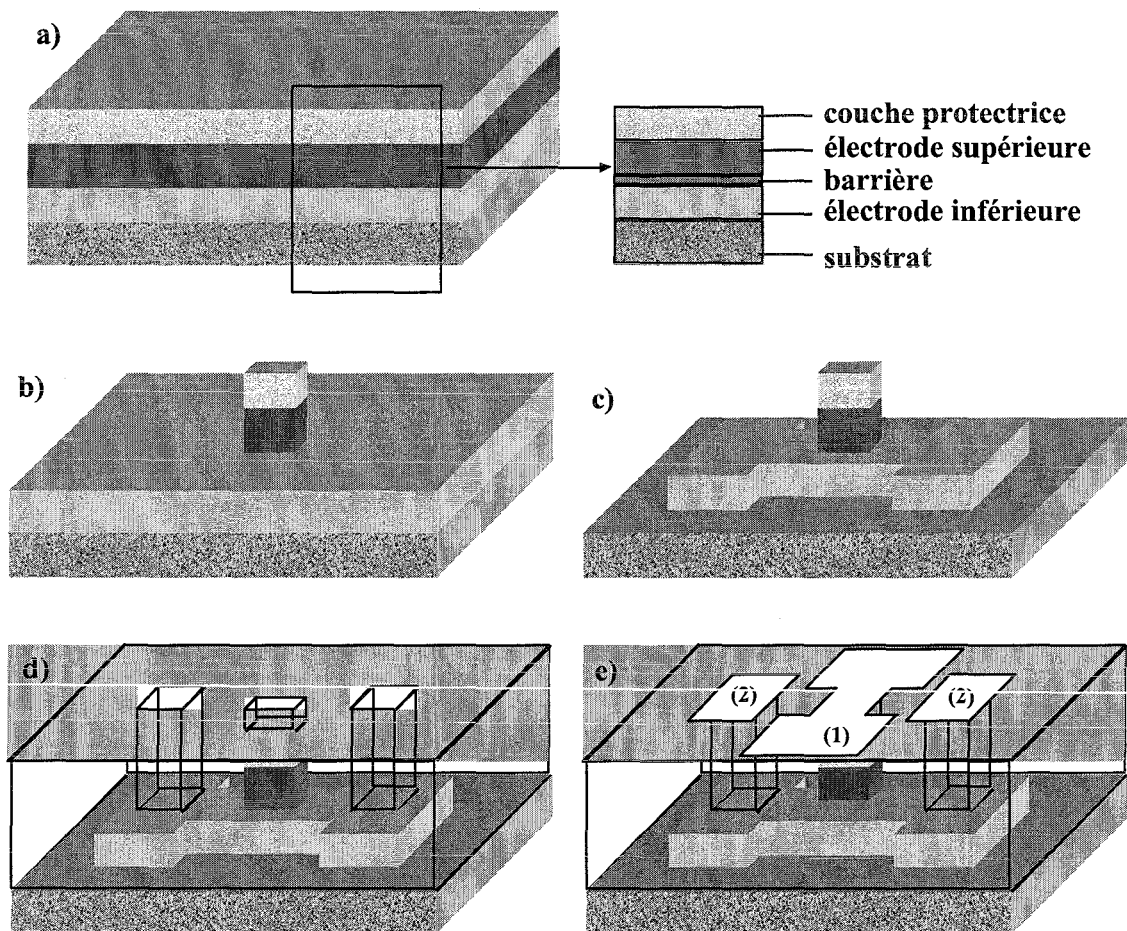


figure II-42

Étapes de lithographie UV pour structurer des jonctions tunnel magnétiques :

- a) l'ensemble initial de la multicouche
- b) définition de l'électrode supérieure
- c) définition de l'électrode inférieure et séparation des jonctions individuelles
- d) dépôt d'un isolant ( $\text{SiO}_2$ ) pour isoler et protéger les surfaces latérales des différentes jonctions
- e) dépôt des contacts métalliques qui forment les électrodes du haut (1) et du bas (2).

## II.4.2 Limitations du procédé pour les JTM Fe/MgO/Fe et améliorations

Le procédé technologique décrit précédemment s'est avéré efficace dans la structuration des JTM Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co élaborées par pulvérisation cathodique. Cependant, divers problèmes liés à la fragilité et la réactivité chimique de l'ensemble {MgO(substrat)//Fe/MgO/Fe} nous ont contraints à des aménagements particuliers afin d'obtenir du transport tunnel à travers la jonction sans chemin de conduction parasite.

### II.4.2.1 Influence des ultrasons

Après les étapes de gravure, de dépôt de SiO<sub>2</sub> ou d'Al, la dissolution des motifs de résine dans un bain d'acétone est grandement facilitée par l'utilisation d'ultrasons. Si ces ultrasons sont inoffensifs quand la jonction est protégée par l'isolant, il n'en est pas de même à la fin de la deuxième étape de gravure. En effet, à ce stade, l'électrode inférieure vient d'être définie. Au bord de l'échantillon, on peut noter la présence de bourrelets de résine qui ont protégé les parties métalliques situées en dessous. Au moment de la dissolution, ces fines parties métalliques irrégulières sont arrachées par les ultrasons et se dispersent sur tout l'échantillon. Ces éléments peuvent alors éventuellement traverser la couche isolante de SiO<sub>2</sub> et réaliser un court-circuit entre l'électrode inférieure et le contact supérieur en aluminium (création d'un canal de conduction parasite), comme illustré sur la figure II-43. Le détournage (dissolution de la résine au bord) avant gravure permet de réduire la densité de ces défauts. On constate également que les ultrasons arrachent de petits morceaux de substrats aux endroits fragilisés (fixation des pattes, manipulations avec les pinces).

Malheureusement, l'utilisation d'ultrasons est indispensable pour enlever la résine. La solution retenue a donc été de minimiser leur durée, quitte à ne pas « ouvrir » les jonctions de tailles les plus petites.

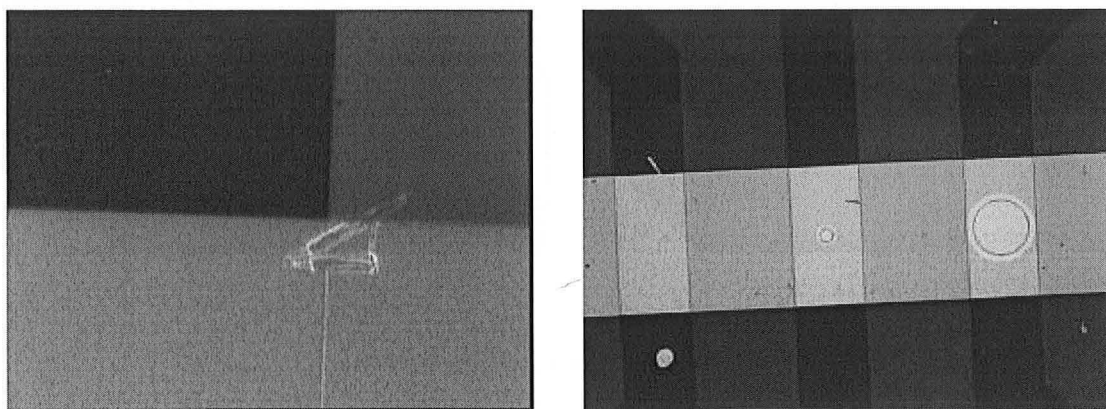


figure II-43

*A gauche : morceaux du substrat de MgO arrachés par les ultrasons et localisés à l'intersection des électrodes inférieure et supérieure. Visualisé en lumière polarisée.*

*A droite : grande densité de défauts induits par les ultrasons (points noirs et paillettes métalliques).*

### II.4.2.2 Faisceau non neutralisé

Pour effectuer la gravure, nous disposons d'un canon non neutralisé (faisceau d'ions  $\text{Ar}^+$ ). Si toutes les charges positives ne sont pas évacuées au niveau de l'échantillon, elles peuvent ralentir les ions incidents et en modifier la trajectoire [Guzdar\_APL71\_1997]. Ceci a de lourdes conséquences pour l'homogénéité de la gravure sur toute la surface de l'échantillon. En effet, plaçons-nous à la gravure de l'étape *b* du procédé de lithographie (figure II-42), c'est-à-dire pendant la définition du plot constituant l'électrode supérieure. Supposons que la gravure des couches métalliques supérieures est inhomogène de telle sorte que les ions attaquent non uniformément la couche d'oxyde ; la gravure y est généralement plus lente que dans les métaux [Vossen\_1991]. Les ions atteindront le métal inférieur à certains endroits alors qu'à d'autres, on sera toujours dans la couche d'oxyde. Ainsi, la gravure va se trouver fortement accélérée dans les parties métalliques inférieures, accentuant d'autant plus l'inhomogénéité de la gravure. Ceci se reflète sur la cartographie des résistances des électrodes inférieures, illustrée à la figure II-44.

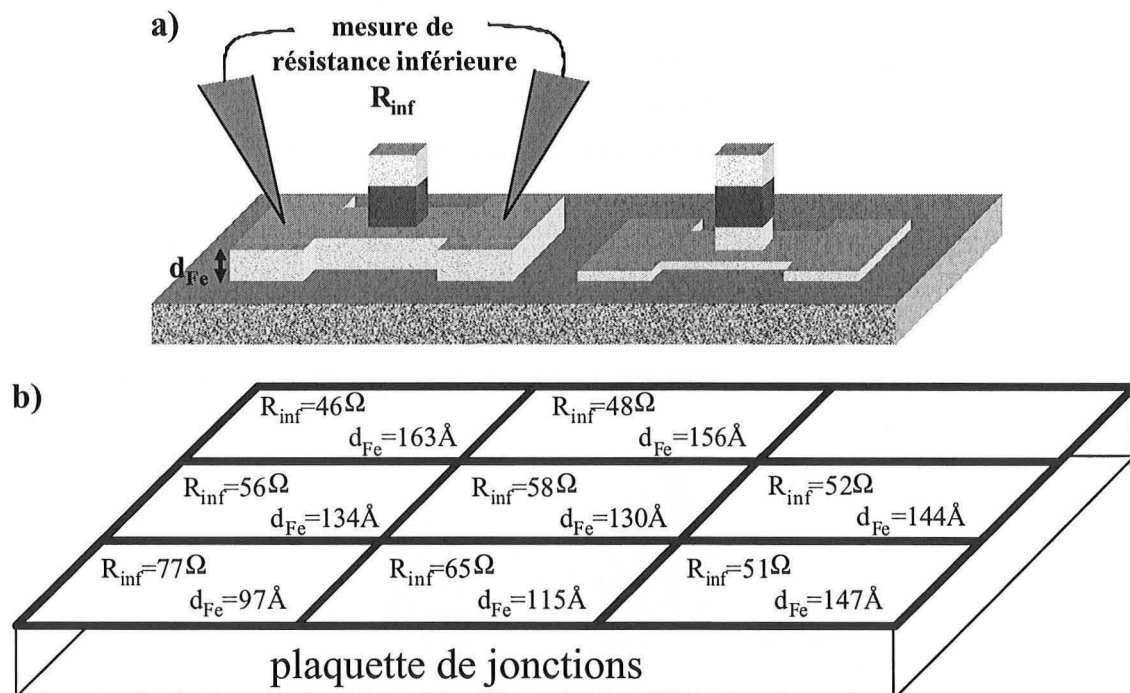


figure II-44

a) Illustration des conséquences de l'inhomogénéité de la gravure : l'épaisseur de l'électrode inférieure peut fortement varier d'une jonction à l'autre.

b) Carte des résistances électriques de l'électrode inférieure de Fe ( $R_{\text{inf}}$ ) et de l'épaisseur correspondante ( $d_{\text{Fe}}$ ). Chaque case du tableau correspond à la position d'une jonction par rapport à ses voisines ; l'espacement entre chaque jonction est de quelques millimètres. La résistance est d'autant plus élevée que la couche inférieure a été gravée. L'électrode inférieure a une largeur de  $400\mu\text{m}$  et une longueur de  $3\text{mm}$ .

Nous avons tenté d'installer un cadre métallique afin de faciliter l'évacuation des charges mais sa mise en place délicate et son manque d'efficacité ont montré que la meilleure solution reste l'utilisation d'un canon neutralisé, qui devrait être prochainement opérationnel.

Afin de limiter au maximum cette inhomogénéité de gravure, nous avons dû réduire l'épaisseur de la couche située au dessus de la barrière, i.e. l'électrode supérieure. Alors que les propriétés magnétiques ont été optimisées<sup>18</sup> pour une couche supérieure dure composée typiquement de 50Å de Fe et de 400Å de Co, nous avons dû la réduire à Fe(50Å)/Co(100Å) ; malheureusement, les propriétés magnétiques sont nettement moins bonnes (champ coercitif plus faible, cycle magnétorésistif asymétrique témoignant d'une configuration magnétique antiparallèle mal définie).

De plus, au cours de la gravure, les particules chargées envoyées peuvent s'accumuler dans la barrière de MgO et entraîner son claquage. Un phénomène proche a été obtenu dans le cas d'un faisceau RHEED sur une couche de MgO (annexe B).

### II.4.2.3 Réactivité de la couche inférieure de Fe

Les échantillons lithographiés présentaient souvent des défauts à divers endroits des électrodes inférieures et notamment en leur bord. L'imagerie AFM (figure II-45) a montré qu'il s'agissait de pics de hauteur allant jusqu'à 100nm et traversant donc complètement le SiO<sub>2</sub> pour les échantillons lithographiés et interdisant par conséquent tout transport tunnel à travers la jonction (deuxième type de canal de conduction parasite). L'étude en AFM à chaque étape du procédé de lithographie a mis en évidence que cette oxydation du Fe se produit au moment du dépôt réactif de SiO<sub>2</sub>, lorsque le plasma (Ar+O<sub>2</sub>) est activé. Cette oxydation est favorisée par le fait qu'après la gravure, les bords de l'électrode inférieure ne sont sans doute plus monocristallins et s'oxydent donc très facilement.

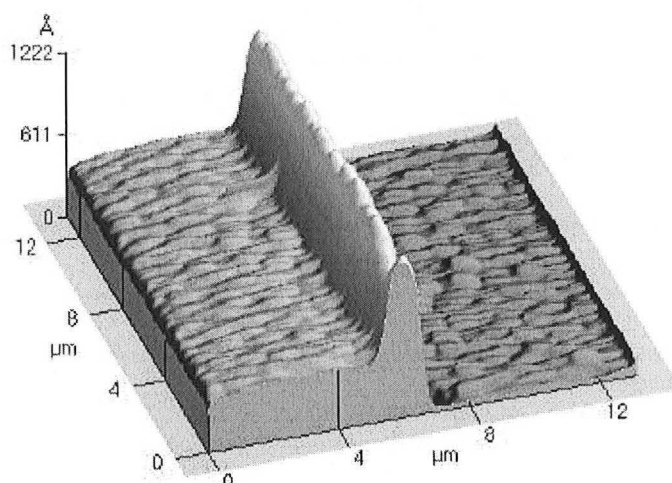


figure II-45

Images AFM du bord de l'électrode inférieure : le bord est oxydé par le plasma Ar+O<sub>2</sub>. Sa hauteur importante fragilise le dépôt de SiO<sub>2</sub> et peut même le traverser complètement.

<sup>18</sup> Renversement abrupt, reproductible, fort champ coercitif, configuration antiparallèle parfaitement définie.

Afin de s'affranchir de l'oxydation de la couche inférieure de Fe, nous avons pensé à un échantillon du type « MgO(100)// tampon de Pd recuit / Fe / MgO / Fe » en prévoyant de s'arrêter dans la couche noble de Pd. Cependant, bien qu'ils soient diminués, les problèmes d'oxydation de l'électrode inférieure sont toujours présents<sup>19</sup>. De plus, la fine couche de Fe en bord d'électrode inférieure s'oxyde et on se trouve également confronté au problème des redépôts sur les bords de la barrière tunnel (voir le paragraphe II.4.2.4 suivant).

Nous avons également remplacé le SiO<sub>2</sub> par du MgO déposé dans notre bâti de MBE mais les premiers résultats ont montré des problèmes d'adhérence qui donnaient naissance à des trous dans le MgO en bord de jonction. Ces trous étaient alors comblés par l'aluminium déposé pour établir les contacts électriques et la jonction était court-circuitée (figure II-46). Le faible délai entre ces premiers essais et le début de la rédaction de ce mémoire n'ont pas permis d'optimiser cette procédure.

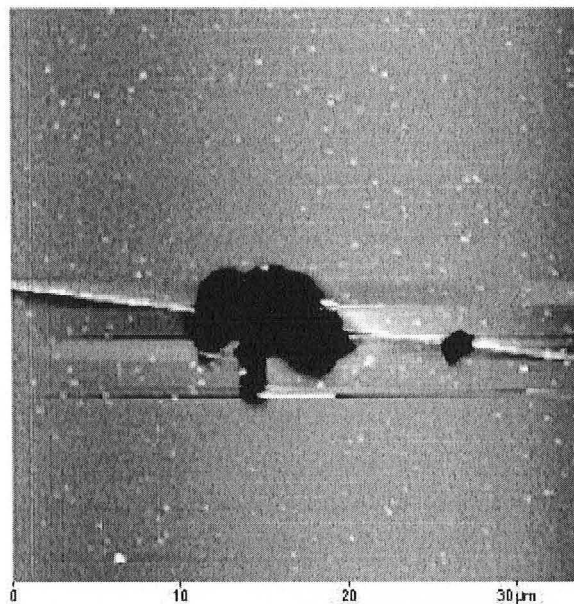


figure II-46

Image AFM illustrant les problèmes d'adhérence donnant naissance à des trous dans le MgO en bord d'électrode. Ces trous sont alors comblés par l'aluminium déposé et la jonction est court-circuitée.

Afin d'éliminer l'oxydation de l'électrode inférieure de Fe, des tests ont été réalisés avec un autre isolant : Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>. Pour l'instant les premiers résultats n'ont pas été concluants : le matériau déposé était un mauvais isolant ; des études sur la stœchiométrie doivent être effectuées.

<sup>19</sup> Une étude comparative a montré qu'une électrode en Pt s'oxyde également dans un plasma réactif d'O<sub>2</sub> bien que le Pt soit connu comme métal noble, preuve de la violence du plasma.

### II.4.2.4 Redépôts

Lors de la gravure, les espèces gravées sont éjectées isotropiquement. Une partie des couches gravées va donc se déposer sur les bords des motifs. Les images AFM et MEB (Microscopie Electronique à Balayage) confirment la présence de ces redépôts métalliques, qui sont d'autant plus importants que l'épaisseur des couches gravées est grande (figure II-47 et figure II-48). Ce phénomène apparaît aussi bien à l'étape de définition de la jonction supérieure que de l'électrode inférieure.

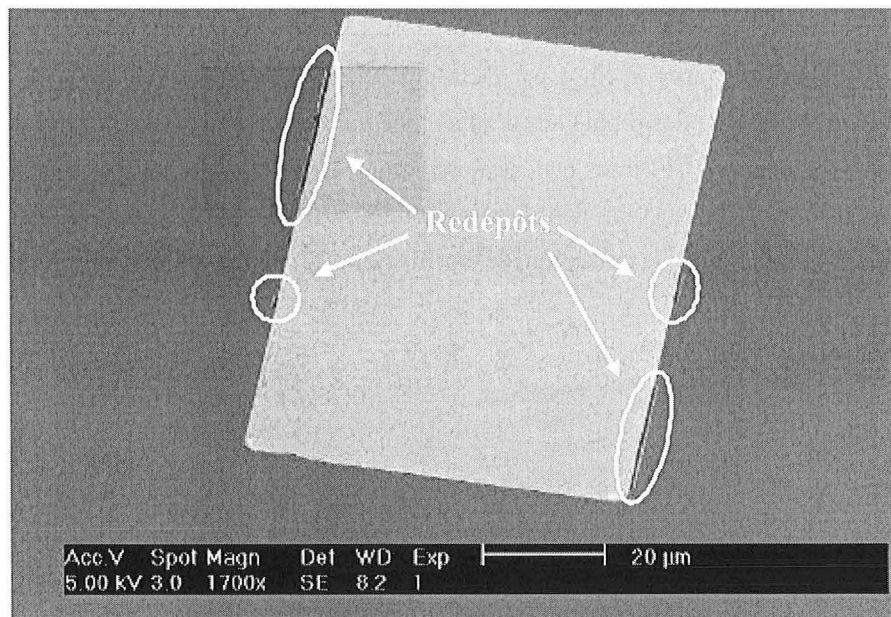


figure II-47  
Image MEB prise juste après la définition de l'électrode supérieure.

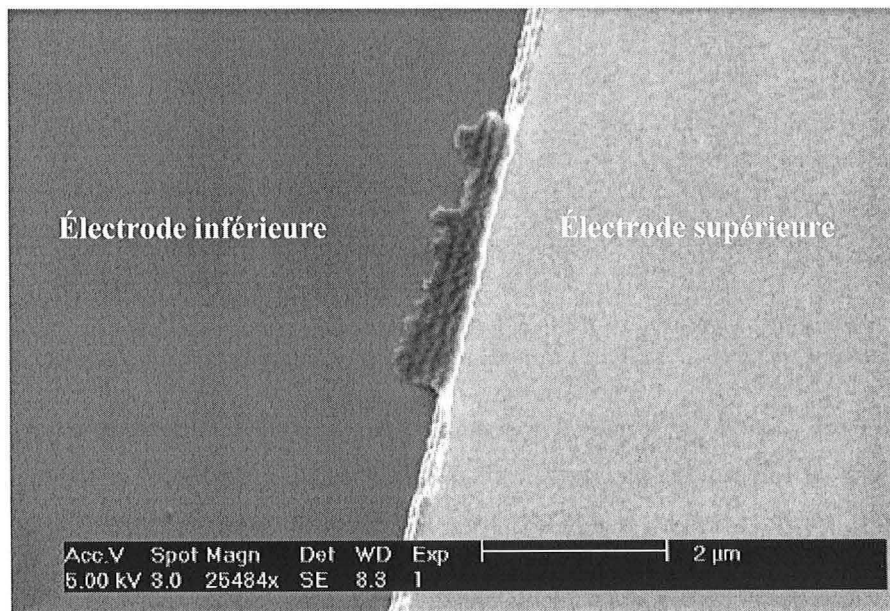


figure II-48  
Image MEB agrandie d'un redépôt partant de l'électrode supérieure et rejoignant l'électrode inférieure. Le redépôt est nettement visible ; il n'y a aucun problème d'accumulation de charge, il est donc métallique et court-circuite la jonction.



### II.4.2.5 Sous gravure<sup>20</sup> de la première électrode

Les redépôts métalliques sur les flancs de la jonction supérieure court-circuitent la barrière tunnel. Afin d'éliminer ce problème, nous avons envisagé d'effectuer la gravure sous angle d'incidence, afin de nettoyer les redépôts au fur et à mesure de la gravure. Ceci a été peu convaincant. La solution la plus efficace consiste à ne pas graver complètement la couche isolante (figure II-49). En s'arrêtant ainsi dans la barrière de MgO, seule la partie gravée est éventuellement court-circuitée. L'épaisseur effective de la barrière tunnel peut s'en trouver diminuée d'autant et cela peut créer un canal de conduction supplémentaire et non polarisé en bord de jonction, diminuant l'effet de magnétorésistance. L'idéal est donc de s'arrêter juste à la surface de l'isolant mais ceci est techniquement difficile à réaliser. Le contrôle de la gravure de l'isolant s'effectue par spectroscopie Auger : une fois que le signal Auger de la couche isolante est détecté, la gravure s'effectue par petits pas, entrecoupés d'analyses Auger. La gravure est arrêtée juste après que le maximum du pic d'oxygène soit passé. Ceci est représenté à la figure II-50. Bien qu'il soit impossible de connaître l'épaisseur de MgO effectivement gravée par cette méthode approximative, ceci permet de laisser intacte et isolante une bonne partie de la couche de MgO, comme le montre la distribution très homogène des résistances inférieures, preuve que la couche tampon de Fe n'a été gravée à aucun endroit. L'utilisation de ce procédé a permis de réduire la fréquence des défauts d'oxydation et ainsi d'obtenir des jonctions dont la résistance varie avec la surface (S) suivant la loi  $R_{jonction} \propto 1/S$ , comme cela est attendu dans le cas d'une barrière homogène et en l'absence de canal de conduction parasite. Les résultats magnétorésistifs de ces jonctions sont étudiés au chapitre V.

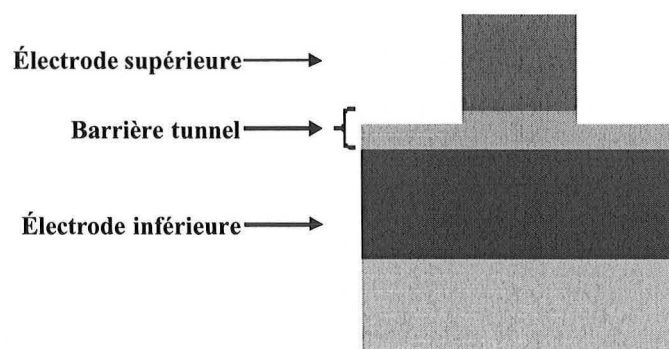


figure II-49  
Schéma expliquant ce que l'on définit par « sous-gravure de l'électrode supérieure » : on s'arrête dans la couche de MgO.

<sup>20</sup> Contrairement au procédé initial de gravure qui consiste à définir la jonction supérieure en s'arrêtant dans l'électrode inférieure, ce terme « sous gravure » signifie que l'on arrête la gravure dans la barrière.

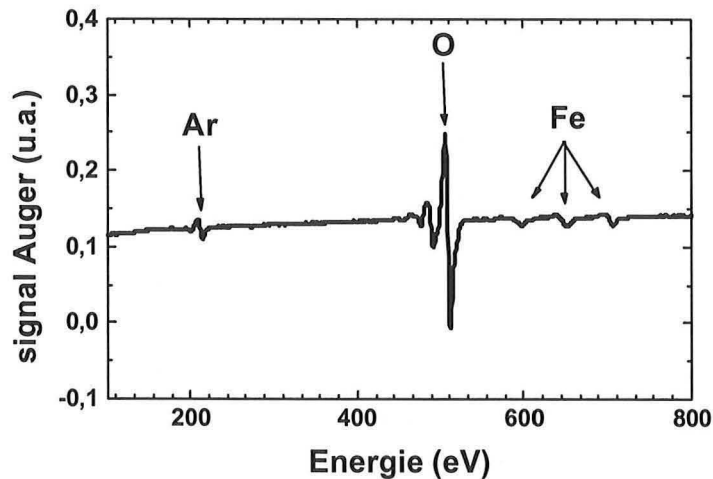


figure II-50

Spectre Auger correspondant à l'arrêt de la première étape de gravure (définition de l'électrode supérieure) dans la barrière de MgO : le pic d'O est maximal et les pics du Fe sont peu visibles. Le pic d'Ar est seulement visible lorsque la couche de surface est un isolant, ce qui est bien le cas.

Cette méthode, dite de « sous-gravure », présente en fait un double avantage : elle évite de court-circuiter la barrière par les bords mais elle protège aussi partiellement la couche inférieure de Fe de l'oxydation pendant le dépôt de SiO<sub>2</sub> par plasma réactif, quand l'épaisseur restante de MgO est suffisante.

#### II.4.2.6 Sur gravure de la deuxième électrode et nouveaux masques

La maîtrise de la qualité cristalline de l'empilement imposant une couche tampon nécessairement épaisse, les redépôts sur les bords de l'électrode inférieure sont importants. Ils peuvent court-circuiter la jonction, créant un canal de conduction supplémentaire et faiblement résistif. Le nettoyage des bords s'effectue par une longue gravure en angle.

De plus, lorsque la couche inférieure de métal a complètement disparue, cette méthode permet de déposer du MgO (provenant du substrat) sur les bords de l'électrode inférieure. A la fin de l'opération, l'électrode inférieure de Fe est protégée par une couche de MgO suffisamment épaisse pour éviter l'oxydation du Fe dans le plasma Ar+O<sub>2</sub> pendant le dépôt de SiO<sub>2</sub>. L'efficacité d'un tel protocole est illustrée à la figure II-51 qui compare le profil du bord de l'électrode inférieure des premières jonctions lithographiées avec celui des jonctions pour lesquelles le procédé a été amélioré entre le début et la fin de cette thèse : plus aucun défaut n'est observé ; par suite les jonctions ne sont plus court-circuitées et elles présentent des résultats magnétorésistifs importants et reproductibles. Malheureusement, la durée optimale de cette « sur-gravure » étant mal connue, les risques sont les suivants :

- pulvériser trop de MgO du substrat<sup>21</sup>
- ou charger électriquement le substrat, ne plus graver dans celui-ci mais nettoyer les bords des électrodes préalablement protégées par le MgO pulvérisé.

<sup>21</sup> On peut déposer du MgO amorphe ou polycristallin qui pourrait être conducteur ou seulement du Mg.

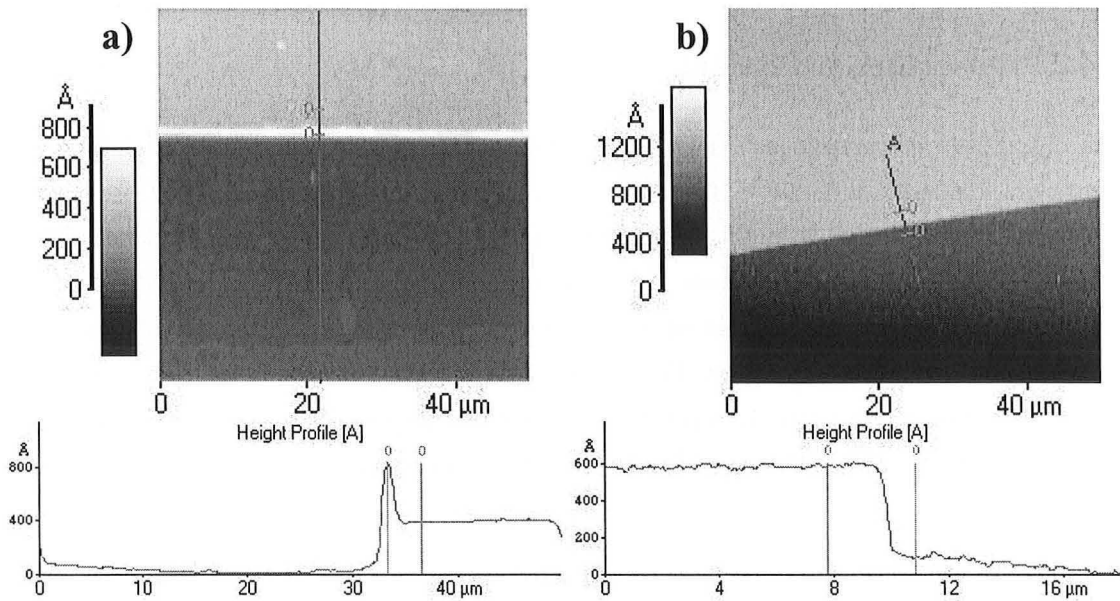


figure II-51

Images AFM du bord de l'électrode inférieure et profil de rugosité :

a) le bord est oxydé par le plasma Ar+O<sub>2</sub>. Sa hauteur importante fragilise le dépôt de SiO<sub>2</sub> et peut même le traverser complètement

b) aucune trace d'oxydation n'est visible grâce aux solutions imaginées.

De plus, afin de réduire les zones de vis-à-vis entre l'aluminium de l'électrode supérieure déposée et les bords de l'électrode inférieure de Fe (i.e. les endroits de court-circuit potentiel), de nouveaux masques ont été conçus ; la jonction finale est représentée à la figure II-52.

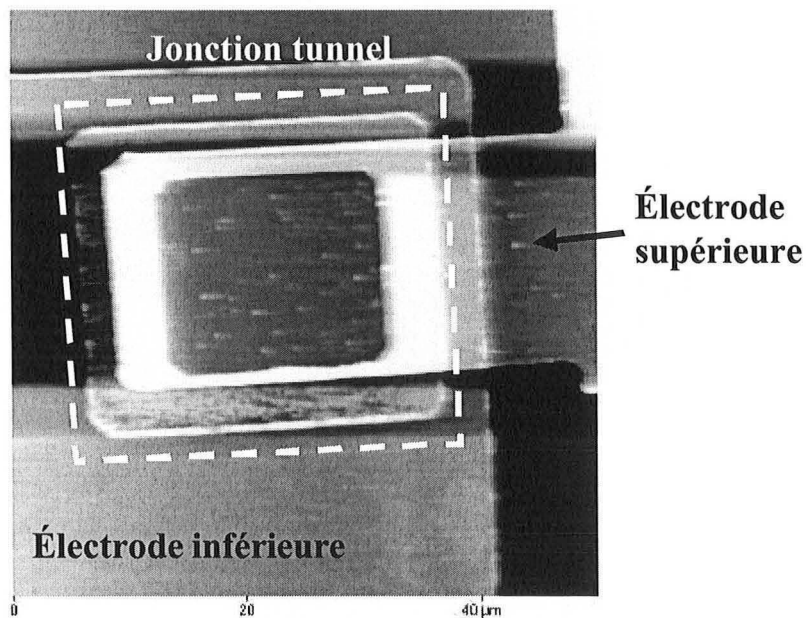


figure II-52

Images AFM des derniers masques conçus afin de réduire les zones de vis-à-vis entre les électrodes supérieure et inférieure.

### II.4.2.7 Ouverture de l'isolant

Lors du procédé lithographique, l'isolation électrique entre les deux électrodes métalliques est réalisée grâce à un dépôt de  $\text{SiO}_2$ . Une fois la résine déposée, insolée et développée, l'isolant est déposé par plasma réactif. Si le plot de résine présente un profil «carré» comme celui dessiné à la figure II-53a, alors le  $\text{SiO}_2$  se dépose le long de ses bords. Une fois la résine dissoute dans un bain d'acétone, les jonctions présentent des excroissances de  $\text{SiO}_2$  en forme de collerettes de 300nm de hauteur, comme le montre l'image AFM de la figure II-53b. Cela gêne la prise de contact métallique réalisée lors du dépôt d'Al, essentiellement pour les jonctions de petite taille puisque le métal ne peut mouiller correctement la jonction supérieure.

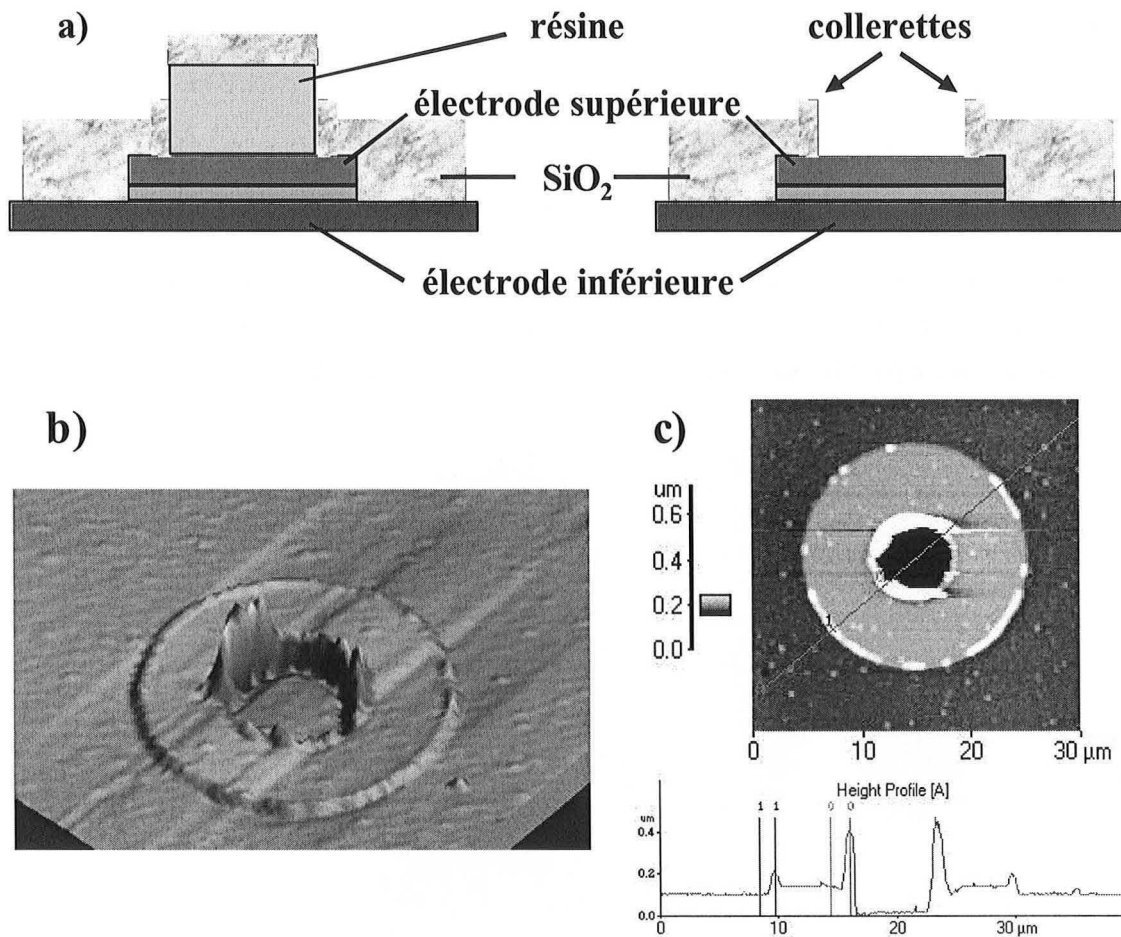


figure II-53

a) Schéma expliquant l'origine des collerettes de  $\text{SiO}_2$  (les échelles verticales respectives entre les épaisseurs des couches et des dépôts de résine et de  $\text{SiO}_2$  ne sont pas respectées).

b) Image AFM d'une jonction supérieure de 20µm de diamètre. Le profil de rugosité montre que la collerette atteint 300nm de hauteur. On peut également remarquer les redépôts en bord d'électrode (100nm).

L'utilisation de deux résines permet de s'affranchir de ses problèmes de collerettes. L'opération consiste à induire l'échantillon d'une première résine (LOR3A) et d'appliquer par dessus la résine habituelle (S1813). L'ensemble est insolé. La résine LOR3A est un polymère préinsolé par le fabricant, ses liaisons sont donc plus fragiles que celles de la résine S1813. Lors du développement, une fois que le solvant a dissout la S1813 insolée, il s'attaque à la résine LOR3A. Au niveau des plots de résine, l'attaque chimique se fait par les bords ce qui donne naissance au profil en forme de champignon illustré à la figure II-54a. Après lift-off de l'isolant, l'imagerie AFM ne montre aucune trace de collerette, preuve de l'efficacité du procédé (figure II-54b et c).

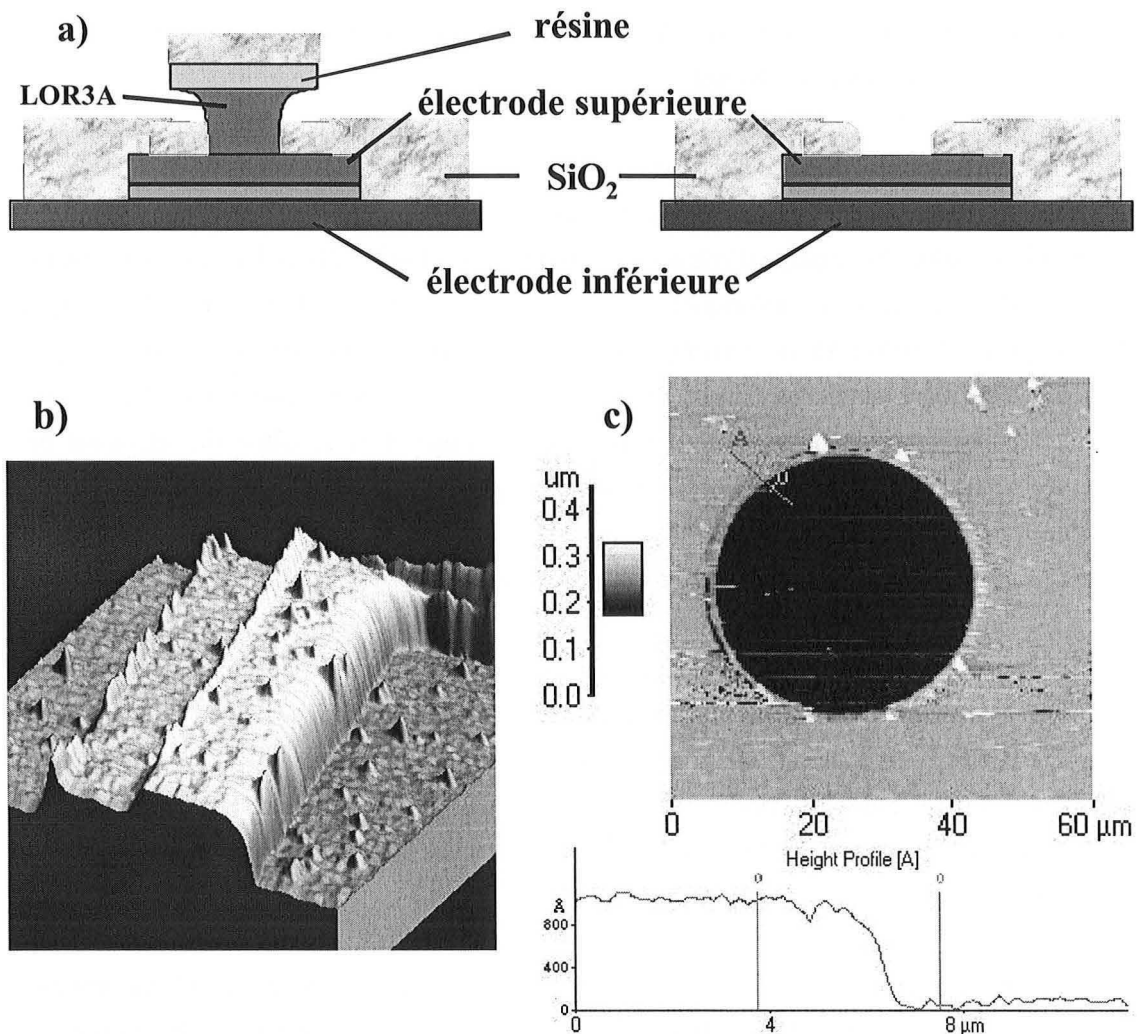


figure II-54

- a) Schéma expliquant le principe des casquettes (les échelles verticales respectives entre les épaisseurs des couches et des dépôts de résine et de SiO<sub>2</sub> ne sont pas respectées).  
 b) Image AFM du profil d'ouverture de l'isolant au niveau du contact supérieur de la jonction présentée à la figure II-52 montrant le profil bien arrondi, sans collerette.  
 c) Image AFM d'une jonction supérieure de 40 μm de diamètre. Le profil de rugosité ne montre aucune collerette.

### **II.4.3 Récapitulatif**

Les diverses solutions proposées ont permis d'obtenir du transport tunnel à travers la jonction en réduisant la contribution des chemins de conduction parasite précédemment énumérés. Toutefois, les solutions développées sont «relatives» dans le sens où les problèmes sont fortement réduits mais subsistent à une moindre échelle. En conséquence, l'obtention de transport tunnel à travers la barrière pour de faibles épaisseurs de MgO apparaît d'ores et déjà très compromise de même que pour le régime des très fortes épaisseurs.

Le fait de ne pas pouvoir mesurer des JTM avec de fines barrières de MgO nous prive d'une étude de physique fondamentale particulièrement intéressante. Premièrement, ceci nous empêche d'étudier la variation du couplage d'échange par effet tunnel (chapitre III) en fonction de la tension appliquée dont les modèles théoriques reposent notamment sur le formalisme de Keldysh [Schwabe\_PRB54\_1996 ; Heide\_PRB59\_1999]. Deuxièmement, pour des épaisseurs de MgO inférieures à six plans atomiques, la barrière tunnel s'épitaixie de façon pseudomorphe ; dans ce cas, sa structure reste proche du modèle de prédiction théorique et la symétrie des électrons est conservée pendant le transport tunnel. Enfin, dans ce régime d'épaisseur, le couplage des états de résonance interfaciale induit un transport balistique pour une bande de spin qui pourrait se traduire par des effets magnétorésistifs particulièrement importants.

Pour des épaisseurs plus importantes, nous avons déjà signalé que des dislocations apparaissent et déforment localement la structure cristalline et entraînent l'apparition de fautes d'empilement des atomes à chaque interface de la barrière. Il aurait été sans aucun doute intéressant de comparer les propriétés de transport pour deux systèmes de part et d'autre de la transition « barrière contrainte - barrière relaxée », par exemple pour des échantillons ayant respectivement 10Å et 14Å de MgO.

En terme de magnétorésistance brute, le régime des très grandes épaisseurs est le plus intéressant : de larges effets sont prédits (chapitre IV). Cependant, dans ce cas, la résistance de la jonction est trop importante et les canaux de conduction parasite subsistants diminuent la TMR.

## **II.5 Conclusion**

L'élaboration d'empilements monocristallins Fe/MgO/Fe a été possible grâce à la technique d'épitaixie par jets moléculaires. La grande qualité cristallographique a été vérifiée conjointement aux échelles micro et nanoscopiques par RHEED, AFM et MET.

La croissance bidimensionnelle du MgO sur la couche tampon de Fe plane est l'un des atouts majeurs du système modèle Fe/MgO/Fe :

- 1) elle limite toute fluctuation de l'épaisseur de la barrière, ce qui est important pour l'homogénéité du courant tunnel et de ses caractéristiques,
- 2) elle permet d'épitaixier des couches de MgO fines et continues à l'échelle d'une jonction,
- 3) elle réduit le nombre de fautes d'empilement et autorise une interface supérieure MgO/Fe également plane, point crucial pour la conservation de la symétrie électronique à travers la multicouche,
- 4) la détermination précise de l'épaisseur de MgO s'effectue grâce aux oscillations d'intensité RHEED. Ce point sera décisif pour la mise en évidence du couplage entre deux couches ferromagnétiques par effet tunnel polarisé en spin, phénomène traité au chapitre III.

La deuxième électrode de Fe est magnétiquement durcie par l'épitaixie d'une couche de Co hcp qui présente deux variants dont les axes de facile aimantation sont orientés suivant les axes difficiles du Fe. Le magnétisme de cette bicouche sera étudié au début du chapitre suivant.

Un travail important a été fourni sur l'étude de la nature chimique de l'interface Fe/MgO. Les conclusions préliminaires (une étude plus approfondie sera effectuée dans le cadre de la thèse de Muriel Sicot) ont montré que la croissance préalable d'une couche épaisse de MgO sur le substrat permet de piéger le carbone et évite qu'il contamine l'interface et perturbe les mécanismes de transport. Cependant, dans ce cas, les sites interstitiels laissés vacants sont occupés par des atomes d'oxygène provenant du flux de MgO et donnant naissance à une couche intermédiaire de FeO. L'impact sur le transport tunnel sera traité de façon théorique au chapitre IV et les résultats magnétorésistifs présentés au paragraphe V.1.4 en apporteront une preuve flagrante.

Enfin, la dernière partie a décrit le protocole de structuration des JTM. Les diverses améliorations apportées entre le début et la fin de cette thèse ont permis l'obtention et la reproductibilité d'importants résultats magnétorésistifs ainsi que l'approfondissement de nombreux aspects de la physique fondamentale propre aux systèmes épitaixiés.





## Chapitre III

# Interactions magnétiques dans le système Fe/MgO/Fe

Le contrôle des propriétés magnétiques est un point capital dans l'élaboration de JTM : les deux électrodes métalliques doivent présenter un même axe de facile aimantation et des champs coercitifs, ou champs de retournement, fortement différents. Le but est l'accès précis et aisé aux configurations parallèle (P) ou antiparallèle (AP) au moyen du contrôle individuel de l'aimantation de chaque film magnétique dans cette architecture *douce-dure*. L'épitaxie permet justement l'élaboration de couches magnétiques avec des anisotropies magnétocristallines bien définies, à la fois en intensité et en direction [Fullerton\_JMMM200\_1999].

Si la première partie de ce chapitre est consacrée aux propriétés magnétiques de nos JTM, il est principalement axé sur l'étude d'un couplage particulier entre deux couches ferromagnétiques : le couplage par effet tunnel polarisé en spin, prédit dès 1989 mais dont la première mise en évidence expérimentale ne fut effectuée qu'au cours de cette thèse grâce au système Fe/MgO/Fe. Nous confronterons nos résultats expérimentaux avec les prédictions théoriques de Slonczewski et de Bruno avant d'expliquer ce couplage grâce aux états de résonance interfaciale, dans une optique plus adéquate et spécifique à l'épitaxie de notre structure.

Enfin, nous détaillerons l'utilisation de ce couplage pour la création de systèmes antiferromagnétiques artificiels dont la réponse magnétique sera parallèlement étudiée par l'utilisation du transport tunnel comme sonde du magnétisme.

Les diverses mesures magnétiques ont été effectuées par SQUID<sup>22</sup>, AGFM<sup>23</sup> ou VSM<sup>24</sup>. Le lecteur pourra trouver toutes les informations relatives au principe de fonctionnement de ces appareils dans la référence suivante : [duTrémoletdeLacheisserie\_1999].

---

<sup>22</sup> Superconducting QUantum Interference Device.

<sup>23</sup> Alternating Gradient Field Magnetometer.

<sup>24</sup> Vibrating Sample Magnetometer.

## **III.1 Propriétés magnétiques des JTM**

L'accès aux configurations magnétiques extrêmes (P et AP) dans une architecture douce-dure peut être obtenu par différents moyens. La technique la plus utilisée consiste à déposer un matériau antiferromagnétique dont le champ d'échange avec le métal ferromagnétique va bloquer le renversement de l'aimantation de l'une des couches [Cowache\_IEEE34\_1998]. On peut également utiliser ce qui est communément appelé un matériau antiferromagnétique artificiel (AAF) au sein duquel un couplage de type RKKY (Rudderman-Kittel-Kasuya-Yosida) assure une configuration antiparallèle des aimantations et augmente le champ coercitif de l'une d'entre elles [vandenBerg\_JMMM165\_1997]. Une troisième solution possible serait de modifier les champs coercitifs en jouant sur la nature des matériaux (ceci est a priori impossible puisque l'étude du transport polarisé en spin dans notre système Fe/MgO/Fe impose deux électrodes magnétiques nécessairement identiques) ou sur les épaisseurs des couches (mais le champ coercitif varie faiblement dans cette gamme d'épaisseur). Nous avons choisi de durcir la deuxième électrode de Fe par le dépôt d'un matériau ayant un champ coercitif plus élevé, constituant ainsi une bicouche dont le comportement magnétique a été grossièrement prédit par les modèles théoriques avant d'être étudié expérimentalement. La solution retenue a été l'épitaxie d'une épaisse couche de Co sur l'électrode supérieure de Fe. L'exploitation de l'anisotropie magnétocristalline via l'épitaxie de ces couches a permis de conserver l'axe facile de la bicouche parallèle à l'axe facile du Fe, un aspect capital dans le fonctionnement des JTM.

### **III.1.1 Magnétisme de la couche de Fe simple**

Comme il a été vu au chapitre II, le Fe a une structure cristalline cubique centrée et par conséquent, ses propriétés magnétiques dépendent de son orientation cristalline : c'est la définition de l'anisotropie magnétocristalline. Ainsi, son axe de facile aimantation est [100] (ou [010]) et comme nous ne nous intéresserons toujours qu'à l'aimantation dans le plan (100), l'axe [110] (ou [-110]) est difficile<sup>25</sup>. De plus, par mesure de simplicité, nous désignerons toujours ces axes par [100] ou [110]. La figure III-1 présente les cycles d'aimantation caractéristiques pour une couche de 500Å de Fe suivant ces axes. On a des retournements carrés et bien définis suivant [100]<sub>Fe</sub> et des retournements caractéristiques d'un axe défavorable suivant [110]<sub>Fe</sub>, avec un champ de saturation suivant l'axe difficile de l'ordre de 600Oe. Pour tous les échantillons que nous avons réalisés, les épaisseurs des couches simples de Fe varient entre 10Å et 1000Å et possèdent suivant l'axe facile des champs coercitifs très faibles à température ambiante (40Oe maximum). Bien évidemment, à faible température l'agitation magnétique diminue, la constante d'anisotropie

et les champs coercitifs sont fortement augmentés (de 10Oe (300K) à 15Oe (5K) suivant l'axe facile).

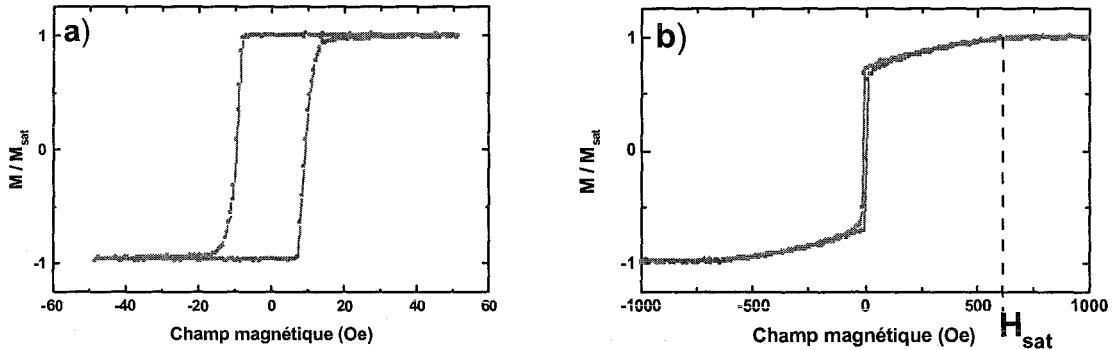


figure III-1

Cycle d'aimantation pour une couche de Fe (500Å) :

- a) suivant l'axe facile  $[100]_{Fe}$
- b) suivant l'axe difficile  $[110]_{Fe}$ .

Compte tenu de la croissance épitaxiale et de la structure cc du Fe, cette couche présente une anisotropie magnétocristalline d'ordre 4, notée  $K_{Fe}$ . Les mesures réalisées suivant l'axe difficile permettent de déduire la valeur de la constante d'anisotropie à partir de la valeur du champ de saturation :

$$K_{Fe} = \frac{M_{Fe} H_{sat}}{2} \quad (III-1)$$

où  $M_{Fe}$  est l'aimantation du Fe ( $M_{Fe}=1714\text{emu.cm}^{-3}$ ).

Pour une couche de 500Å (figure III-1b) nous obtenons ainsi  $K_{Fe}=5.1 \times 10^5 \text{erg.cm}^{-3}$ , en accord avec les données bibliographiques [duTrémoletdeLacheisserie\_1999]. Cependant, nous verrons au paragraphe III.3.5 que les deux axes faciles ne sont pas magnétiquement équivalents puisque leurs constantes d'anisotropie sont légèrement différentes.

En réalité, les constantes d'anisotropie dans le plan dépendent des épaisseurs des couches suivant

la loi  $K_{Fe} = M_{Fe} \left[ 275 - \frac{1250}{d_{Fe}} \right]$  (unités CGS et  $\text{Å}$ , épaisseur de Fe, exprimée en nombre de

monocouche) [Heinrich\_JAP70\_1991]. L'effet est donc important lorsque les épaisseurs de Fe sont inférieures à 100 plans atomiques (soit 140Å). Dans le cas limite où seuls quelques plans atomiques de Fe sont déposés, alors il n'y a pas d'anisotropie dans le plan mais une anisotropie uniaxiale perpendiculaire [Heinrich\_PRL59\_1987].

<sup>25</sup> Dans le volume, [111] est l'axe difficile et [110] est un axe intermédiaire [Kittel\_1985].

### III.1.2 Bicouche magnétique dure Fe/Co

Le dépôt d'une couche de Co sur la deuxième couche de Fe permet de durcir cette dernière, c'est-à-dire d'augmenter son champ de retournement. Cependant, il est important de conserver l'axe facile de la bicouche dure parallèle à celui du Fe seul, afin d'accéder aux configurations magnétiques extrêmes et ainsi d'obtenir le maximum de magnétorésistance. L'étude présentée au chapitre II a permis de déterminer la relation d'épitaxie entre les deux métaux :  $\text{Co}(11-20)[0001]/\text{Fe}(001)[110]$  et  $\text{Co}(11-20)[0001]/\text{Fe}(001)[1-10]$  : le Co épitaxié sur le Fe a une structure hcp, présentant un double domaine. Pour le Co hcp, tous les axes du plan de base hexagonal sont difficiles et son axe de facile aimantation est  $[0001]_{\text{Co}}$  parallèle à  $[110]_{\text{Fe}}$  ou  $[1-10]_{\text{Fe}}$  [Kittel\_1985]. La question était alors de savoir quel allait être l'axe facile de la bicouche Fe/Co. De plus, elle doit se comporter comme un monobloc magnétique rigide, ce qui impose une limitation dans la gamme des épaisseurs la constituant.

Dans ce qui suit,  $d_{\text{Fe}}$  et  $d_{\text{Co}}$  représentent les épaisseurs des couches de Fe et de Co,  $M_{\text{Fe}}=1714\text{erg/cm}^3$  et  $M_{\text{Co}}=1422\text{erg/cm}^3$  leurs aimantations par unité de volume,  $K_{\text{Fe}}=4.8 \times 10^5\text{erg/cm}^3$  et  $K_{\text{Co}}=4.5 \times 10^6\text{erg/cm}^3$  leurs constantes d'anisotropie.

#### III.1.2.1 Le paramètre critique : $\delta_{\text{Fe}}^{\text{critique}}$

Considérons une bicouche  $\text{Fe}(d_{\text{Fe}})/\text{Co}(d_{\text{Co}})$ . Afin d'appliquer les modèles simples décrivant les mécanismes de renversement d'aimantation à la bicouche Fe/Co, nous supposons dans un premier temps que les axes faciles du Fe et du Co sont identiques.

L'interaction d'échange de type ferromagnétique au niveau de l'interface entre ces couches rend leurs aimantations interfaciales respectives solidaires, c'est-à-dire que la rotation de l'une entraîne celle de l'autre. De tels systèmes bicouches ont été largement étudiés [Fullerton\_JMMM200\_1999]. De nombreuses approches théoriques ont prédit le comportement magnétique du système dans son ensemble (champ coercitif, aimantation rémanente, orientation magnétique) en fonction des fractions relatives, des anisotropies et des aimantations de chacun des constituants [Skomski\_PRB48\_1993 ; Fischer\_PRB57\_1998 ; Sabiryanov\_PRB58\_1998]. L'origine du couplage d'échange utilisé pour durcir la couche étant interfaciale, le paramètre le plus important ressortant de toutes ces modélisations est l'épaisseur de la couche douce,  $d_{\text{e}}$ . En effet, en dessous d'une épaisseur critique  $\delta_{\text{Fe}}^{\text{critique}}$ , l'intégralité de la couche douce (Fe) est magnétiquement couplée à la couche dure (Co) et les deux phases magnétiques se retournent pour le même champ de nucléation. En revanche, au delà de cette épaisseur limite, la couche douce se renverse à des champs plus faibles que le champ coercitif de la phase dure et le cycle d'hystérésis n'est plus rectangulaire. Grossièrement, cette épaisseur critique est le double de la largeur d'une paroi  $\delta_{\text{Co}}$  dans la phase dure [Fullerton\_JMMM200\_1999], soit :

$$\delta_{Fe}^{critique} = 2\delta_{Co} = 2\sqrt{\frac{A_{Co}}{K_{Co}}} \quad (III-2)$$

avec  $A_{Co}$  et  $K_{Co}$  les constantes d'échange et d'anisotropie de la couche dure. Ainsi, d'après les données du Co hcp ( $A_{Co} = 1.3 \times 10^6 \text{ erg/cm}$  ;  $K_{Co} = 4.5 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ ) nous obtenons  $\delta_{Fe}^{critique} < 100 \text{ \AA}$ .

Cette dimension caractéristique détermine le comportement du système bicouche.

### III.1.2.2 Pour une épaisseur de Fe inférieure à $\delta_{Fe}^{critique}$

Dans ce régime d'épaisseur, le système se comporte comme un monobloc rigide caractérisé par les propriétés magnétiques moyennées sur les deux couches. Le champ coercitif est alors donné par [Fullerton\_JMMM200\_1999] :

$$H_c = \frac{2(d_{Co}K_{Co} + d_{Fe}K_{Fe})}{(d_{Co}M_{Co} + d_{Fe}M_{Fe})} \quad (III-3)$$

D'après ses hypothèses, ce modèle ne s'applique pas à notre dispositif (l'axe facile du Co n'est pas parallèle à celui du Fe) ; il est inexact en terme de valeur quantitative. Cependant plusieurs conclusions sont valables, comme cela est illustré à la figure III-2 qui montre les cycles d'hystérésis d'un échantillon MgO(100)/Fe(500Å)/MgO(10Å)/Fe(50Å)/Co(550Å)/Pd(100Å) suivant les axes facile et difficile du Fe. Tout d'abord, on constate que la bicouche Fe/Co présente un champ coercitif nettement augmenté par rapport à celui de la couche de Fe seule. De plus, lorsque le champ est appliqué suivant la direction  $[100]_{Fe}$ , le renversement de cette bicouche est abrupt, preuve que l'axe facile du monobloc est effectivement identique à celui de la couche de Fe seule (figure III-3). En effet, d'après les valeurs des constantes d'anisotropie ( $K_{Fe} < K_{Co}$ ), la nucléation initiale se produit dans le Fe et se propage ensuite dans le Co, entraînant un renversement rapide.

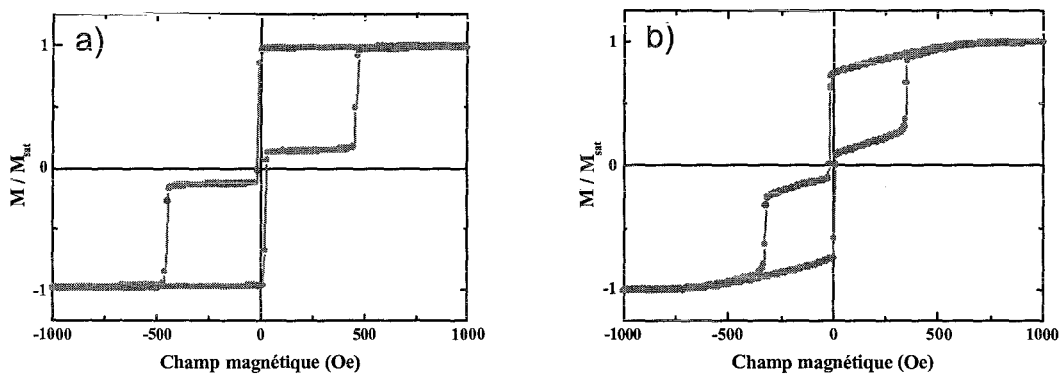


figure III-2

Cycle d'aimantation pour un échantillon MgO(100)/Fe(500Å)/MgO(10Å)/Fe(50Å)/Co(550Å)/Pd(100Å) :

- a) suivant l'axe facile  $[100]_{Fe}$
- b) suivant l'axe difficile  $[110]_{Fe}$ .

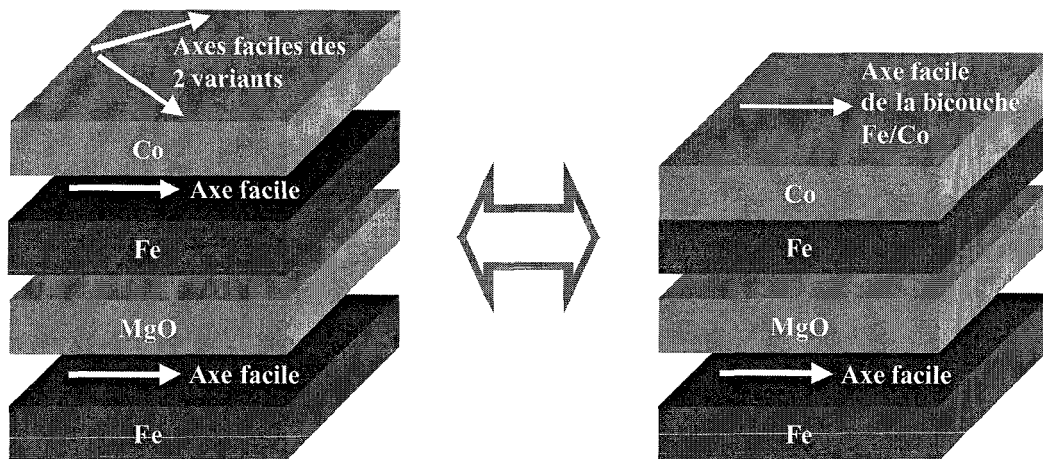


figure III-3

Schéma magnétique équivalent des axes faciles de chaque couche prise séparément et du système final complet.

Pour un champ magnétique appliqué suivant la direction  $[110]_{Fe}$  (figure III-2b), le renversement de la couche dure se fait de manière progressive et la saturation n'est obtenue qu'à fort champ (typiquement 5kOe), ce qui correspond au comportement attendu suivant un axe de difficile aimantation.

### III.1.2.3 Pour une épaisseur de Fe supérieure à $\delta_{Fe}^{critique}$

Si, pour  $d_{Co}$  fixée, on augmente la quantité de matériau doux, i.e. si  $d_{Fe}$  augmente, alors on s'attend à percevoir une baisse du champ coercitif de l'ensemble ; effectivement, l'équation (III-3) montre que pour  $d_{Fe} \gg d_{Co}$ , on obtient le champ coercitif de la couche douce seule. Ceci traduit le fait que le champ d'échange diminue lorsque  $d_{Fe}$  augmente. Ainsi, la nucléation dans le Fe se produit pour un champ nettement inférieur à celui de la couche de Co. Les mécanismes de renversement d'une couche douce couplée ferromagnétiquement avec une couche dure ont été étudiés dès les années 1960 par Goto et al. [Goto\_JAP36\_1965]. En supposant que la couche dure est parfaitement rigide et que  $K_{Fe}=0$ , on obtient la valeur du champ de nucléation dans la couche douce :

$$H_{nucl} = \frac{A_{Fe}}{2M_{Fe}t_{Fe}^2} \quad (A_{Fe} \text{ représente la constante d'échange dans la couche douce}). \text{ Lorsque}$$

le champ magnétique dépasse cette valeur (en absolu), il y a compétition entre l'énergie de Zeeman, qui tend à aligner les moments magnétiques de la couche douce dans le sens du champ, et le couplage d'échange à l'interface {ferromagnétique dur / ferromagnétique doux} qui maintient le moment interfacial de la couche douce aligné avec l'aimantation de la couche dure. Le résultat est illustré à la figure III-4 : dans la couche douce, les spins présentent une rotation continue dont l'angle de rotation augmente à mesure que l'on s'éloigne de la couche dure, à l'image d'une paroi de Bloch. Ce comportement est connu sous le nom de *exchange-spring magnet*, par analogie avec un ressort (*spring* en anglais) ; il sera mis en évidence au chapitre V au moyen du transport tunnel utilisé comme sonde du magnétisme.

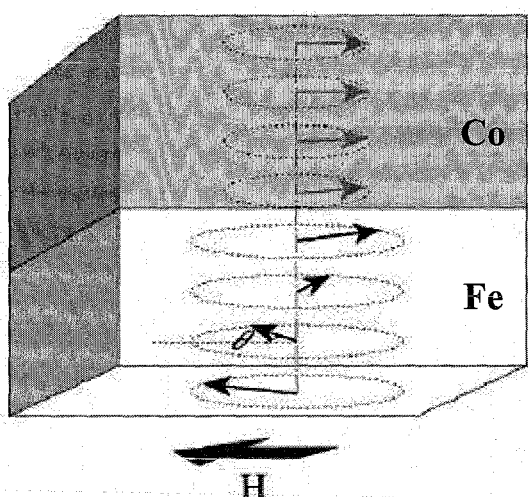


figure III-4

Illustration du comportement magnétique de la bicouche lorsque l'épaisseur de Fe devient trop importante : son aimantation tourne de plan en plan pour s'aligner avec le champ [Fullerton\_JMMM200\_1999].

Cependant, étant donné les deux variants de Co, le comportement magnétique de notre système dans ce régime de *spring magnet* est plus compliqué que celui de la figure III-4 car les axes faciles des deux domaines sont à 45° par rapport aux axes faciles du Fe.

### III.1.3 Conclusion

La maîtrise de l'anisotropie magnétocristalline via l'épitaxie nous a permis d'élaborer des multicouches présentant les propriétés magnétiques satisfaisantes : les deux couches magnétiques ont le même axe facile et, pour un champ appliqué suivant ce dernier, les renversements des aimantations sont abrupts, bien définis et se produisent pour deux champs coercitifs nettement différents, donnant naissance à une large fenêtre de champ dans laquelle on peut aisément modifier la configuration magnétique du système, l'un des critères essentiels des JTM.

## III.2 Couplage par effet tunnel polarisé en spin

Les résultats magnétiques présentés jusqu'ici concernent des échantillons dont l'épaisseur de la couche de MgO est supérieure à 8Å, régime dans lequel les deux couches magnétiques inférieure (Fe) et supérieure (Fe/Co) sont découplées du point de vue des interactions magnétiques. Cependant, pour des épaisseurs plus faibles, nous observons que le retournement de la couche douce de Fe se produit en champ positif. Nous avons associé ceci à un couplage de type antiferromagnétique entre les deux couches magnétiques [Faure-Vincent\_PRL89\_2002].

### III.2.1 Mise en évidence expérimentale

L'épitaxie des hétérostructures Fe/MgO/Fe a été détaillée au chapitre II. Brièvement, les conditions de croissance de nos échantillons sont les suivantes : la première électrode de Fe est déposée puis recuite à 450°C de manière à l'aplanir. Lors de dépôt de la couche de MgO, les oscillations RHEED permettent d'une part d'affirmer que la croissance de l'oxyde est bidimensionnelle et donc que cette couche isolante est plane pour les épaisseurs de MgO de nos échantillons, entre 5 et 17Å, et d'autre part, de connaître précisément l'épaisseur de l'isolant. La continuité de la barrière tunnel de MgO a été confirmée par MET à l'échelle locale pour des épaisseurs descendant jusqu'à 5Å. La couche magnétique dure, épitaxiée sur la barrière isolante, est constituée de 35Å de Fe et de 500Å de Co. Enfin, les échantillons sont protégés par une couche de 100Å de Pd.

#### III.2.1.1 Cycles M(H) avec décalage du cycle mineur

La figure III-5 présente les cycles d'aimantation et les cycles mineurs pour des échantillons MgO(100) // Fe( $d_{Fe}$ ) / MgO ( $d_{MgO}$ ) / Fe (35Å) / Co (500Å) / Pd (100Å). Si l'on observe toujours les deux sauts correspondant aux retournements des couches douce et dure, il est remarquable que le retournement de la couche douce ait lieu en champ positif. Ceci est la signature d'une interaction magnétique entre les couches qui favorise la configuration antiparallèle des aimantations en champ positif, et donc en compétition avec le couplage Zeeman.

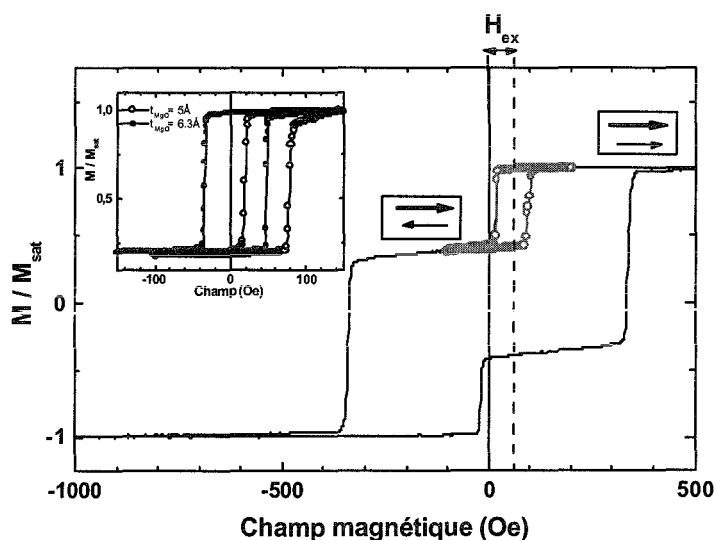


figure III-5

Courbe d'aimantation suivant l'axe facile pour un échantillon MgO//Fe/MgO(5Å)/Fe/Co. Le cycle mineur est mesuré après saturation de tout le système et dans une fenêtre de champ où la bicouche dure Fe/Co est magnétiquement rigide. Dans cet échantillon, un décalage de 58Oe du cycle mineur est la signature d'un fort couplage AF. En insert : la variation rapide de l'intensité du couplage avec l'épaisseur de l'isolant est reflétée par les deux cycles mineurs, avec  $d_{Fe}=320\text{Å}$ .



L'intensité du couplage magnétique entre les couches, notée  $J$ , a été déduite du décalage du cycle d'hystérésis mineur de la couche douce, noté  $H_{ex}$  (figure III-5). En effet, dans le cas d'une interaction de surface,

$$J = H_{ex} \times d_{Fe} \times M_{Fe} \quad (\text{III-4})$$

L'insert de la figure III-5 montre clairement que, pour une épaisseur de la couche douce de Fe fixée, l'amplitude de  $H_{ex}$  diminue rapidement lorsque l'épaisseur de MgO augmente : alors qu'elle vaut  $-47\text{Oe}$  pour une épaisseur de  $5\text{\AA}$ , elle n'est plus que de  $-7\text{Oe}$  pour  $6.3\text{\AA}$  d'isolant, à  $d_{Fe}=320\text{\AA}$  fixée. Ainsi, pour des épaisseurs de MgO inférieures à  $8\text{\AA}$ , nous observons un net décalage du cycle mineur vers les champs positifs ; au delà nous observons un décalage quasi nul et positif, qui est associé au champ de Néel (annexe C).

Pour des épaisseurs de MgO inférieures à  $5\text{\AA}$ , nous observons une modification significative de la forme du cycle mineur. La forme arrondie du cycle mineur et le retournement de la couche douce en deux étapes indiquent un couplage biquadratique (figure III-6). Nous l'attribuons à la compétition entre le couplage d'échange antiferromagnétique et un couplage ferromagnétique direct de type « trou d'épingle » ou *pinhole* apparaissant pour de très faibles épaisseurs de MgO, lorsque la barrière n'est plus continue.

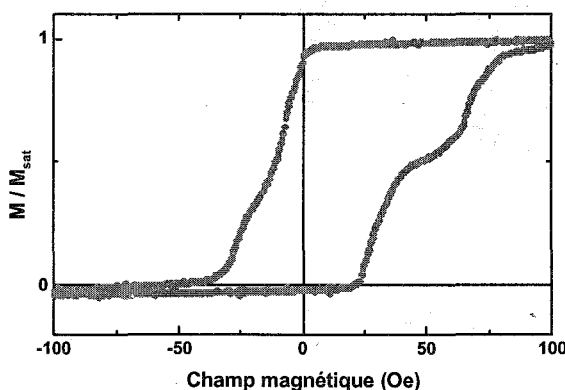


figure III-6

Cycle mineur d'un échantillon avec  $d_{MgO}=4.5\text{\AA}$ . Le retournement en deux étapes témoigne d'un couplage biquadratique résultant de la compétition entre le couplage AF et le couplage F par *pinholes*.

Bien que nous ne puissions pas exclure la présence de *pinholes* ferromagnétiques sur les grandes tailles des échantillons mesurés (plusieurs  $\text{mm}^2$ ), nous tenons à préciser que pour des épaisseurs de MgO plus importantes, le retournement du cycle mineur est carré. Par conséquent, nous pouvons raisonnablement affirmer que dans ce cas, la contribution ferromagnétique des *pinholes* est nettement plus faible que l'interaction d'échange AF.

### III.2.1.2 Evolution de J en fonction de $d_{\text{MgO}}$

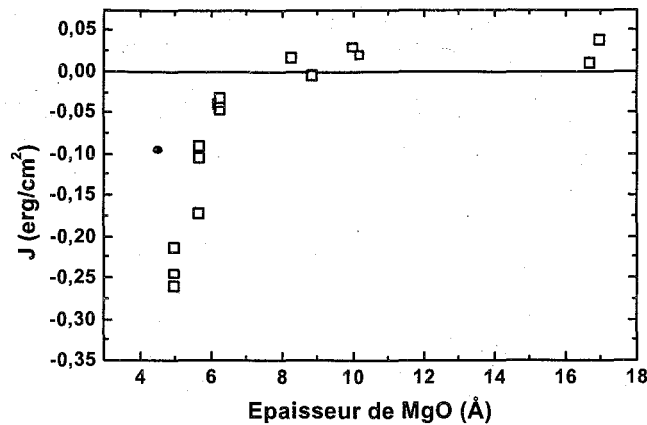


figure III-7

Variation du couplage J en fonction de l'épaisseur de l'isolant.

La figure III-7 représente la variation du couplage, J, en fonction de l'épaisseur de l'isolant. Trois régimes sont clairement visibles :

- pour des épaisseurs de MgO supérieures à 10Å, nous observons un couplage ferromagnétique faible qui est attribué à l'effet « peau d'orange ». Compte tenu des caractéristiques des rugosités interfaciales Fe/MgO fournies par MET, le couplage « peau d'orange » ou de Néel est globalement constant pour nos échantillons, et il est faible, i.e. égal à 0.02erg/cm<sup>2</sup>. Le lecteur trouvera en annexe C les calculs et mesures permettant d'estimer à partir des images TEM le couplage de Néel correspondant. Il est remarquable que cette valeur extraite des clichés de diffraction électronique corresponde à la valeur moyenne de l'intensité du couplage pour  $d_{\text{MgO}} > 10\text{Å}$  déduite cette fois des mesures magnétiques.
- Lorsque l'épaisseur d'isolant diminue de 8 à 5Å, l'amplitude du couplage AF ( $J < 0$ ) augmente rapidement. Nous verrons par la suite que ce phénomène est décrit par plusieurs modèles théoriques.
- Enfin, en dessous de 5Å, nous observons une modification significative de la forme du cycle mineur et une décroissance de l'intensité du couplage. Ceci s'explique par la compétition entre le couplage d'échange antiferromagnétique intrinsèque, dont l'amplitude devrait être très importante d'après la tendance dégagée entre 8 et 5Å, et un couplage ferromagnétique de type *pinhole* apparaissant pour de si faibles épaisseurs de MgO. Ceci se traduit par la mesure expérimentale symbolisée par le point • sur la figure III-7.

### III.2.1.3 Evolution de $H_{\text{ex}}$ en fonction de $t_{\text{Fe}}$

Dans le cas d'une interaction de surface, le champ d'échange suit la loi  $H_{\text{ex}} = \frac{J}{M_{\text{Fe}}} \times \frac{1}{d_{\text{Fe}}}$  (voir équation (III-4)). Un système de masques *in situ* a permis la réalisation d'un dépôt de Fe en deux

### III.2.1.4 Analyse des origines possibles du couplage

Il convient de s'intéresser aux différents mécanismes de couplage dans une JTM afin de voir si l'un d'entre eux pourrait être responsable du retournement en champ positif de la couche douce.

Le couplage le plus simple à envisager est le couplage direct entre les couches métalliques via les points de discontinuité de l'isolant. Mais il s'agit d'un couplage ferromagnétique favorisant un retournement simultané des aimantations.

Nous devons ensuite considérer les différents couplages magnétostatiques. Le premier est le couplage induit par la rugosité des couches magnétiques. Prenons le cas simple d'un profil sinusoïdal de la rugosité. L'accumulation de charges magnétiques conduit à la création d'un champ dipolaire magnétique entre les couches. Si les rugosités des interfaces inférieure et supérieure sont en phase, alors il y a création d'un champ ferromagnétique dit de Néel ou «peau d'orange» [Néel\_CRAS255\_1962 ; Schrag\_APL77\_2000]. Si les rugosités sont en antiphase, alors il apparaît un couplage biquadratique favorisant un positionnement des aimantations à 90° l'une par rapport à l'autre [Demokritov\_PRB49\_1994]. Ainsi, aucun couplage lié à la topologie des interfaces ne permet d'expliquer la favorable configuration AF des aimantations.

Nous pouvons également citer les différents couplages liés aux champs de dispersion associés aux inhomogénéités magnétiques dans les films minces. Ainsi, Thomas et al. ont mis en évidence un couplage induit par les parois de domaine qui apparaissent dans la couche douce lors des répétitions successives des cycles d'hystérésis aller-retour [Thomas\_PRL84\_2000] ; dans nos échantillons, le renversement de la couche douce est observé dès le premier cycle magnétique après une saturation à fort champ magnétique nous assurant que les couches sont constituées de monodomains magnétiques. Récemment, une nouvelle notion est apparue : celle de rugosité magnétique [Tiusan\_EPJB26\_2002]. Ce phénomène a été observé dans le cadre de systèmes polycristallins. Les fluctuations locales d'anisotropie dans la couche magnétique dure sont responsables d'accumulations de charges magnétiques, à l'image de la rugosité des interfaces du modèle de Néel. Cependant, dans notre système, l'anisotropie magnétocristalline force les aimantations à rester suivant des directions bien définies si bien que cette hypothèse basée sur la topologie magnétique est à rejeter.

Une interaction AF pourrait également être attribuée à un champ d'échange associé à une couche d'oxyde antiferromagnétique/ferrimagnétique à l'interface entre la couche inférieure de Fe et la barrière tunnel en MgO. Cette hypothèse d'un *exchange biasing* correspondrait à un couplage plutôt indépendant de l'épaisseur de la barrière isolante de MgO alors que nous observons une forte dépendance de l'intensité de couplage  $J$  en fonction de  $d_{\text{MgO}}$ . De plus, ce décalage devrait être présent même en l'absence d'une couche magnétique supérieure : nous avons alors réalisé des

échantillons simplifiés du type MgO(100)//Fe/MgO dans lesquels nous avons volontairement exclu la couche magnétique supérieure. Nous n'observons aucun déplacement du cycle d'aimantation sur ces échantillons. Cela signifie que le décalage éventuel est dans la limite de détection des appareils utilisés (10e pour le SQUID et moins pour l'AGFM) alors que des champs d'échange allant jusqu'à 1330e ont été observés pour une épaisseur de 5Å de MgO. Cette étude nous a permis de rejeter l'hypothèse d'un champ d'échange AF dû à la présence éventuelle d'un oxyde de Fe. Le décalage des cycles mineurs peut être attribué uniquement à des effets de couplage entre les couches.

Enfin, la taille et le rapport d'aspect des échantillons sur lesquels les mesures magnétiques ont été réalisées (typiquement  $2 \times 2 \text{ mm}^2$ ) nous autorise à exclure l'éventualité d'un couplage AF lié à la fermeture latérale des lignes de champ de dispersion entre les couches magnétiques.

Ainsi, aucun des mécanismes de couplage ayant été mis en évidence expérimentalement jusqu'à présent ne permet d'expliquer ce fort couplage AF observé. La dernière explication possible repose sur un couplage d'échange entre les couches par effet tunnel.

### III.2.2 Introduction au couplage d'échange par effet tunnel

Pour expliquer de manière intuitive le couplage par effet tunnel, considérons d'abord la situation simple d'ions magnétiques isolés dans une matrice métallique non magnétique. Le gaz des électrons de conduction est aimanté au voisinage des impuretés magnétiques. Cette aimantation locale provoque une interaction d'échange indirecte entre les ions magnétiques par l'intermédiaire des électrons de conduction. Il s'agit de l'interaction RKKY (Ruderman et Kittel, [Ruderman\_PR96\_1954]; Kasuya, [Kasuya\_PTP16\_1956] ; Yosida, [Yosida\_PR106\_1957]). Ensuite, dans le cas de deux films ferromagnétiques séparés entre eux par une fine couche métallique non magnétique, une interaction de type RKKY se produit toujours via les électrons de conduction mais à travers toute la couche séparatrice supposée continue. Un tel couplage a été observé la première fois dans le système Fe/Cr/Fe par Grünberg et ses collaborateurs en 1986 [Grünberg\_PRL57\_1986]. Depuis, d'autres systèmes ont été étudiés ; nous pouvons notamment citer les travaux de Parkin et al. sur les métaux ferromagnétiques Fe, Co, Ni séparés par divers métaux de transition (Ru, Cr, V, Nb, Ta, Rh, Ir, Cu, Re, W, Mo) [Parkin\_PRL64\_1990 ; Parkin\_PRL67\_1991].

Dans le cas de couches séparatrices métalliques, le couplage d'échange en fonction de l'épaisseur de la couche séparatrice (notée  $d$ ) oscille entre des valeurs positives et négatives et avec une décroissance de la forme  $\frac{\cos(\alpha kd)}{d^2}$  (figure III-10). Le phénomène oscillatoire peut se comprendre

par le caractère ondulatoire des électrons de conduction qui assurent la transmission de l'information magnétique entre les couches.

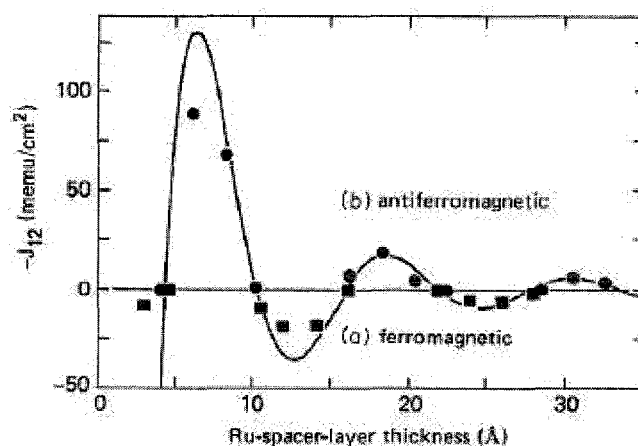


figure III-10

Intensité du couplage d'échange,  $J_{12}$ , entre deux couches de  $Ni_{80}Co_{20}$  à travers une couche de Ru. La ligne correspond à une simulation des données avec une formule de type RKKY [Parkin\_PRB44\_1991].

Expérimentalement, un couplage magnétique à travers une couche séparatrice non métallique n'a été observé que pour le système Fe/Si/Fe [Toscano\_JMMM114\_1992 ; Fullerton\_JMMM117\_1992 ; Gareev\_JMMM240\_2002]. Dans ces échantillons, pour lesquels des couplages bilinéaire et biquadratique sont observés, l'analyse des résultats contradictoires est relativement complexe. De plus, dans le cas de ce séparateur de nature semi-conductrice, les électrons peuvent être activés thermiquement ou optiquement dans le Si et véhiculer l'information de spin entre les deux couches ferromagnétiques. Il est alors difficile de conclure quant à la nature de ce couplage.

Si l'on considère maintenant une très fine couche séparatrice isolante et non magnétique, l'interaction entre les deux couches ferromagnétiques peut se faire cette fois, non plus via les électrons de conduction, mais au moyen des électrons qui passent par effet tunnel à travers la barrière isolante. Dans ce cas, les électrons porteurs de l'interaction magnétique n'ont plus de caractère oscillatoire : parce que ce sont des électrons tunnel décrits par une fonction d'onde évanescente, on doit leur associer un vecteur d'onde complexe  $\kappa (=ik)$  et le taux de décroissance dans la barrière est proportionnel à  $\exp(-2kd)$ . Ainsi, par analogie avec les oscillations RKKY,

la variation de l'intensité du couplage ne suit plus une loi en  $\frac{\cos(\alpha kd)}{d^2}$  mais a un comportement<sup>26</sup>

de type  $\frac{e^{\alpha kd}}{d^2}$  ; on s'attend donc à une variation extrêmement rapide de l'intensité de ce couplage

<sup>26</sup> La justification est la suivante : si  $\kappa$  est complexe, alors  $\cos(\alpha kd)$  devient une somme d'exponentielles réelles, ce qui est bien de la forme indiquée.

avec l'épaisseur d'isolant. Cette approche est vraiment grossière mais elle a le mérite d'expliquer simplement le comportement prédit par les modèles théoriques que nous examinons maintenant.

### III.2.3 Confrontation avec les modèles théoriques

Divers modèles théoriques ont été développés pour expliquer le couplage d'échange entre deux couches ferromagnétiques séparées par un isolant. Dans le modèle de Slonczewski, le couplage est associé au couple produit par la rotation de l'aimantation d'une couche ferromagnétique par rapport à l'autre et est décrit en terme de probabilité de courant de renversement de spin (*spin flip*) [Slonczewski\_PRB39\_1989]. Dans le modèle d'interférence quantique de Bruno, ce couplage s'explique en termes d'interférences créées par des probabilités de réflexion aux interfaces de l'isolant différentes suivant chaque spin [Bruno\_PRB49\_1994]. Nous commencerons par décrire ces deux modèles qui présentent l'avantage d'être physiquement parlant. Cependant, ils ne tiennent pas compte des spécificités des phénomènes électroniques dans les systèmes épitaxiés. En particulier, il faut prendre en considération les états de résonance interfaciale qui seront décrits aux chapitres IV et V. Ces états augmentent fortement la conductance des électrons minoritaires et pourraient expliquer le couplage AF observé. Cette explication est de loin la plus élégante.

#### III.2.3.1 Modèle de Slonczewski

En 1989, la théorie développée par Slonczewski sur la conductance tunnel et le couplage d'échange entre deux couches ferromagnétiques séparées par une barrière isolante explique tout d'abord l'effet «vanne de spin», c'est-à-dire la dépendance de la conductance tunnel en fonction de l'angle  $\theta$  entre les moments des couches ferromagnétiques. Le second effet décrit est un couplage d'échange interfacial du type  $-J \cos\theta$  entre les couches ferromagnétiques [Slonczewski\_PRB39\_1989].

##### III.2.3.1.1 Hypothèses du modèle

L'approche de Slonczewski est basée sur le modèle des électrons libres et analyse la transmission des courants de charge et de spin à travers une barrière tunnel de profil de potentiel rectangulaire séparant deux couches ferromagnétiques semi infinies. Pour un électron se déplaçant suivant la direction  $\xi$  perpendiculaire aux plans des couches, on peut définir l'Hamiltonien à un électron suivant :

$$H_{\xi} = -\frac{1}{2} \left( \frac{d}{d\xi} \right)^2 + U(\xi) - \vec{h}(\xi) \cdot \vec{\sigma} \quad (\text{III-5})$$

Le système d'unité choisi est tel que  $\hbar^2/m = 1$ ,  $\hbar$  étant la constante réduite de Planck et  $m$  la masse d'un électron. Cette équation comprend les termes correspondant à l'énergie cinétique  $-\frac{1}{2}\left(\frac{d}{d\xi}\right)^2$ , l'énergie potentielle  $U(\xi)$  et, en notant  $\vec{h}(\xi)$  le champ moléculaire et  $\vec{\sigma} (= 2\vec{s})$  l'opérateur de Pauli, le terme  $-\vec{h}(\xi)\cdot\vec{\sigma}$  qui exprime l'interaction des électrons avec le champ moléculaire interne dans les couches ferromagnétiques.

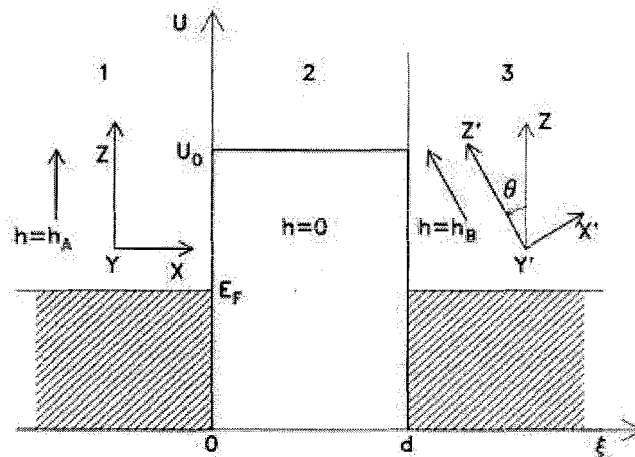


figure III-11

Représentation schématique du potentiel énergétique du système. Les champs moléculaires  $h_A(t)$  et  $h_B(t)$  forment un angle  $\theta$ . A  $t=0$ , ils sont parallèles aux axes  $Z$  et  $Z'$ . [Slonczewski\_PRB39\_1989].

La figure III-11 illustre les hypothèses du modèle : Slonczewski considère une barrière de profil rectangulaire de hauteur  $U_0$  par rapport au niveau de Fermi et de largeur  $d$  à l'intérieur de laquelle le champ moléculaire est nul ( $h(\xi) = 0$  pour  $0 < \xi < d$ ). De plus, il prend en compte deux électrodes A et B ayant les mêmes propriétés mais dont les champs moléculaires, i.e. les aimantations, correspondent aux axes de quantification du spin et forment un angle  $\theta$  :  $\vec{h}_A \cdot \vec{h}_B = h_0^2 \cos\theta$ .

Dans les électrodes, l'énergie d'un électron est  $E_\xi = \frac{1}{2}k_\sigma^2 - \sigma h_0$ ,  $\sigma = \pm 1$  où  $k_\sigma$  est le vecteur d'onde de l'électron. Dans la barrière, l'énergie vaut  $E_\xi = \frac{1}{2}K^2 + U_0$ ,  $\sigma = \pm 1$  où  $K$  est le vecteur d'onde imaginaire dans la barrière.

Notons  $\vec{S}_A$  et  $\vec{S}_B$  les moments totaux de spin par unité d'aire. A partir de la résolution de l'équation de Schrödinger avec des ondes stationnaires, Slonczewski calcule la densité de courant de spin  $\vec{I}_S = \frac{d\vec{S}_B}{dt} = -\frac{d\vec{S}_A}{dt}$  à l'instant  $t=0$ . Les systèmes de coordonnées  $\{x,y,z\}$  et  $\{x',y',z'\}$

sont considérés comme fixes et par conséquent seulement valables pour des temps proches de  $t=0$ , puisque  $\vec{h}_A$  et  $\vec{h}_B$  dépendent du temps.

Pour une onde plane incidente de spin  $\uparrow$  dans la région 1 définie comme étant une électrode ferromagnétique ( $\xi \leq 0$ , voir la figure III-11), la solution de l'équation de Schrödinger a pour composantes :

$$\psi_{\uparrow 1} = k_{\uparrow}^{-1/2} e^{ik_{\uparrow}\xi} + R_{\uparrow} e^{-ik_{\uparrow}\xi} \text{ et } \psi_{\downarrow 1} = R_{\downarrow} e^{-ik_{\downarrow}\xi}. \quad (\text{III-6})$$

Dans la région 2 ( $0 \leq \xi \leq d$ ), l'onde évanescente s'écrit :

$$\psi_{\sigma 2} = A_{\sigma} e^{-\kappa\xi} + B_{\sigma} e^{\kappa\xi}, \sigma = \uparrow \text{ ou } \downarrow \quad (\text{III-7})$$

Enfin, seule l'onde transmise se propage dans la région 3 ( $\xi \geq d$ ) :

$$\psi'_{\sigma 3} = C_{\sigma} e^{ik_{\sigma}(\xi-d)}, \sigma = \uparrow \text{ ou } \downarrow \quad (\text{III-8})$$

Pour terminer la résolution de l'équation de Schrödinger, il faut trouver les valeurs des huit coefficients  $R_{\sigma}$ ,  $A_{\sigma}$ ,  $B_{\sigma}$  et  $C_{\sigma}$  ( $\sigma = \uparrow, \downarrow$ ) en raccordant les fonctions d'ondes  $\Psi_{\sigma}$  et leurs dérivées  $d\Psi_{\sigma}/d\xi$  au niveau des interfaces  $\xi=0$  et  $\xi=d$ . Le changement d'axe de quantification à l'interface  $\xi=d$  nécessite, pour les fonctions d'ondes ainsi que leurs dérivées, la transformation suivante :

$$\psi_{\uparrow 2} = \psi'_{\uparrow 3} \cos(\theta/2) + \psi'_{\downarrow 3} \sin(\theta/2), \quad (\text{III-9a})$$

$$\psi_{\downarrow 2} = -\psi'_{\downarrow 3} \sin(\theta/2) + \psi'_{\uparrow 3} \cos(\theta/2) \quad (\text{III-9b})$$

En se limitant aux termes dominants en  $e^{-\kappa d}$ , un peu d'algèbre (sic) fournit les expressions des huit coefficients  $R_{\sigma}$ ,  $A_{\sigma}$ ,  $B_{\sigma}$  et  $C_{\sigma}$ .

### III.2.3.1.2 Calcul de la conductance

Pour une température nulle, une tension appliquée nulle et une barrière suffisamment épaisse (i.e.  $\kappa \gg 1/d$ , soit  $e^{-2\kappa d} \ll 1$ ), la conductance d'une barrière tunnel s'écrit, après intégration en énergie et en  $k_{\parallel}$ , sous la forme

$$G = I_e / V = \frac{e^2}{8\pi^2 \hbar} \frac{\kappa(T_{P\uparrow} + T_{P\downarrow})}{d} \quad (\text{III-10})$$

où  $T_{P\sigma}$  est le coefficient de transmission :

$$T_{P\sigma} = \text{Im} \sum_{\sigma} \psi_{\sigma}^* \frac{d\psi_{\sigma}}{d\xi} = 8\kappa^2 k_{\sigma}^2 e^{-2\kappa d} \frac{(1 + \cos\theta)}{(\kappa^2 + k_{\sigma}^2)^2} \quad (\text{III-11})$$

Slonczewski obtient alors l'expression de la conductance à travers une barrière  $G = G_0 (1 + P^2 \cos\theta)$



$$\text{avec } P = \frac{(k_{\uparrow} - k_{\downarrow})(\kappa^2 - k_{\uparrow}k_{\downarrow})}{(k_{\uparrow} + k_{\downarrow})(\kappa^2 + k_{\uparrow}k_{\downarrow})} \text{ et } G_0 = \frac{\kappa}{\hbar d} \left[ \frac{e\kappa(\kappa^2 + k_{\uparrow}k_{\downarrow})(k_{\uparrow} + k_{\downarrow})}{\pi(\kappa^2 + k_{\uparrow}^2)(\kappa^2 + k_{\downarrow}^2)} \right]^2 e^{-2\kappa d} \quad (\text{III-12})$$

où P est la polarisation effective à l'interface {électrode ferromagnétique-barrière tunnel} et  $G_0$  la conductance surfacique moyenne.

### III.2.3.1.3 Calcul de l'expression du couplage d'échange

Nous considérons toujours le cas où  $V=0$ , ce qui suppose qu'il n'y a pas de courant net à travers la barrière et pas de dissipation d'énergie. L'utilisation d'électrodes ferromagnétiques identiques implique la simplification des équations. Notons  $\frac{d\vec{\sigma}_A}{dt}$  le taux de variation du spinor  $\vec{\sigma}_A$  qui additionne la transmission d'une onde incidente  $\uparrow$  (suivant l'axe de quantification Z) de A vers B et d'une onde incidente  $\uparrow$  (suivant l'axe de quantification Z') de B vers A avec la même énergie  $E_{\xi}$ . Dans le modèle à deux bandes considéré, nous devons tenir compte des ondes incidentes  $\downarrow$  dont les coefficients de transmission se déduisent des précédents par des opérations de symétrie.

Le calcul de la transmission montre que, dans le repère {x,y,z},

$$\frac{d\vec{\sigma}_A}{dt} = \begin{bmatrix} (b' - a'') \sin \theta \\ 2b'' \sin \theta \\ (b' - a'')(1 - \cos \theta) \end{bmatrix} \quad (\text{III-13})$$

où  $a''$ ,  $b'$  et  $b''$  dépendent des coefficients  $R_{\sigma}$ ,  $A_{\sigma}$ ,  $B_{\sigma}$ ,  $C_{\sigma}$  et interviennent dans l'expression de la transmission tunnel.

La composante  $\left. \frac{d\sigma_A}{dt} \right)_y$ , dont la direction et la dépendance angulaire sont données par  $\vec{h}_A \wedge \vec{h}_B$ , représente la précession de spin associée à un couplage interfacial de type Heisenberg. Par sommation sur tous les états occupés, on obtient la composante suivant l'axe y du courant de spin  $-I_y = \left. \frac{dS_A}{dt} \right)_y$  (du fait des opérations de symétrie, les termes  $\left. \frac{d\sigma_A}{dt} \right)_x$  et  $\left. \frac{d\sigma_A}{dt} \right)_z$  sont nuls).

En remplaçant dans l'équation (III-10),  $I_e$  par  $I_y$ ,  $-eT_p$  par  $\left. \frac{\hbar d\sigma_A}{2 dt} \right)_y$  (évalué au niveau de Fermi) et eV par  $(U_0 - E_F)/(\kappa d)$  (évalué pour  $\kappa d \gg 1$ ), alors l'expression (III-13) donne :

$$J = \left. \frac{dS_A}{dt} \right)_y \times \frac{1}{\sin \theta} = \frac{(U_0 - E_F)b''}{8\pi^2 d^2}. \quad (\text{III-14})$$

Dans cette expression,  $\left. \frac{d\sigma_A}{dt} \right)_y$  est vu comme la précession de l'aimantation de l'électrode A due à

la présence d'un couplage de type Heisenberg d'énergie  $-J \cos \theta$ .

Une résolution à partir des coefficients de transmission et de réflexion donne :

$$b'' = \frac{8\kappa^3(\kappa^2 - k_\uparrow k_\downarrow)(k_\uparrow - k_\downarrow)^2(k_\uparrow + k_\downarrow)}{(\kappa^2 + k_\uparrow^2)(\kappa^2 + k_\downarrow^2)} e^{-2\kappa d}, \quad k_\uparrow > k_\downarrow > 0. \quad (\text{III-15})$$

En substituant, on trouve finalement l'expression du couplage d'échange entre deux couches ferromagnétiques :

$$J = \frac{(U_0 - E_F)}{8\pi^2 d^2} \frac{8\kappa^3(\kappa^2 - k_\uparrow k_\downarrow)(k_\uparrow - k_\downarrow)^2(k_\uparrow + k_\downarrow)}{(\kappa^2 + k_\uparrow^2)(\kappa^2 + k_\downarrow^2)} e^{-2\kappa d}. \quad (\text{III-16})$$

où  $(U_0 - E_F)$  est la hauteur et  $d$  la largeur de la barrière isolante,  $k_\uparrow$  et  $k_\downarrow$  sont respectivement les vecteurs d'onde des électrons de spin *up* et de spin *down* dans les couches ferromagnétiques,  $\kappa$  est le vecteur d'onde dans la barrière tunnel.

Cette formule met en évidence deux résultats essentiels. Le premier est la forte dépendance en  $\frac{e^{\alpha d}}{d^2}$  de l'intensité du couplage en fonction de l'épaisseur d'isolant. Ce comportement fournit une signature nette du couplage par effet tunnel. De plus, seul le terme  $(\kappa^2 - k_\uparrow k_\downarrow)$  est susceptible de présenter un signe négatif suivant les matériaux considérés. Par convention et d'après le modèle considéré, un signe négatif correspond à un couplage AF et un signe positif à un couplage F. Le paragraphe suivant montre que la prise en compte de paramètres représentatifs du système Fe/MgO/Fe donne la valeur négative attendue.

### III.2.3.2 Comparaison théorie/expérience

Sur la figure III-12, la courbe continue représente la variation du couplage d'échange selon le modèle de Slonczewski. Nous avons utilisé dans ce calcul les paramètres du Fe massif ( $k_\uparrow = 1.09 \text{ \AA}^{-1}$

et  $k_\downarrow = 0.43 \text{ \AA}^{-1}$ ) et choisi un vecteur d'onde  $\kappa \left( \kappa = \sqrt{\frac{2m_{\text{eff}}}{\hbar^2}(U_0 - E_F)} \right)$  dans la barrière

correspondant à des grandeurs physiques raisonnables pour l'isolant : une hauteur de barrière  $(U_0 - E_F) = 1 \text{ eV}$  et une masse effective  $m_{\text{eff}} = 0.4 m_{\text{électron}}$  ( $m_{\text{électron}}$  est la masse de l'électron). L'étude bibliographique du système Fe/MgO/Fe montre en effet que la masse effective déduite de la bande complexe  $\Delta_1$  (voir chapitre IV) vaut environ  $0.38 m_{\text{électron}}$  [Butler\_PRB63\_2001a]. En ce qui concerne la hauteur de la barrière, la couche isolante étant de l'ordre de quelques plans atomiques, on s'attend à une valeur effective bien inférieure à celle du volume<sup>27</sup> (3.8 eV). La réduction de la hauteur de barrière lorsque l'épaisseur de MgO diminue a été observée par Wulfhchel et ses collaborateurs [Wulfhchel\_APL78\_2001]. Une hauteur de barrière de 1 eV est donc raisonnable

<sup>27</sup> Dans le cas de couches isolantes fines entre deux films métalliques, les effets de proximité réduisent la constante diélectrique et ainsi la hauteur de la barrière.

pour notre système. Comme nous pouvons le voir sur la figure III-12, le modèle de Slonczewski donne des valeurs théoriques du couplage en très bon accord avec nos résultats expérimentaux. Dans cette simulation, nous avons dû ajouter à la formule de Slonczewski le couplage ferromagnétique de Néel que nous avons déduit des images MET en estimant l'amplitude et la période des oscillations de la rugosité. Il a été ainsi évalué à  $0.02 \text{ erg.cm}^{-2}$ .

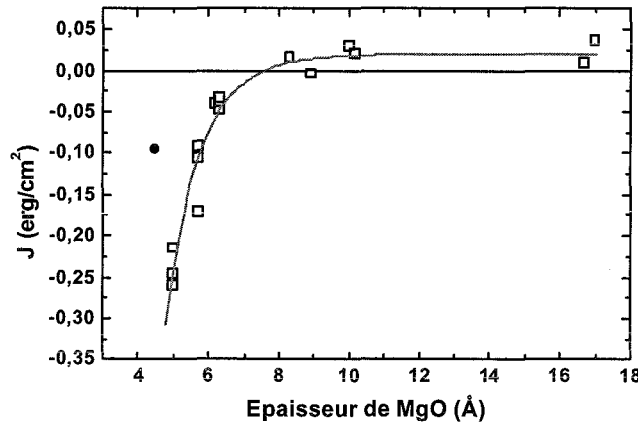


figure III-12

Comparaison entre les mesures expérimentales de  $J$  avec un calcul effectué dans le cadre du modèle de Slonczewski pour les paramètres donnés dans le texte.

Compte tenu de la décroissance extrêmement rapide de  $J$  avec  $d_{\text{MgO}}$ , on aurait pu espérer utiliser une méthode de simulation afin d'extraire les paramètres inconnus que sont la hauteur de la barrière et la masse effective de l'électron dans la barrière. Cependant, ces termes ( $U_0 - E_F$ ) et  $m_{\text{eff}}$  sont conjointement présents dans l'expression du vecteur d'onde qui intervient à plusieurs reprises dans l'expression de  $J$ , si bien qu'il est impossible de déterminer indépendamment leurs valeurs. Nous avons seulement pu mettre en évidence que le produit  $m_{\text{eff}} \times (U_0 - E_F)$  est approximativement égal à  $0.4 \text{ eV}$  en unité de masse de l'électron.

### III.2.3.3 Limitations du modèle de Slonczewski

Le modèle décrit auparavant est simpliste dans le sens où il est basé sur un raisonnement d'électrons libres, pour une température nulle et qu'il ne considère que les électrons au niveau de Fermi. De plus, il ne prend pas en compte tous les aspects du problème, tels que la non uniformité de la barrière, le potentiel cristallin périodique, les corrélations électron-électron ou les ondes de spin. Cependant, il constitue une première approche des effets d'échange entre couches via une barrière tunnel.

Malgré les limitations de son modèle, Slonczewski avait pressenti que la polarisation aux interfaces est une quantité plus significative que la polarisation du matériau massif et surtout que les

propriétés de l'interface {électrode-barrière} peuvent considérablement modifier les effets de couplage : l'influence éventuelle des états de surface est clairement mentionnée.

### III.2.3.4 Dépendance en température : le modèle de Bruno

Dans le modèle de Bruno, le couplage entre les couches ferromagnétiques est attribué aux interférences des ondes électroniques dans la couche séparatrice [Bruno\_PRB49\_1994 ; Bruno\_PRB52\_1995]. Chaque canal de spin possède des coefficients de réflexion propres aux interfaces. Ce modèle permet de traiter de manière unifiée les cas d'une couche séparatrice métallique non magnétique ou d'un isolant, en considérant soit des ondes de Bloch soit des ondes évanescentes. Cette généralisation par Bruno du modèle des puits quantiques aux semi-conducteurs et aux isolants a été possible grâce à l'introduction de la notion de sphère de Fermi complexe. Cependant, alors que la transmission de l'information de spin via les électrons de Bloch donne naissance à un couplage oscillant avec l'épaisseur d'une couche séparatrice métallique, le couplage entre les couches par les électrons tunnel entraîne une décroissance exponentielle. Ainsi, dans ce modèle unifié, c'est la nature même des électrons porteurs de l'information de spin qui détermine la forme de la variation de l'intensité du couplage avec l'épaisseur de la couche séparatrice.

Pour simplifier son approche, Bruno se place dans le cadre du modèle des électrons libres. Comme dans le calcul de Slonczewski, il considère deux électrodes ferromagnétiques semi infinies A et B séparées par une couche d'épaisseur D et dont les aimantations respectives font un angle  $\theta$  (cas unidimensionnel). L'origine des énergies est prise au bas de la bande majoritaire, le champ moléculaire de la bande minoritaire est noté  $\Delta$  et le potentiel de la couche séparatrice est noté U ( $U > E_F$  correspond à une barrière isolante).

Du fait de l'invariance par translation dans le plan des couches, la composante  $k_{\parallel}$  est conservée après réflexion ou transmission. Considérons un électron incident avec un vecteur d'onde  $\mathbf{k}_i = (k_{\parallel}, k_z^i)$ , les vecteurs d'ondes des ondes réfléchies et transmises sont respectivement,  $\mathbf{k}^r = (k_{\parallel}, -k_z^i)$  et  $\mathbf{k}^t = (k_{\parallel}, k_z^t)$ . Le coefficient complexe de réflexion vaut alors

$$r = \frac{k_z^i - k_z^t}{k_z^i + k_z^t} \quad (\text{III-17})$$

D'après [Bruno\_JMMM121\_1993], en utilisant cette notion de coefficients de réflexion, l'expression exacte du couplage entre les couches par unité d'aire est alors

$$E_{AB}(\theta) = \frac{1}{4\pi^3} \text{Im} \int d^2k_{\parallel} \int_{-\infty}^{+\infty} f(\varepsilon) \times \ln \left[ 1 - 2(\bar{r}_A \bar{r}_B + \Delta r_A \Delta r_B \cos\theta) e^{iq_z D} + (\bar{r}_A^2 - (\Delta r_A)^2)(\bar{r}_B^2 - (\Delta r_B)^2) e^{2iq_z D} \right] d\varepsilon \quad (\text{III-18})$$

avec  $q_z = k_z^r - k_z^i$ ,  $f(\varepsilon)$  est la fonction de Fermi-Dirac et  $r_{A(B)}$  et  $\Delta r_{A(B)}$  sont respectivement le spin moyen et l'asymétrie de spin des ondes réfléchies pour les électrodes A et B, soit :

$$\bar{r}_{A(B)} = \frac{r_{A(B)}^{\uparrow} + r_{A(B)}^{\downarrow}}{2} \text{ et } \Delta r_{A(B)} = \frac{r_{A(B)}^{\uparrow} - r_{A(B)}^{\downarrow}}{2}. \quad (\text{III-19})$$

L'expression de  $E_{A(B)}$  est alors développée en puissance de  $\cos\theta$  :  $E_{AB} = J_0 + J_1 \cos\theta + J_2 \cos^2\theta + \dots$

Ainsi, par identification, la constante de couplage d'Heisenberg s'écrit :

$$J_1 = -\frac{1}{4\pi^3} \text{Im} \int d^2k_{\parallel} \int_{-\infty}^{+\infty} f(\varepsilon) \times \frac{2\Delta r^2 e^{iq_z D}}{1 - 2\bar{r}^2 e^{iq_z D} + (\bar{r}^2 - \Delta r^2)^2 e^{2iq_z D}} d\varepsilon. \quad (\text{III-20})$$

Dans le cas d'une couche séparatrice métallique d'épaisseur importante, Bruno obtient alors :

$$J_1 = -\frac{1}{4\pi^2} \frac{\hbar^2 k_F^2}{mD^2} \text{Im} \left[ (\Delta r)^2 e^{2ik_F D} \right] \times \frac{2\pi k_B T D m / (\hbar^2 k_F)}{\sinh(2\pi k_B T D m / (\hbar^2 k_F))} \quad (\text{III-21})$$

où  $k_F = \sqrt{\frac{2m_{\text{eff}}(E_F - U)}{\hbar^2}}$  est le vecteur d'onde au niveau de Fermi dans le séparateur métallique.

Considérons maintenant le cas d'une barrière tunnel. Pour des grandes épaisseurs, le dénominateur de l'expression (III-20) peut être considéré comme égal à 1. Durant l'intégration en énergie, la contribution principale provient du voisinage du niveau de Fermi où la fonction de Fermi-Dirac varie fortement et où les ondes évanescentes ont la plus lente décroissance. De plus, on se place

dans la limite des basses températures  $\left( k_B T \leq \frac{\hbar^2 \kappa_F}{m_{\text{eff}} D} \right)$ , et on considère que l'intégration en  $k_{\parallel}$  se

réduit principalement à la valeur en  $k_{\parallel}=0$  (on note alors  $\kappa_F^*$  la valeur minimale des  $\kappa_F$ , i.e.  $\kappa_F(k_{\parallel}=0)$ ). Finalement :

$$J_1 = J_{T=0K} \times \frac{2\pi k_B T D m / (\hbar^2 \kappa_F^*)}{\sin(2\pi k_B T D m / (\hbar^2 \kappa_F^*))} \quad (\text{III-22})$$

$$\text{avec } J_{T=0K} = -\frac{1}{4\pi^2} \frac{\hbar^2 \kappa_F^{*2}}{mD^2} \text{Im} \left[ (\Delta r)^2 e^{-2\kappa_F^* D} \right]. \quad (\text{III-23})$$

La comparaison de cette expression avec celle correspondant au cas d'une couche séparatrice métallique (équation (III-21)) montre que la seule différence est le remplacement de  $k_F$  par  $\kappa_F^*$  ; cette analogie permettant de passer du cas métallique au cas isolant avait d'ailleurs déjà été expliquée lors de l'introduction de cette partie. La justification mathématique de cette similitude est liée à la généralisation du concept de surface de Fermi proposée par Bruno : puisque les ondes propagatives ou évanescentes contribuent de manière analogue au couplage, l'introduction de la notion de surface de Fermi complexe apparaît naturelle. Ce concept autorise les valeurs complexes de  $k_z$ , non seulement pour les électrons libres mais également pour les structures de bandes.

La validité du théorème de Bloch, y compris pour des vecteurs d'onde complexes, justifie cette compatibilité.

A  $T=0K$ , l'expression (III-22) se réduit à la formule de Slonczewski. Le signe du couplage est déterminé par l'argument de  $(\Delta r)^2$  : le couplage est antiferromagnétique (respectivement ferromagnétique) si  $\kappa_F^{*2} < k_F^\uparrow k_F^\downarrow$  (respectivement  $\kappa_F^{*2} > k_F^\uparrow k_F^\downarrow$ ) avec  $k_F^\uparrow$  ( $k_F^\downarrow$ ) le vecteur d'onde au niveau de Fermi pour le spin majoritaire (minoritaire) pour les électrons dans les électrodes.

Pour une température non nulle, l'expression (III-22) montre que l'on doit s'attendre à une augmentation du couplage lorsque la température augmente. L'explication est simple : les états situés au dessous du niveau de Fermi sont plus nombreux à participer au couplage et son intensité augmente.

Malheureusement, le calcul de la variation du terme dépendant de la température, à savoir

$$\frac{2\pi k_B T D m / (\hbar^2 \kappa_F^*)}{\sin(2\pi k_B T D m / (\hbar^2 \kappa_F^*))}$$

montre qu'aucune augmentation significative n'est prévisible dans une large gamme de température pour notre système. En effet, la prise en compte de paramètres représentatifs, tels que  $D_{MgO}=6 \times 10^{-10} m$ ,  $\kappa_F^*=0.05 \times 10^{10} m^{-1}$  ( $U-E_F=1 eV$  et  $m_{eff}=0.4 \times m_{\text{électron}}$ ) montre qu'une augmentation de 5% (ce qui est déjà proche de la limite mesurable) par rapport à l'intensité à  $T=0K$  correspondrait à une température de 2500K ! Inutile de débattre de la possibilité de la mesure... d'autant plus que des mesures de couplage montrent que la finesse de la couche de MgO la rend instable à partir de 500K : le cycle mineur n'est plus décalé, preuve que le couplage est détruit (figure III-13) par la présence de ponts ferromagnétiques.

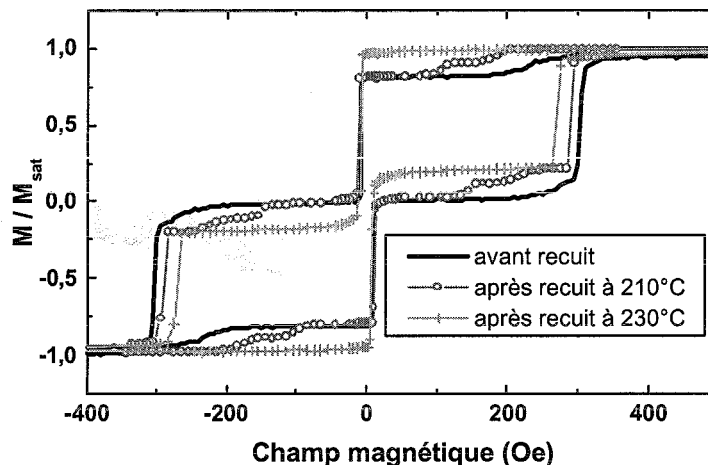


figure III-13

Destruction du couplage par effet tunnel à travers la fine barrière pour des températures de recuit supérieures à 200°C. La détérioration de la barrière couple ferromagnétiquement les couches douce et dure et entraîne la diminution du champ coercitif de cette dernière.

### III.2.3.5 Limitations du modèle des électrons libres - Explication dans le cadre de systèmes épitaxiés

Récemment, toujours dans le cadre du modèle des électrons libres, le groupe de Vedyayev a effectué le calcul analytique complet (i.e. sans développement limité en fonction de  $e^{-2\kappa d}$ ) déduit des équations de Slonczewski dans le régime des faibles épaisseurs d'isolant. Leurs résultats montrent que l'on s'attend à observer un couplage ferromagnétique ; seul l'ajout d'un terme correspondant à un transport tunnel résonant explique nos résultats montrant un couplage de signe inverse [M. Ye. Zhuravlev, E. Y. Tsymbal, et A. V. Vedyayev, communication privée].

La qualité de notre système Fe/MgO/Fe nous permet de rejeter l'hypothèse d'un transport tunnel résonant assisté par des impuretés localisées dans un plan de la barrière. Cependant, dans notre système, la résonance existe et lui est intrinsèque : le tunnel résonant se produit via les états de résonance interfaciale qui jouent un rôle très important dans le régime des faibles épaisseurs d'isolant (voir chapitre IV.5).

De plus, comme nous le montrerons au chapitre suivant, la physique du transport tunnel dans les systèmes épitaxiés sort du cadre du modèle des électrons libres. En effet, les calculs *ab initio* les plus récents sur la transmission résolue en  $k_y$  dans les jonctions tunnel épitaxiées ont mis en évidence des pics de conductance localisés à des endroits précis de la zone de Brillouin bidimensionnelle [Butler\_PRB63\_2001a ; Wunnicke\_PRB65\_2002]. Ces pics sont une caractéristique de la bande de spin minoritaire. Ils correspondent à la présence d'états de résonance interfaciale. Lorsqu'une fonction d'onde se présente à l'interface, sa probabilité de raccordement est très fortement augmentée par la grande amplitude de ces états. Par conséquent, les fonctions de Bloch correspondantes sont très faiblement atténuées et ces états de résonance interfaciale dominant le transport tunnel pour de faibles épaisseurs de barrière. L'équipe de Dederichs a mis en évidence que, lorsque la résonance est présente à chaque interface {métal-isolant}, c'est-à-dire de part et d'autre de la barrière, alors on assiste à une conductance balistique des électrons entre les deux électrodes : la probabilité de transmission est unitaire [Wunnicke\_PRB65\_2002 ; paragraphe IV.5.3].

Cette forte transmission dans le canal minoritaire peut induire un effet de *spin torque* sur les aimantations des couches se traduisant par un couplage de type AF. Pour nos échantillons, les mesures magnétiques sont effectuées sans tension appliquée. Il s'établit donc un équilibre entre les courants d'électrons allant dans un sens et dans l'autre, à l'image du modèle de Slonczewski. La configuration magnétique stabilisée correspond alors à celle qui minimise l'énergie. Si, pour le système dans une configuration AP, les états de résonance sont couplés de manière plus forte qu'en configuration P, alors les courants d'équilibre sont plus importants et la configuration AP est favorisée.

L'analyse de l'énergie totale du système prenant en compte les effets de structure électronique dans un calcul complexe permettrait de s'assurer définitivement que, dans le cadre de ce modèle de transport balistique, la configuration AP est bien celle d'énergie minimale et donc celle qui est favorisée par le système. Une telle étude théorique pourrait se révéler une perspective intéressante.

Dans ce contexte, le contrôle de la chimie interfaciale est primordial. La destruction de la résonance par des espèces chimiques contaminantes adéquates devrait avoir d'importantes conséquences sur le couplage observé. En effet, si l'hypothèse d'un couplage par résonance interfaciale s'avère exacte, nous verrons au chapitre V que ce transport résonant se produit via une orbitale  $d_{z^2}$ , orbitale non affectée par les contaminants n'ayant que des orbitales  $s$  et  $p$ . La réalisation d'échantillons *sans* et *avec* carbone à l'interface inférieure Fe/MgO nous a offert une première validation de cette hypothèse : aucune différence n'a été observée sur l'intensité du couplage mesuré.

### III.2.4 Conclusion

Nous observons un couplage magnétique entre les deux électrodes ferromagnétiques d'une jonction tunnel du type MgO(100)/Fe/MgO/Fe/Co/Pd. Lorsque l'épaisseur de MgO est inférieure à 8Å, un transfert d'information de spin favorisant une orientation antiparallèle des aimantations se fait par effet tunnel. La forme de la variation du couplage expérimental avec l'épaisseur de l'isolant, la valeur quantitative du couplage, et enfin la gamme d'épaisseur de MgO dans laquelle le couplage antiferromagnétique est observé, sont en bon accord avec les modèles théoriques d'un couplage d'échange entre deux couches magnétiques par effet tunnel quantique polarisé en spin.

Malgré sa prédiction dès 1989, ce couplage a été très peu abordé d'un point de vue expérimental, étant donné la décroissance extrêmement rapide de l'intensité du couplage avec l'épaisseur de la couche isolante. La mise en évidence d'un tel couplage repose sur la possibilité de réaliser des couches d'isolant très minces (<10Å) et continues, mais également sur la possibilité de discrimination entre le couplage par effet tunnel et le couplage direct ferromagnétique qui apparaît lorsque l'on réduit l'épaisseur de l'isolant, en dessous d'une valeur critique. En effet, si le couplage attendu avait été ferromagnétique, il aurait été impossible de différencier l'augmentation intrinsèque de son amplitude, lorsque l'épaisseur de MgO diminue, de celle liée à l'apparition de trous d'épingles donnant naissance à un couplage ferromagnétique direct entre les métaux.



### **III.3 Systèmes antiferromagnétiques artificiels créés par effet tunnel polarisé en spin**

Le couplage antiferromagnétique par effet tunnel entre deux couches magnétiques séparées par une couche isolante permet d'envisager la réalisation de systèmes de type antiferromagnétique artificiel (AAF). Ces systèmes présentent de multiples avantages dans les applications grâce à leurs propriétés magnétiques facilement contrôlables par les paramètres intrinsèques du système : les épaisseurs des couches modulent sa rigidité magnétique et le champ de fuite est fortement réduit. Grâce à leurs propriétés magnétiques remarquables, les systèmes AAF sont utilisés dans des dispositifs électroniques de spin tels que les capteurs à base des éléments magnétorésistifs, têtes de lecture ou éléments de mémoire magnétique non-volatile.

Généralement, un système AAF est constitué de deux couches magnétiques séparées par une couche métallique non magnétique. Dans un AAF standard, les interactions entre les couches magnétiques sont du type RKKY. L'intensité et le signe du couplage dépendent de l'épaisseur de la couche séparatrice comme cela a été illustré à la figure III-10. Si les couches magnétiques sont identiques, alors le moment magnétique net du système en configuration antiparallèle est nul : il forme alors un matériau antiferromagnétique artificiel. Si les deux couches magnétiques ont des moments magnétiques différents, alors l'ensemble forme un matériau de type ferrimagnétique qui présente un moment magnétique net non nul mais plus faible que le moment de l'une de ses couches : les interactions magnétostatiques parasites sont fortement réduites. De plus, grâce au couplage antiferromagnétique, la stabilité magnétique d'un système AAF dans un champ extérieur est augmentée par rapport à celle des couches individuelles dont il est composé. Par conséquent, ce système est un candidat idéal comme sous-système magnétiquement rigide dans une jonction tunnel magnétique.

Contrairement aux systèmes AAF ordinaires, constitués de couches séparatrices métalliques non magnétiques [vandenBerg\_JMMM165\_1997], notre système AAF présente un grand avantage pour les capteurs utilisant la magnétorésistance géante (GMR). En effet, la fine couche isolante agit comme une couche d'oxyde nanométrique (*nano-oxyde layer*) qui joue le rôle de réflecteur et confine les électrons dans la partie active du capteur, réduisant la perte de polarisation des électrons dans la couche tampon et contribuant ainsi à l'augmentation de la GMR (voir paragraphe III.5).

#### **III.3.1 Fonctionnement d'un système AAF**

Pour analyser le fonctionnement d'un système AAF du point de vue qualitatif, nous pouvons nous situer dans le cadre du modèle simplifié de Stoner-Wohlfarth qui suppose que le retournement des aimantations se fait par rotation d'un seul bloc, sans former de domaine [Stoner\_PTRS248A\_1948].

Considérons un système AAF constitué de couches magnétiques d'épaisseurs  $t_1$  et  $t_2$ , d'aimantations respectives  $M_1$  et  $M_2$  (moments magnétiques par unité de volume), de constantes d'anisotropie d'ordre 4 par unité de volume  $K_1$  et  $K_2$  (anisotropies planaires). Notons  $\theta_1$ ,  $\theta_2$  et  $\varphi$  les angles d'orientation des couches magnétiques et de l'axe facile par rapport à la direction d'application du champ. Enfin, nous supposons que le couplage entre les couches est dû principalement à un couplage bilinéaire antiferromagnétique d'intensité  $J$  ( $J < 0$ ). En effet, dans tout ce qui suit, la prise en compte d'un couplage biquadratique supplémentaire n'apporte pas de modification significative ; de plus, le couplage biquadratique est généralement d'une intensité nettement inférieure à celle du couplage bilinéaire. La figure III-14 résume ces conditions.

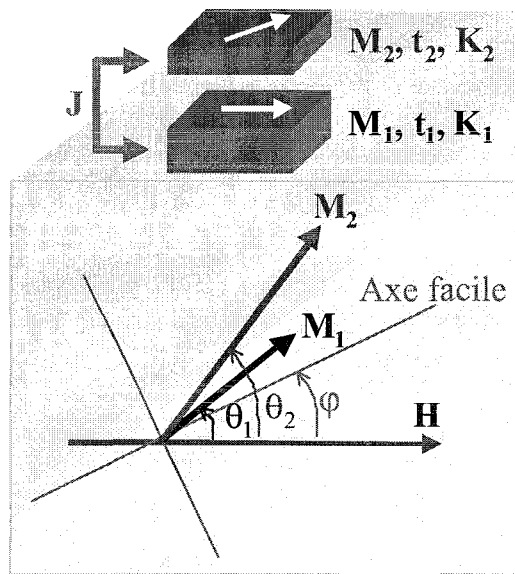


figure III-14

Schéma illustrant la signification des angles  $\theta_1$ ,  $\theta_2$  et  $\varphi$  repérés par rapport à la direction d'application du champ.  $K_1$  et  $K_2$  sont les anisotropies,  $t_1$  et  $t_2$  sont les épaisseurs et  $M_1$  et  $M_2$  les aimantations des couches.  $J$  est le couplage bilinéaire.

En se plaçant dans le cadre du modèle de Stoner-Wohlfahrt, la fonctionnelle d'énergie totale  $E$  est alors la somme de plusieurs termes :

- l'énergie de Zeeman de chaque couche magnétique dans un champ magnétique  $H$  :

$$E_{\text{Zeeman}} = -H \times (M_1 t_1 \cos \theta_1 + M_2 t_2 \cos \theta_2)$$

- l'énergie de couplage entre les couches :  $E_{\text{couplage}} = -J \cos(\theta_1 - \theta_2)$

- l'énergie d'anisotropie magnétocristalline :  $E_{\text{anis}} = \frac{K_1 t_1}{4} \sin^2(2\theta_1 - \varphi) + \frac{K_2 t_2}{4} \sin^2(2\theta_2 - \varphi)$

$$E_{\text{totale}} = -H \times (M_1 t_1 \cos \theta_1 + M_2 t_2 \cos \theta_2) - J \cos(\theta_1 - \theta_2) + \frac{K_1 t_1}{4} \sin^2(2\theta_1 - \varphi) + \frac{K_2 t_2}{4} \sin^2(2\theta_2 - \varphi) \quad (\text{III-24})$$

La minimisation de cette fonctionnelle d'énergie par rapport aux angles  $\theta_1$  et  $\theta_2$  permet d'obtenir, pour chaque valeur du champ appliqué, les valeurs des angles correspondant à la configuration la plus stable. Connaissant les cycles  $\theta_1(H)$  et  $\theta_2(H)$ , nous pouvons ainsi remonter au cycle d'aimantation globale de l'AAF puisque 
$$M(H) = \frac{[M_1 t_1 \cos \theta_1(H) + M_2 t_2 \cos \theta_2(H)]}{(M_1 t_1 + M_2 t_2)}$$
.

Le cycle d'hystérésis d'une telle simulation numérique est représenté à la figure III-15, en fixant les valeurs imposées ou déduites de l'expérimentation à savoir,  $J=-0.19\text{erg/cm}^2$  (valeur expérimentale correspondant à  $5.2\text{\AA}$  de MgO),  $t_1=300\text{\AA}$ ,  $t_2=100\text{\AA}$ ,  $M_1=M_2=1714\text{emu/cm}^3$ ,  $K_1=K_2=4.7\times 10^5\text{erg/cm}^3$ .

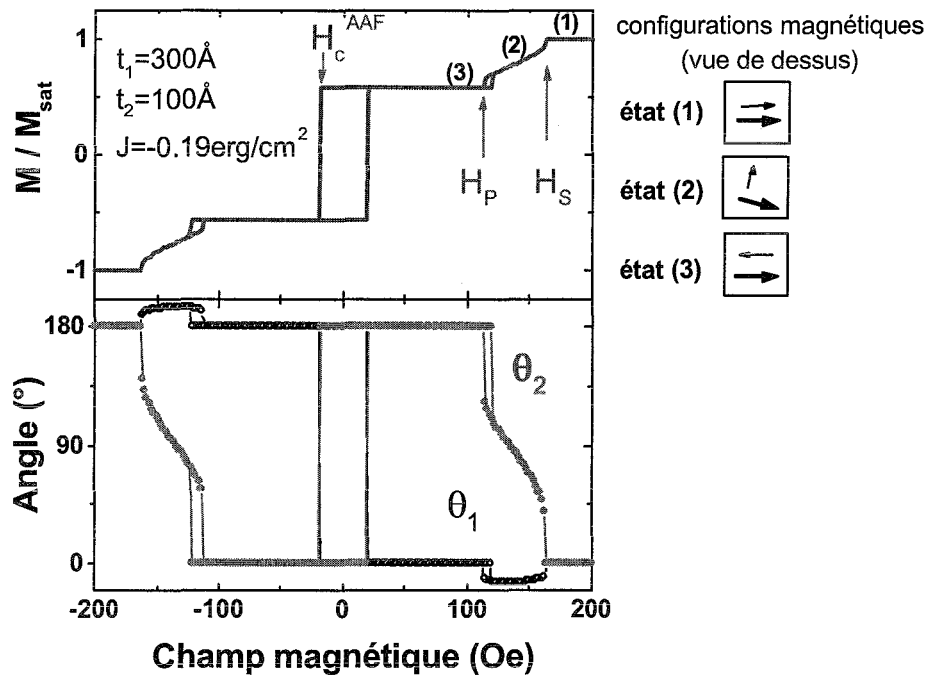


figure III-15

Calcul théorique donnant l'évolution magnétique d'un AAF sous un champ magnétique externe.

En haut : Cycle d'aimantation  $M(H)$ .

En bas : Evolution des angles  $\theta_1$  et  $\theta_2$  (dans le plan) par rapport à la direction d'application du champ.

### III.3.2 Comportement magnétique suivant l'axe facile

#### III.3.2.1 Description du cycle

L'analyse du cycle suivant l'axe facile (figure précédente) permet d'expliquer le principe de fonctionnement d'un AAF. Pour chaque valeur du champ appliqué, les orientations des aimantations sont dictées par la configuration d'énergie totale minimale.

*Du champ de saturation  $H_S$ , au champ de plateau  $H_P$*

D'après la figure III-15, pour des champs magnétiques suffisamment intenses ( $H > H_S$ ), l'AAF est saturé et les moments de ses deux couches magnétiques sont parallèles et orientés dans le sens du champ appliqué (figure III-15, état (1)). Cette configuration est maintenue jusqu'à une valeur  $H_S$  du champ. Immédiatement en dessous de  $H_S$ , l'influence du couplage AF devient supérieure au couplage Zeeman ; ceci conduit à un saut abrupt dans le cycle d'aimantation correspondant à une brusque variation des angles  $\theta_1(H)$  et  $\theta_2(H)$ . Ce mouvement de *spin flop* permet à la couche douce de se rapprocher rapidement de l'un des axes d'anisotropie (situé à  $90^\circ$ ). Dans le même temps, le moment magnétique de la couche la plus dure tourne jusqu'à une déflexion maximale  $|\theta_{1\max}|$ . La valeur de  $|\theta_{1\max}|$  dépend des paramètres de l'AAF et est inférieure à  $10^\circ$  pour les paramètres utilisés lors de la simulation et dans les échantillons étudiés au cours de cette thèse.

Cette déflexion permet de placer les deux couches suivant un angle  $(\theta_2 - \theta_1)$  proche de  $90^\circ$  (figure III-15, état (2)). Ainsi le système minimise partiellement l'énergie d'anisotropie totale ( $\theta_1$  quasiment aligné suivant un axe facile) et satisfait en partie au couplage AF (l'angle  $(\theta_2 - \theta_1)$  reste voisin de  $90^\circ$ ). Cette configuration est tellement favorable du point de vue énergétique que les rotations des couches se font très lentement dans cette gamme de champ.

Puis, lorsque l'on se rapproche de  $H_P$ , on a de nouveau un mouvement de *spin flop* : le moment magnétique  $m_1$  se réoriente selon la direction et le sens du champ magnétique appliqué afin de minimiser son énergie Zeeman et son énergie d'anisotropie ; le moment  $m_2$ , lui, pivote rapidement afin de minimiser l'énergie de couplage AF et son énergie d'anisotropie. La configuration antiparallèle est alors stabilisée pour le champ appliqué  $H_P$ .

*Pour les champs compris entre  $+H_P$  et  $-H_P$*

Lorsque  $-H_P < H < H_P$ , le couplage AF stabilise la configuration AP qui minimise à la fois les énergies de couplage et d'anisotropie. La configuration d'énergie minimale dans cette gamme de champ est alors la configuration AP des deux couches de l'AAF. Ainsi, pour  $-H_P < H < H_P$ , l'AAF asymétrique se comporte comme une couche magnétique unique de moment net  $m_1 - m_2$ . En effet, dans un champ magnétique positif et après saturation positive, le moment net reste aligné dans la direction et le sens du champ positif (figure III-15, état (3)). En renversant le sens du champ appliqué, qui devient alors négatif, cette configuration est préservée jusqu'à une certaine valeur du champ, notée  $H_c^{\text{AAF}}$ . L'interaction Zeeman aligne alors le moment magnétique total du système ( $m_1 - m_2$ ) avec la direction du champ. Mais, sous l'action du couplage AF, les deux couches se retournent simultanément pour conserver la configuration AP qui minimise l'énergie totale du système. Ce mécanisme montre clairement que l'AAF se comporte comme un monobloc rigide, d'où la dénomination de champ coercitif de l'AAF pour  $H_c^{\text{AAF}}$ . La configuration antiparallèle des moments magnétiques est conservée jusqu'au champ  $H = -H_P$ .

*Du champ de plateau  $-H_p$  au champ de saturation négatif  $-H_s$*

On observe un comportement similaire à celui entre  $H_s$  et  $H_p$ .

Pour une analyse plus exhaustive du fonctionnement d'un AAF dans un champ magnétique extérieur, à l'échelle macro et micromagnétique, nous orientons le lecteur vers la thèse de Coriolan Tiusan [Tiusan\_thèse\_2000] ainsi que vers les références [Tiusan\_PRB61\_2000 ; Tiusan\_PRB64\_2001].

### III.3.2.2 Comparaison cycle expérimental/cycle théorique

La figure III-16 illustre le cycle d'aimantation expérimental en fonction du champ magnétique suivant la direction  $[100]_{Fe}$  pour un échantillon tel que  $t_1=300\text{Å}$  et  $t_2=100\text{Å}$ . Les mesures magnétiques expérimentales sont en bon accord qualitatif avec le cycle d'aimantation calculé et illustré au paragraphe précédent. Les valeurs des champs de plateau et de saturation sont d'environ 100Oe et 150Oe, respectivement, qu'il s'agisse du cycle calculé ou du cycle expérimental.

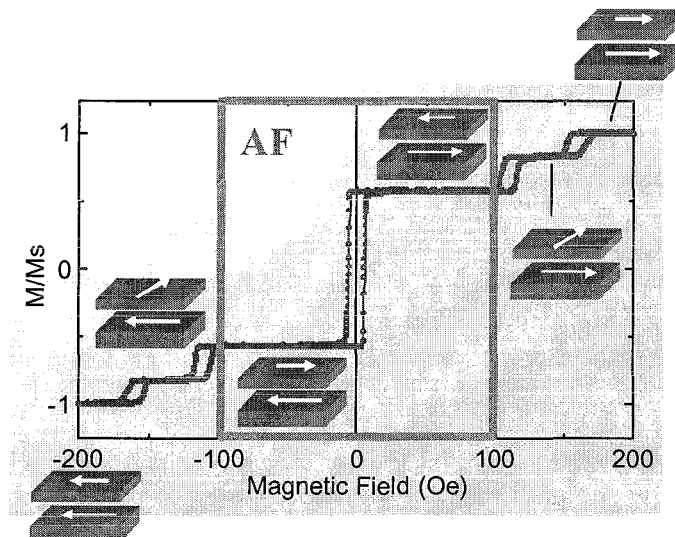


figure III-16

*Cycle expérimental  $M(H)$  pour un système AAF. Entre  $-100\text{Oe}$  et  $+100\text{Oe}$  ( $\pm H_p$ ), l'AAF se comporte comme un monobloc magnétique rigide.*

On peut cependant noter quelques différences. D'abord le champ coercitif simulé de l'AAF est plus fort que la valeur expérimentale. Cela vient du fait que le modèle utilisé est basé uniquement sur le modèle de retournement par rotation qui n'est valable que pour  $H_s$  et  $H_p$ . Ensuite, le cycle expérimental présente des petites hystérèses entre les cycles aller et retour aux valeurs  $H_p$  et  $H_s$ . Ce phénomène s'explique par la création de domaines magnétiques dans la couche fine de l'AAF pendant son renversement [Persat\_JMMM\_165\_1997 ; Tiusan\_PRB61\_2000 ; Tiusan\_PRB64\_2001]. En effet, le blocage des parois sur des inhomogénéités magnétiques lors du cycle retour explique ce phénomène d'hystérésis qui n'est pas pris en compte dans le modèle de

simulation. La petite hystérèse constatée dans le cycle théorique (figure III-16) a une origine numérique : les états initiaux ne sont pas identiques lors de la propagation du minimum d'énergie : le système ne va pas basculer dans les mêmes puits de potentiel pour les mêmes valeurs du champ.

Enfin, le cycle expérimental montre un plateau entre  $H_c$  et  $H_c'$ , que l'on peut retrouver dans la simulation mais pour des valeurs des constantes d'anisotropie extrêmement élevées. Ceci traduit simplement le fait qu'en réalité, le champ coercitif selon l'axe facile ne peut pas être expliqué dans cette approche simpliste. L'origine du renversement magnétique provient des processus de nucléation-propagation, activation thermique, mécanismes qui ne sont pas considérés dans le modèle de type Stoner-Wohlfarth de renversement par rotation pure.

### III.3.2.3 Comparaison avec un système polycristallin

Les systèmes magnétiques polycristallins sont caractérisés par une absence d'anisotropie magnétocristalline. Afin de mieux faire ressortir le rôle joué par cette dernière sur les mécanismes de renversement de notre système, nous faisons dans ce paragraphe une comparaison avec une simulation telle que  $K=0$ .

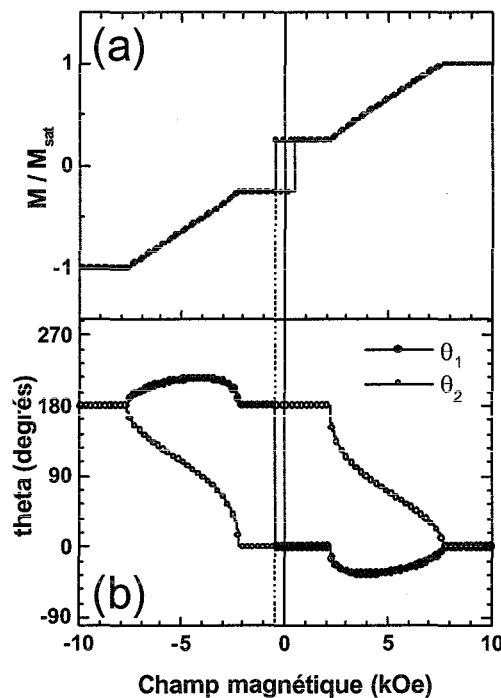


figure III-17

Calcul théorique, dans un modèle analytique monodomaine, pour l'évolution magnétique d'un AAF sous champ. L'absence d'anisotropie ne permet pas de stabiliser une configuration des aimantations à  $90^\circ$  [Tiusan\_thèse\_2000].

a) Cycle d'aimantation

b) Evolution des angles  $\theta_1$  et  $\theta_2$ .

Le résultat d'une telle simulation est illustré à la figure III-17 : les couches magnétiques présentent une rotation continue et relativement régulière qui se traduit par l'absence d'un plateau entre  $H_S$  et  $H_P$  dans le cycle d'aimantation. Ainsi, la comparaison avec la figure III-15 montre que l'anisotropie stabilise une configuration des aimantations à  $90^\circ$  en ajoutant une énergie  $E_{anis}$  à la compétition entre  $E_{Zeeman}$  et  $E_{couplage}$ .

### III.3.3 Calcul analytique de $H_c^{AAF}$ , $H_S$ et $H_P$

#### III.3.3.1 Mécanisme de coercivité dans les systèmes AAF

L'une des propriétés remarquables d'un système AAF est le contrôle du champ coercitif en fonction des épaisseurs des couches magnétiques. Cette propriété repose sur la compétition entre :

- la friction magnétique qui s'oppose à la rotation de l'aimantation [vandenBerg\_IEEE32\_1996] ; elle est d'autant plus grande que le volume magnétique total ( $m_1+m_2$ ) est important. Elle tend à augmenter le champ coercitif des couches, grossièrement d'un facteur ( $m_1+m_2$ ) ; le lecteur pourra trouver plus de détails sur cette notion de friction magnétique dans la thèse de Coriolan Tiusan [Tiusan\_thèse\_2000].
- l'énergie Zeeman totale du système d'aimantation réduite ( $m_1-m_2$ ) ; ce terme exprime la sensibilité réduite du monobloc AAF au champ magnétique.

En supposant que les champs coercitifs des couches magnétiques sont indépendants de leurs épaisseurs, la relation entre le champ coercitif d'une couche unique,  $H_c^{unique}$ , et celui de l'AAF s'écrit alors :

$$(m_1 - m_2) \times H_c^{AAF} = (m_1 + m_2) \times H_c^{unique}$$

$$\text{soit } H_c^{AAF} = Q H_c^{unique} \text{ avec } Q = \frac{(m_1 + m_2)}{(m_1 - m_2)} \quad \text{(III-25)}$$

Le facteur  $Q$  étant supérieur à 1, le champ coercitif d'un AAF est amplifié par rapport à celui d'une couche simple et il peut être modulé en jouant sur  $m_1$  et  $m_2$ .

Etant donnée l'équation (III-25), la rigidité de l'AAF semble être ajustable à volonté en modifiant le facteur  $Q$ . Si l'on considère une couche unique de coercivité fixe, la rigidité de l'AAF peut être augmentée en augmentant le facteur  $Q$ . Cependant, dans ce cas le degré d'alignement des aimantations des couches magnétiques de l'AAF devient de plus en plus faible. En effet, dans la fenêtre de champ comprise entre  $+H_P$  et  $-H_P$ , la déflexion angulaire de l'aimantation dans les couches de l'AAF augmente avec l'augmentation du  $Q$  [vandenBerg\_IEEE32\_1996].

### III.3.3.2 Valeurs analytiques des champs $H_S$ et $H_P$

La résolution analytique complète de la minimisation numérique de l'équation de la fonctionnelle d'énergie est effectuée à l'annexe D. Elle donne les valeurs des champs de saturation  $H_S$  et de plateau  $H_P$  pour des orientations suivant l'axe facile ( $\varphi=0$ ) ou difficile ( $\varphi=\pi/4$ ).

Suivant l'axe facile, la résolution analytique donne les expressions des champs de saturation ( $H_S^F$ ) et de plateau ( $H_P^F$ ) :

$$H_S^F + \frac{K_1 + K_2}{M} = -\frac{J}{2M} \left( \frac{t_1 + t_2}{t_1 t_2} \right) \left[ 1 + \sqrt{1 + \frac{4t_1 t_2 (t_1 - t_2) (K_2 - K_1)}{(t_1 + t_2)^2 J} + \frac{4t_1^2 t_2^2 (K_2 - K_1)^2}{(t_1 + t_2)^2 J^2}} \right] \quad (\text{III-26})$$

$$H_P^F - \frac{K_2 - K_1}{M} = -\frac{J}{2M} \left( \frac{t_1 - t_2}{t_1 t_2} \right) \left[ 1 + \sqrt{1 - \frac{4t_1 t_2 (t_1 + t_2) (K_1 + K_2)}{(t_1 - t_2)^2 J} + \frac{4t_1^2 t_2^2 (K_1 + K_2)^2}{(t_1 - t_2)^2 J^2}} \right] \quad (\text{III-27})$$

Si on considère le cas limite d'un système polycristallin avec des couches magnétiques parfaitement isotropes, il n'y a pas d'anisotropie magnétique soit  $K_1=K_2=0$ , ce qui donne :

$$H_S = -\frac{J}{M} \left( \frac{t_1 + t_2}{t_1 t_2} \right) \quad \text{et} \quad H_P = -\frac{J}{M} \left( \frac{t_1 - t_2}{t_1 t_2} \right). \quad (\text{III-28})$$

On retrouve bien l'expression  $\frac{H_S}{H_P} = \frac{t_1 + t_2}{t_1 - t_2} = Q$  obtenue dans le cas d'un système polycristallin

[vandenBerg\_IEEE32\_1996].

Ces calculs montrent que les valeurs de  $H_S$  et  $H_P$  sont entièrement contrôlées par les paramètres intrinsèques que sont l'épaisseur de la couche isolante (qui détermine l'intensité  $J$  du couplage AF), les épaisseurs et les anisotropies des couches magnétiques. De plus, nous pouvons ajuster la rigidité magnétique de l'AAF en faisant varier les épaisseurs de ces couches magnétiques de manière à modifier le facteur  $Q$ . La seule contrainte est alors d'origine épitaxiale : la croissance doit nous permettre de conserver des couches extrêmement planes.

### III.3.4 Le transport tunnel utilisé comme sonde du magnétisme

En utilisant comme base de travail un modèle monodomaine, nous avons pu analyser et comprendre les aspects qualitatifs principaux et les facteurs clés du fonctionnement de l'AAF. L'utilisation de l'AAF comme couche magnétique rigide pour les JTMs peut se faire dans la



fenêtre en champ où il se comporte comme un bloc de moment net réduit  $m_1 - m_2$ . Dans ce cas, le moment magnétique net doit être le plus rigide possible. Pour cela et d'après les conclusions tirées des modèles exposés précédemment, nous pouvons modifier trois facteurs clés qui déterminent sur la rigidité de l'AAF (équation III-25) :

- le facteur Q (déterminé par l'épaisseur relative des couches magnétiques),
- la rigidité magnétique des couches magnétiques uniques,
- le couplage intercouche qui doit être le plus grand possible.

Il est connu que le magnétisme de chacune des couches magnétiques de l'AAF peut être étudié en utilisant l'effet tunnel polarisé en spin comme sonde magnétique [Tiusan\_PRB64\_2001]. La couche, dont le comportement sous champ est à analyser, est utilisée comme une couche magnétique rigide dans une JTM de type AAF/MgO/Fe, dans laquelle l'une des électrodes magnétiques de l'AAF est en contact avec la barrière tunnel épaisse de MgO (voir figure III-18). La qualité cristallographique d'une telle structure à double barrière a été décrite au paragraphe II.2.2.7.

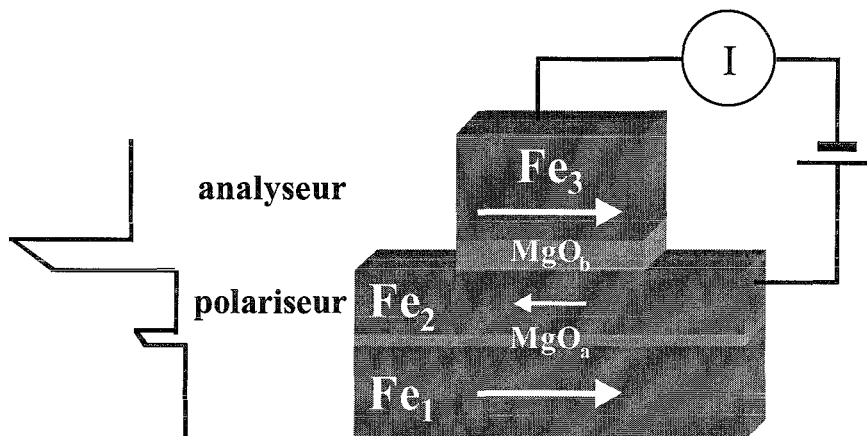


figure III-18

Illustration de l'utilisation du système AAF comme sonde du magnétisme.

La présence de la barrière tunnel de l'AAF (couche MgO<sub>a</sub>) rend les mécanismes de transport essentiellement sensibles au magnétisme des couches Fe<sub>2</sub> et Fe<sub>3</sub>. En effet, la probabilité pour que les électrons issus de la couche Fe<sub>3</sub> nous renseignent sur la configuration magnétique de la couche Fe<sub>1</sub> est extrêmement faible : cela nécessiterait un effet tunnel cohérent à travers les deux barrières. L'épaisseur de la couche Fe<sub>2</sub> étant assez importante (typiquement 50Å), la perte de cohérence dans cette couche est fortement probable. Ainsi, les électrons qui passent par effet tunnel à travers la barrière MgO<sub>b</sub> apportent uniquement une information sur les couches Fe<sub>2</sub> et Fe<sub>3</sub>. En conclusion, alors que les techniques classiques de mesures d'aimantation fournissent une information globale, le transport tunnel permet d'étudier le magnétisme des couches adjacentes à la barrière isolante MgO<sub>b</sub> en étant extrêmement sensible à l'angle  $\theta$  (entre les couches Fe<sub>2</sub> et Fe<sub>3</sub>). En effet, dans ce

système polariseur-analyseur, l'aimantation de l'analyseur (couche Fe<sub>3</sub> douce) est parfaitement définie et son retournement est abrupt. Ainsi, la variation de la résistance tunnel en fonction de l'angle  $\theta$  va traduire une modification de l'aimantation du polariseur (couche Fe<sub>2</sub>) puisque

$$R(\theta) = \left( \frac{R_P + R_{AP}}{2} \right) + \left( \frac{R_P - R_{AP}}{2} \right) \cos \theta .$$

L'architecture proposée est illustrée à la figure III-19b : le système AAF est constitué d'une première couche de Fe de 100Å couplée antiferromagnétiquement avec une couche de 50Å de Fe à travers une fine barrière tunnel de MgO (6Å). La jonction tunnel proprement dite est réalisée en ajoutant une barrière de 25Å de MgO puis une couche douce de 100Å de Fe. La figure III-19a illustre le cycle d'aimantation suivant l'axe facile du Fe et la figure III-19b représente la variation de la résistance tunnel en fonction du champ magnétique. Cette variation est directement liée à l'angle entre les couches magnétique intermédiaire et supérieure. A fort champ magnétique, toutes les couches sont orientées dans le sens du champ, la résistance tunnel est à sa valeur minimale (état 1, figure III-19). Lorsque le champ diminue, la couche Fe<sub>2</sub> subit la compétition entre l'énergie Zeeman, l'énergie d'anisotropie et l'énergie de couplage, comme cela a été vu précédemment. Cette couche se retourne rapidement au voisinage de H<sub>S</sub> et H<sub>P</sub> mais très lentement entre les deux champs, en accord avec l'analyse magnétique d'un AAF effectuée au paragraphe III.3.2 (état 2, figure III-19). Pour un champ d'environ 250Oe, elle se trouve dans une direction opposée par rapport à l'aimantation de la couche Fe<sub>3</sub> : la résistance atteint sa valeur maximale (état 3, figure III-19). Lorsque le champ devient faiblement négatif, les couches Fe<sub>1</sub> et Fe<sub>3</sub> se retournent. A cet instant, les couches supérieure et intermédiaire sont donc dans la même orientation magnétique. Cela se traduit par la brusque chute de la résistance (état 4, figure III-19). La valeur de la résistance mesurée est alors très proche de celle juste avant la transition de l'état 2 à l'état 3. Ceci indique que l'aimantation de la couche Fe<sub>2</sub> préfère s'orienter à 90° par rapport à celle de la couche Fe<sub>3</sub>. Enfin, l'AAF se retourne à son tour, le système {couche intermédiaire – couche supérieure} se trouve à nouveau dans une configuration antiparallèle, ce qui se traduit par un retour de la résistance à sa valeur maximale (état 5, figure III-19).

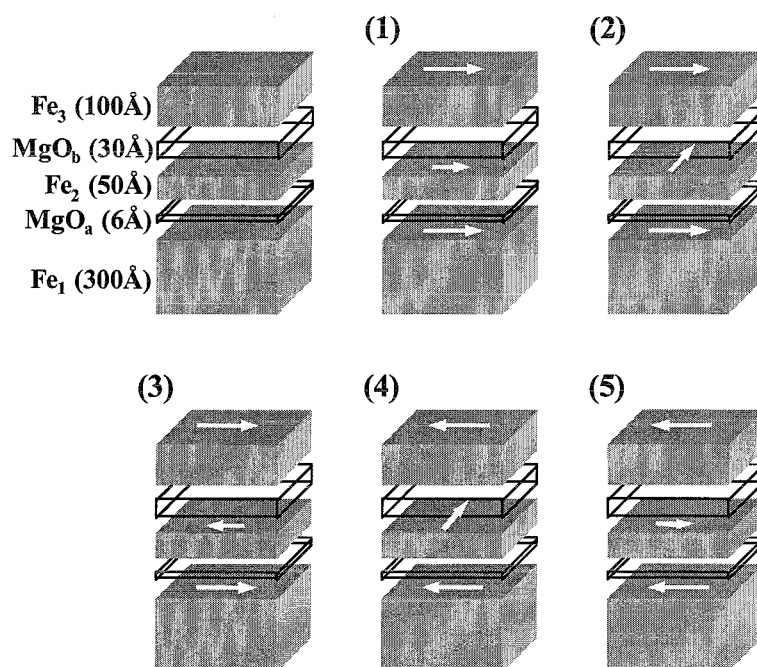
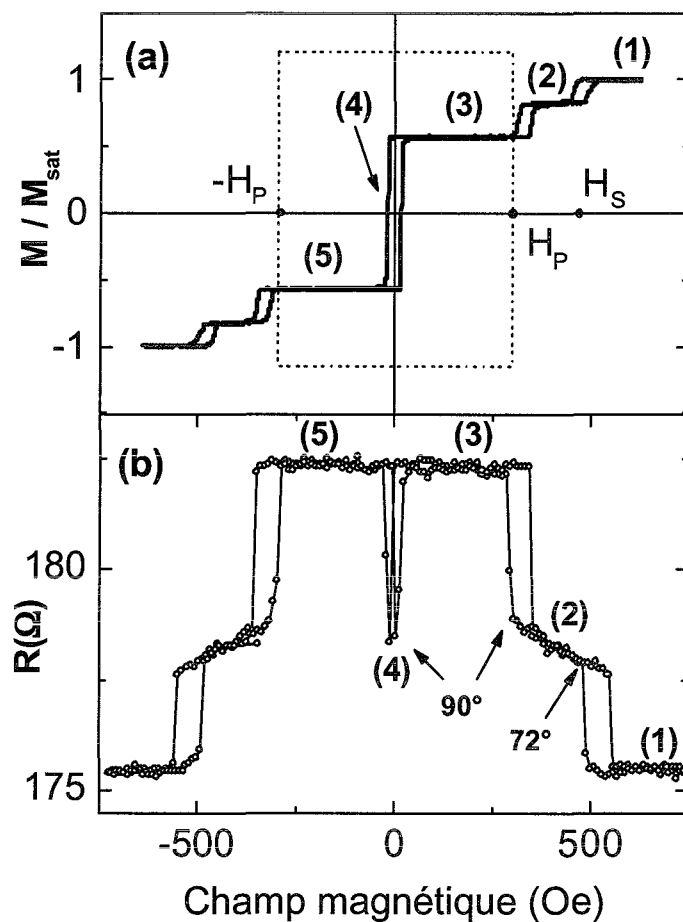


figure III-19

a) Cycle d'aimantation pour un échantillon  $\text{MgO}/\text{Fe}(300\text{Å})/\text{MgO}(6\text{Å})/\text{Fe}(50\text{Å})/\text{MgO}(30\text{Å})/\text{Fe}(100\text{Å})/\text{Pd}/\text{Au}$   
 b) Mesure de transport tunnel pour le même échantillon. Les angles indiqués ont été déduits des valeurs des résistances.

### III.3.5 Constantes d'anisotropie différentes pour les deux axes faciles

Les mesures magnétiques révèlent que les deux axes faciles du Fe ne sont pas équivalents. Ceci est illustré à la figure III-20 pour un échantillon Fe(300Å)/MgO(6Å)/Fe(50Å) : les valeurs des champs de saturation  $H_S$  ne sont pas identiques ; il en est de même pour  $H_P$ . Nous avons voulu quantifier cette différence dans les valeurs des constantes d'anisotropie. Notons  $K_1$  et  $K_2$  les constantes d'anisotropie d'ordre 4 pour les deux couches de Fe et  $k_{12}$  et  $k_{22}$  leurs constantes d'anisotropie uniaxiale.

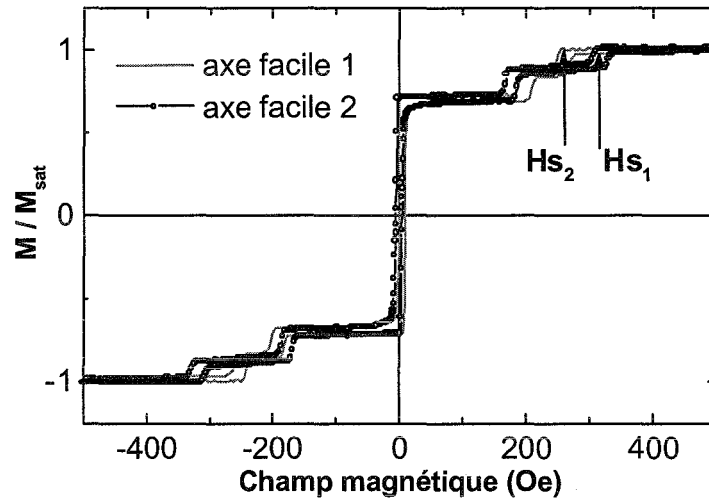


figure III-20

Cycle d'aimantation pour un échantillon MgO//Fe(30Å)/MgO(6Å)/Fe(50Å)/Pd(200Å). Les deux axes faciles ne sont pas équivalents comme le montre les valeurs différentes des champs de saturation  $H_{S1}$  et  $H_{S2}$ .

L'énergie totale du système s'écrit alors :

$$E_{\text{totale}} = -H \times (M_1 t_1 \cos \theta_1 + M_2 t_2 \cos \theta_2) - J \cos(\theta_1 - \theta_2) + \frac{K_1 t_1}{4} \sin^2 2(\theta_1 - \varphi) + \frac{K_2 t_2}{4} \sin^2 2(\theta_2 - \varphi) + k_{12} t_1 \sin^2(\theta_1 - \varphi) + k_{22} t_2 \sin^2(\theta_2 - \varphi) \quad (\text{III-29})$$

La résolution complète du minimum d'énergie et l'extraction des formules exprimant  $H_S$  et  $H_P$  en fonction des différents paramètres est détaillée à l'annexe D. En supposant  $K_1=K_2=K$  et  $k_{12}=k_{22}=k$ , on obtient les équations suivantes :

$$H_{S_1} + \frac{2(K+k)}{M} = -\frac{J}{M} \left( \frac{1}{t_1} + \frac{1}{t_2} \right) \text{ et } H_{S_2} + \frac{2(K-k)}{M} = -\frac{J}{M} \left( \frac{1}{t_1} + \frac{1}{t_2} \right) \quad (\text{III-30})$$

$$\text{dont la résolution donne } k = \frac{M}{4} (H_{S_1} - H_{S_2}). \quad (\text{III-31})$$

Compte tenu des valeurs extraites de la figure III-20 ( $H_{S1}=312\text{Oe}$  ;  $H_{S2}=260\text{Oe}$  ;  $M=1714\text{emu/cm}^3$ ), le « déséquilibre » entre les deux axes faciles est d'environ  $2.2 \times 10^4 \text{erg/cm}^2$  soit environ 5% de la valeur de la constante d'anisotropie d'ordre 4 du Fe. Cette anisotropie magnétique uniaxiale a déjà été observée lors de la croissance de Fe [Park\_APL66\_1995] ou de multicouches Fe/Pd [Childress\_JMMM130\_1994] sous incidence oblique par MBE. De plus, même dans le cas de dépôt sous incidence normale, la texture de la surface du substrat peut expliquer une anisotropie uniaxiale supplémentaire [Costa-Krämer\_JMMM210\_2000] (dépôt par pulvérisation triode).

### III.3.6 Utilisation d'une couche tampon de Pd

Il a été vu au paragraphe III.2.1 que lorsque l'épaisseur de la couche inférieure de Fe est trop faible, la détérioration de la croissance de la fine barrière modifie la forme des cycles d'aimantation. Nous avons contourné cette limitation par l'optimisation d'une couche tampon de Pd. En effet, l'objectif est l'élaboration de puits quantiques magnétiques et l'étude de leur influence en terme d'interférences électroniques sur l'intensité du couplage (voir les perspectives au paragraphe III.5). Cette couche tampon non magnétique en Pd autorise le dépôt de films de Fe extrêmement minces (typiquement 10-40Å) dont la planéité est contrôlée grâce aux oscillations d'intensité RHEED, comme cela a été annoncé au paragraphe II.3.3. Les mesures des cycles d'aimantation montrent que nous avons toujours un couplage AF entre les couches et que les deux axes faciles ne sont pas équivalents (figure III-21).

Cependant, l'épitaxie de cette couche tampon nécessite une couche d'accrochage d'environ 15Å de Fe sur le substrat de MgO. Cette couche donne alors un signal magnétique qui vient se superposer au cycle d'aimantation du système Fe/MgO/Fe/Co. Ce signal parasite sera enlevé en utilisant une couche d'accrochage de Cr, matériau antiferromagnétique de structure cubique centrée et de paramètre de maille  $a_{Cr}=2.91\text{Å}$ .

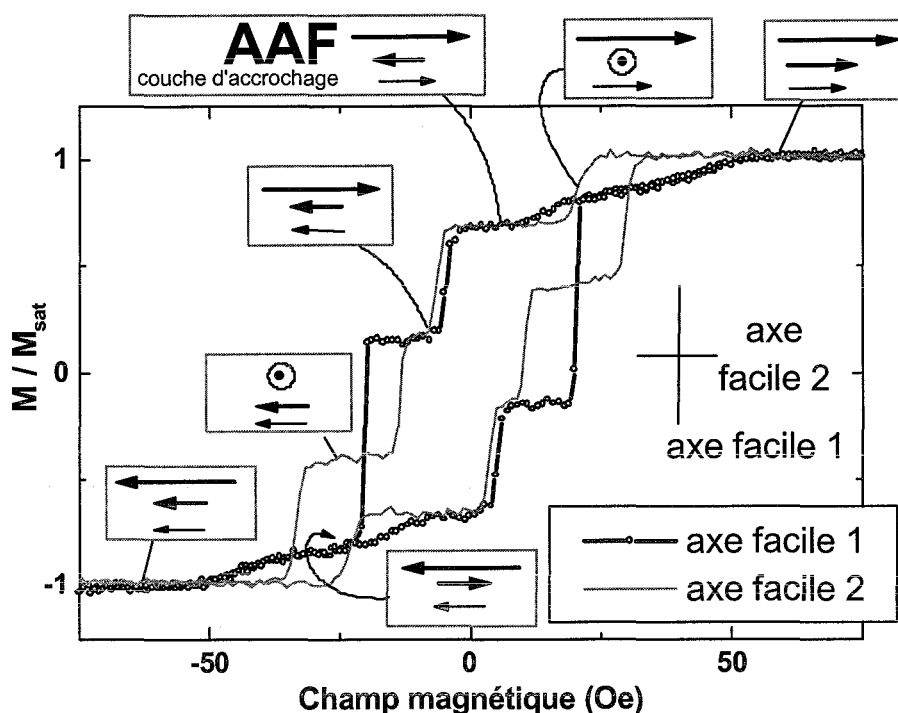


figure III-21

Cycle d'aimantation d'un échantillon MgO//Fe(15Å)/Pd(400Å)/Fe(11Å)/MgO(6Å)/Fe(50Å)/Pd.  
 Les mécanismes de renversement sont différents suivant les deux axes faciles.

### III.4 Conclusion

La maîtrise de l'anisotropie magnétocristalline grâce à l'épitaxie nous a permis d'élaborer des multicouches présentant les propriétés magnétiques satisfaisantes : les deux films magnétiques ont le même axe facile et, pour un champ appliqué suivant ce dernier, les renversements des aimantations sont abrupts, bien définis et se produisent pour deux champs coercitifs nettement différents, créant ainsi une large fenêtre de champ dans laquelle on peut aisément modifier la configuration magnétique du système, l'un des critères essentiels des JTM.

Lorsque l'épaisseur de MgO est inférieure à 8Å, le retournement de la couche douce de Fe se produit en champ positif. Ce phénomène a été attribué à un couplage magnétique par effet tunnel entre les deux électrodes ferromagnétiques d'une jonction tunnel du type Fe/MgO/Fe. La forme de la variation du couplage expérimental avec l'épaisseur de l'isolant, la valeur quantitative du couplage, et enfin la gamme d'épaisseur de MgO dans laquelle le couplage antiferromagnétique est observé, sont en bon accord avec les modèles théoriques d'un couplage d'échange entre deux couches magnétiques par effet tunnel quantique polarisé en spin. Nous avons également donné une ébauche d'explication dans le cadre fondamental propre aux systèmes épitaxiés par l'étude d'états de résonance interfaciale.

Nous faisons remarquer que ce couplage d'échange par effet tunnel est une preuve supplémentaire de la planéité des couches de Fe et de MgO mais cette fois-ci à grande échelle. Sa nature *antiferromagnétique* nous assure en effet que la rugosité de ces couches est extrêmement faible puisque la contribution des *pinholes* est négligeable jusqu'à  $d_{\text{MgO}}=5\text{\AA}$ .

De nouveaux systèmes antiferromagnétiques artificiels utilisant ce couplage antiferromagnétique ont été élaborés. De telles structures sont généralement utilisées pour durcir une couche magnétique, notamment dans les architectures de type MRAM. Les valeurs des champs de plateau,  $H_P$ , et de saturation,  $H_S$ , sont entièrement contrôlées par les paramètres intrinsèques que sont l'épaisseur de l'isolant (qui gouverne l'intensité de couplage  $J$ ) et les anisotropies et épaisseurs des couches de Fe (qui déterminent également l'amplification de  $H_c^{\text{AAF}}$ ). Nous avons ensuite élaboré des JTM de type AAF/MgO/Fe, dans lesquelles l'AAF est l'une des électrodes magnétiques de la JTM. Le transport tunnel est alors utilisé comme sonde du magnétisme et la magnétorésistance tunnel reflète la configuration magnétique de la couche supérieure de l'AAF, en contact avec la barrière tunnel.

Dans les multicouches Fe/MgO/Fe, les interactions magnétiques se font dans le cadre d'un transport tunnel. De faibles épaisseurs de barrière se traduisent par un couplage dont l'étude nous renseigne sur les paramètres qui caractérisent ce système à l'équilibre. Le chapitre IV suivant décrit les effets de filtrage en symétrie électronique propres au système Fe/MgO/Fe ; ces effets seront mesurés au chapitre V pour de plus importantes épaisseurs de barrière.

### **III.5 Perspectives**

Parmi les perspectives liées à ce couplage, nous envisageons la réalisation d'empilements du type MgO//Pd/Fe( $d_{\text{Fe}}$ =quelques plans)/MgO( $d_{\text{MgO}}=6\text{\AA}$ )/Fe (figure III-22) afin de mesurer les modifications de l'intensité du couplage  $J$  via l'influence des interférences électroniques au sein du puits quantique magnétique. Nous espérons confronter nos mesures expérimentales avec les résultats prédits par les modèles théoriques [Zhang\_PRB57\_1998].

Nous prévoyons également de déposer des espèces chimiques contaminantes aux interfaces pour en mesurer l'influence sur le couplage. En effet, si l'hypothèse d'un couplage par résonance interfaciale s'avère exacte, nous verrons au chapitre V que ce transport résonant se produit via une orbitale  $d_{z^2}$ , orbitale non affectée par les contaminants n'ayant que des orbitales  $s$  et  $p$  (ce qui est le cas du carbone qui n'influe pas le couplage AF). En revanche, le dépôt d'espèces chimiques possédant des orbitales  $d$  pourrait modifier l'intensité et le signe du couplage en affectant la résonance.

Les approches théoriques du couplage par effet tunnel qui ont été analysées dans cette partie correspondent à un système à l'équilibre, c'est-à-dire sans tension appliquée à ses bornes. Des modèles plus complexes et basés sur le formalisme de non-équilibre de Keldysh ont été développés [Schwabe\_PRB54\_1996 ; Heide\_PRB59\_1999]. L'application d'une tension modifie les densités de courants polarisés en spin et permet de passer alternativement d'un couplage F à une interaction AF entre les couches. La mesure dynamique du couplage nécessite la structuration de jonctions par lithographie. De notre côté, aucune mise en évidence expérimentale n'a été possible à cause de la nécessaire extrême finesse de la barrière de MgO ( $d_{\text{MgO}} < 8 \text{ \AA}$ ).

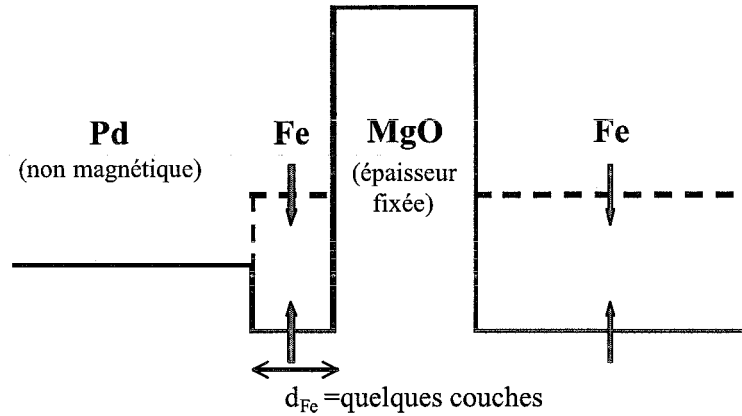


figure III-22

Profil énergétique et illustration du principe d'un puits quantique : les interférences électroniques au sein de la fine couche de Fe peuvent modifier l'intensité du couplage en fonction de l'épaisseur  $d_{\text{Fe}}$ .

Enfin, nous envisageons la poursuite des premiers essais sur des structures en géométrie CIP (*Current In Plane*) analogue à celle déjà employée dans des capteurs GMR mais en utilisant la couche *nano-oxide layer* pour amplifier le signal, comme illustré à la figure III-23. En effet, contrairement aux systèmes AAF ordinaires, constitués de couches séparatrices métalliques non magnétiques, notre système AAF présente un grand avantage pour les capteurs utilisant la GMR : la fine couche isolante agit comme une couche d'oxyde nanométrique qui confine les électrons dans la partie active du capteur, réduisant la perte des électrons dans la couche tampon et contribuant ainsi à l'augmentation de la GMR.

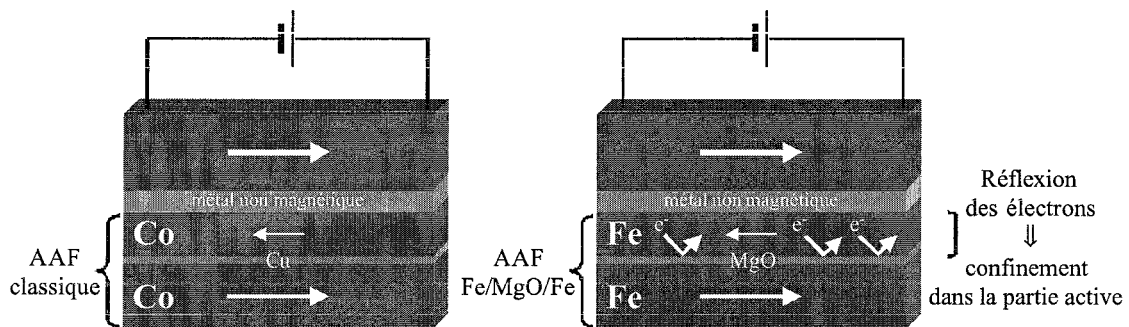


figure III-23

Comparaison entre une structure type vanne de spin employant un système AAF classique et une structure analogue constitué d'un AAF avec une couche séparatrice isolante. Cette fine couche isolante joue le rôle de réflecteur pour les électrons en les confinant dans la partie active de l'empilement.





## Chapitre IV

# Approche théorique du transport tunnel dans les systèmes épitaxiés – l'exemple du système Fe/MgO/Fe

Les modèles de Jullière et des électrons libres décrits au premier chapitre sont suffisants pour expliquer la plupart des propriétés et résultats magnétorésistifs observés dans une JTM ayant des électrodes polycristallines (ou amorphes) et une barrière amorphe. En revanche, dans les JTM complètement épitaxiées, l'ordre cristallin introduit une modification notable du transport électronique. Le but de ce chapitre est d'exposer ces particularités et de donner au lecteur les points clés indispensables pour aborder les résultats expérimentaux qui seront discutés au chapitre suivant.

Nous verrons tout d'abord les deux aspects principaux des phénomènes du transport polarisé en spin dans les systèmes épitaxiés : le premier paragraphe décrit la sélection des états de Bloch dans les électrodes ferromagnétiques et le filtrage de ces électrons par la barrière en fonction de leur symétrie électronique est expliqué au paragraphe IV.2. Ceci permettra une première approche, qualitative, du transport dans notre système (paragraphe IV.3). Ensuite, nous décrirons dans le paragraphe IV.4 la méthode de calcul utilisée dans les articles théoriques traitant des mécanismes de transport dans les systèmes épitaxiés. Le paragraphe IV.5 mettra en avant l'importance de la contribution des états de résonance interfaciale à la conductance, notamment pour le régime des faibles épaisseurs. Enfin, nous traiterons l'influence des liaisons chimiques à l'interface, en particulier en présence d'une interface FeO (paragraphe IV.6).

Dans tout ce qui suit, l'adjectif «*majoritaire*» se rapportera aux électrons de spin majoritaire (spin *up*) et sera parfois abrégé «*maj*» ; l'adjectif «*parallèle*» correspondra à la configuration parallèle des aimantations et pourra être symbolisé par «*P*». Les simplifications équivalentes seront faites pour «*minoritaire*» (*min*) et *antiparallèle* (*AP*). De même, lorsque rien n'est précisé, le terme «*canal majoritaire*» représentera le canal de conduction des électrons majoritaires de

la première électrode vers la DOS du spin majoritaire de la deuxième électrode (il s'agit donc de la configuration parallèle des aimantations) ; de même pour le « canal minoritaire ». Dans le cas de la configuration antiparallèle des aimantations, les canaux de conduction seront éventuellement symbolisés par « *maj* → *min* » et « *min* → *maj* » en accord avec les densités d'états des électrodes émettrice et collectrice auxquelles ils se réfèrent. Ces abus de langage permettront une lecture moins lourde des phrases et des équations.

## **IV.1 Sélection des états de Bloch dans les électrodes**

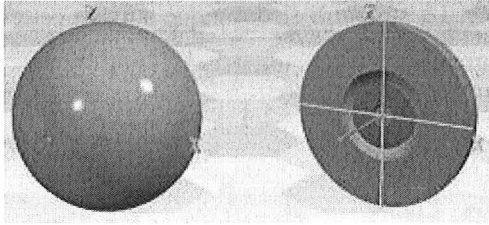
Les jonctions tunnel réalisées dans le cadre de cette thèse sont basées sur le système épitaxié Fe/MgO/Fe. L'épitaxie signifie que les atomes s'empilent les uns sur les autres de manière ordonnée et ceci sur des distances comparables à la taille du substrat. Par conséquent, les matériaux considérés sont des cristaux de symétrie particulière et dont le potentiel possède alors les mêmes propriétés de symétrie. Le potentiel vu par les électrons n'est alors plus constant, comme dans le modèle des électrons libres, mais possède la symétrie du cristal. Le potentiel étant périodique, les électrons sont décrits par des ondes de Bloch  $\psi_{\mathbf{k}}^n(\mathbf{r}) = u_{\mathbf{k}}^n(\mathbf{r}) \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$  où  $u_{\mathbf{k}}^n(\mathbf{r})$  est une fonction périodique avec la périodicité du réseau ( $n$  est l'indice de bande).

Le Fe s'épitaxie selon une structure cubique centrée, correspondant à un réseau de Bravais cubique centré. Du point de vue de la symétrie, un réseau de Bravais est caractérisé par la donnée de toutes les opérations rigides (i.e. qui conservent la distance entre tous les points) qui transforment le réseau en lui-même. Cet ensemble d'opérations est appelé groupe de symétrie ou groupe d'espace du réseau de Bravais. Du fait de la symétrie de l'Hamiltonien décrivant les électrons dans un cristal, les énergies et les états propres de ces derniers sont déduits des représentations irréductibles du groupe d'espace. De la même façon qu'il est connu que l'invariance par translation permet de restreindre l'espace réciproque à la première zone de Brillouin (zone qui contient alors toutes les fonctions de Bloch inéquivalentes du cristal), la théorie des groupes est un outil puissant pour étudier les propriétés électroniques dans les cristaux. Dans cette partie, nous nous contenterons d'utiliser les résultats de la théorie des groupes pour en extraire les données utiles à la compréhension des phénomènes de transport dans notre système épitaxié. Le lecteur trouvera de plus amples informations dans l'ouvrage suivant [Cracknell\_1975].

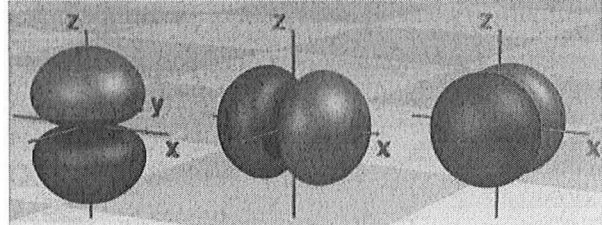
### **IV.1.1 Orbitales atomiques du Fe**

Le Fe a pour numéro atomique  $Z=26$ , sa structure électronique est  $[\text{Ar}] 3d^6 4s^2$ . La structure en bandes du Fe est donc constituée des orbitales atomiques de type  $s$ ,  $p$  et  $d$ , dont certaines sont

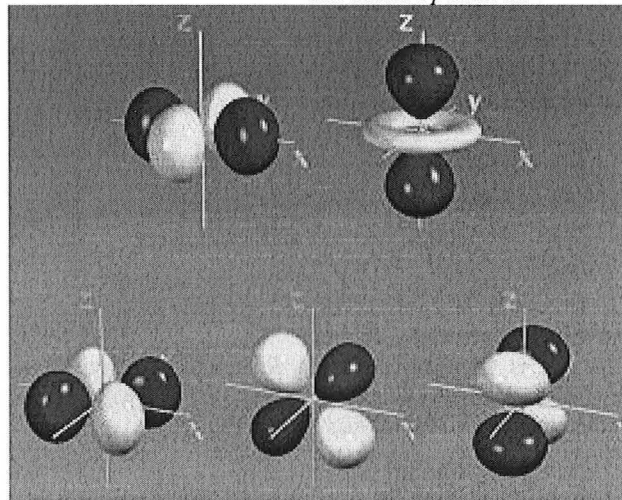
représentées à la figure IV-1. On peut déjà remarquer que certaines orbitales présentent des symétries communes, par exemple les orbitales de type  $p_z$  et  $d_{2z^2-x^2-y^2}$  (encore appelée  $d_{3z^2-r^2}$  ou plus simplement  $d_{z^2}$ ) sont invariantes par rotation autour de l'axe  $z$ .



Orbitales de type  $s$ : symétrie sphérique mais la fonction d'onde change de signe à l'intérieur de la sphère, sauf pour l'orbitale  $1s$ .



Orbitales de type  $p$ : de gauche à droite :  $p_x$ ,  $p_y$ ,  $p_z$ . Les zones foncées correspondent à des valeurs négatives de la fonction d'onde et les zones claires à des valeurs positives.



Orbitales  $3d$  : de gauche à droite

- en haut :  $d_{x^2-y^2}$  et  $d_{2z^2-x^2-y^2}$

- en bas :  $d_{xy}$ ,  $d_{xz}$  et  $d_{yz}$

Les zones claires correspondent à des valeurs négatives de la fonction d'onde et les zones foncées à des valeurs positives.

figure IV-1

Représentations des orbitales atomiques suivant leur caractère. On peut remarquer que certaines orbitales possèdent des symétries semblables (ex :  $p_z$  et  $d_{2z^2-x^2-y^2}$  sont invariantes par rotation autour de  $z$ ) ([www.shef.ac.uk/chemistry/orbitron/index.html](http://www.shef.ac.uk/chemistry/orbitron/index.html)).

## IV.1.2 Zone de Brillouin et utilité de la théorie des groupes

La figure IV-2 représente la maille cubique centrée du Fe et les premières zones de Brillouin de volume et de surface<sup>28</sup> correspondantes. Nous verrons plus loin que le MgO est un isolant à gap

<sup>28</sup> La zone de Brillouin de surface est la projection de celle de volume suivant une direction particulière, ici suivant l'axe [001].

direct. Ainsi, le taux de décroissance des électrons dans la barrière tunnel est donné par  $\exp(-2\kappa d)$  avec  $\kappa = \sqrt{(2m/\hbar^2)(V_b - E_F + k_{\parallel}^2)}$  ( $V_b$  est le potentiel de la barrière). Le transport tunnel se fait préférentiellement perpendiculairement au plan  $(001)_{Fe}$  puisque les électrons pour lesquels  $k_{\parallel}=0$  sont favorisés. Cela correspond à la direction  $\Gamma$ -H dans l'espace réciproque tridimensionnel et à un transport au point  $\bar{\Gamma}$  dans la zone de Brillouin de surface. La structure électronique suivant cette direction, que l'on note  $\Delta$ , est donc particulièrement importante.

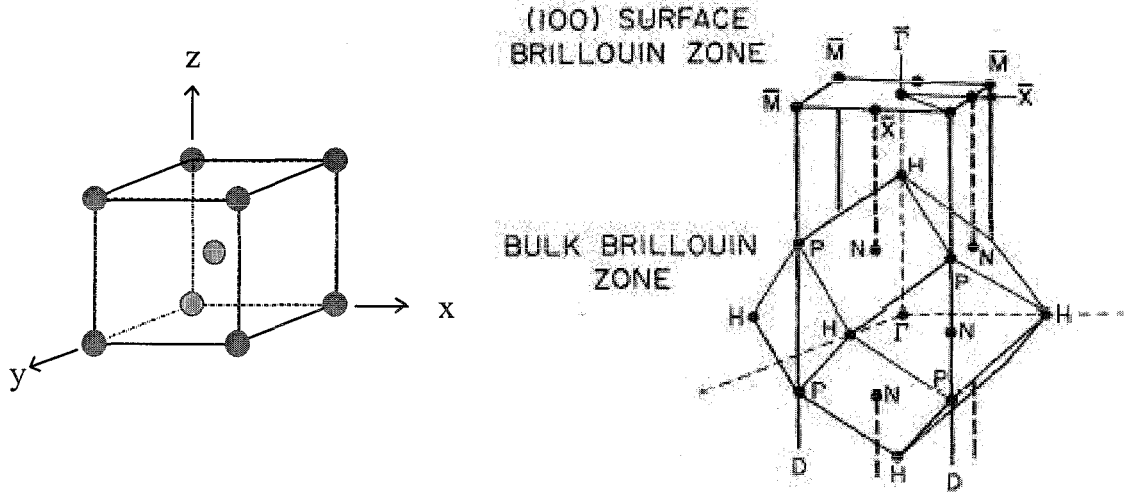


figure IV-2

Maille cubique centrée du Fe et première zone de Brillouin correspondante [Turner\_PRB30\_1984]. Le transport tunnel se fait préférentiellement suivant la normale à l'interface, i.e. suivant la direction  $\Gamma$ -H ( $\Delta$ ) dans l'espace réciproque, dans le système MgO(100)//Fe/MgO/Fe.

La théorie des groupes permet de classer les états électroniques suivant les propriétés de symétrie des orbitales qu'ils occupent. Sans entrer dans les détails, les représentations irréductibles (notées  $\Delta_i$  pour un transport tunnel suivant la direction  $\Delta$ ) caractérisent la symétrie des bandes électroniques. Ces bandes sont indexées par leur symétrie aux points et aux lignes de haute symétrie de l'espace réciproque. Les états de Bloch associés à une représentation irréductible  $\Delta_i$  sont décrits par une combinaison linéaire d'électrons de caractère  $s$ ,  $p$  ou  $d$  mais ayant des symétries bien définies. Le groupe d'espace du cristal de Fe est le groupe  $I m\bar{3}m$  (notation de Hermann-Maguin) ou  $O_h^9$  (notation de Schönflies). On définit le groupe du vecteur d'onde comme l'ensemble des opérations de symétrie qui laissent invariant un vecteur  $\mathbf{k}$  donné<sup>29</sup>. Le groupe du vecteur d'onde correspondant à la direction  $\Delta$  est le groupe ponctuel  $C_{4v}$  dont la table des caractères est donnée au tableau IV-1. Elle permet d'associer, en fonction de sa symétrie, chaque orbitale atomique (de  $1s$  aux cinq orbitales  $3d$  ( $3z^2-r^2$ ,  $x^2-y^2$ ,  $xy$ ,  $xz$  et  $yz$ )) à une représentation irréductible  $\Delta_i$ . Ainsi, chaque représentation irréductible  $\Delta_i$  correspond à une combinaison linéaire d'orbitales qui, sous toutes les opérations de symétrie de  $\Delta_i$ , se transforme en une autre combinaison linéaire

<sup>29</sup> Il s'agit nécessairement d'un sous-groupe du groupe d'espace du cristal.

des mêmes orbitales. Par abus de langage, nous associerons dorénavant l'électron avec la représentation irréductible de laquelle il relève, c'est-à-dire que nous emploierons indistinctement les symboles  $\Delta_i$  pour parler des états de Bloch ou de la symétrie correspondante.

$C_{4v}$	$E$	$2C_4$	$C_2$	$2\sigma_v$	$2\sigma_d$	
$A_1 (\Delta_1)$	1	1	1	1	1	$z ; x^2+y^2 ; z^2$
$A_2$	1	1	1	-1	-1	$R_z$
$B_1 (\Delta_2)$	1	-1	1	1	-1	$x^2-y^2$
$B_2 (\Delta_2')$	1	-1	1	-1	1	$xy$
$E (\Delta_5)$	2	0	-2	0	0	$(R_x, R_y) ; (xz, yz) ; (x, y)$

tableau IV-1

Table de caractères du groupe ponctuel de symétrie  $C_{4v}$ . Les nomenclatures des différentes symétries ne sont pas explicitées mais le lecteur pourra trouver toutes les informations à la référence suivante [Cracknell\_1975]. Les informations utiles à cette thèse sont situées aux première et dernière colonnes et permettent de comprendre le regroupement des orbitales dans différentes représentations irréductibles  $\Delta_i$ .

Considérons par exemple une bande de type  $p$  construite à partir des orbitales atomiques  $p_x, p_y$  et  $p_z$ . La théorie des groupes nous informe que cette bande  $p$  est trois fois dégénérée au point  $\Gamma$  et se décompose dans la direction [001] en une bande doublement dégénérée ( $\Delta_5$  contient  $p_x$  et  $p_y$ ) et en une bande non dégénérée ( $\Delta_1$  contient  $p_z$ ) (tableau IV-1). Une analyse similaire généralisée aux autres caractères orbitaux permet de montrer que l'état  $\Delta_1$  contient les composantes  $s, p$  et  $d$  avec respectivement les symétries  $1, z$  et  $z^2$ . L'état  $\Delta_2$  possède un caractère  $d$  ayant une symétrie  $x^2-y^2$ , l'état  $\Delta_2'$  possède lui aussi un caractère  $d$  mais avec une symétrie  $xy$ . Enfin, l'état  $\Delta_5$  correspond à une combinaison linéaire d'orbitales  $p_x, p_y, d_{xz}$  et  $d_{yz}$ . Le tableau IV-2 récapitule les informations à retenir sur les symétries des états de Bloch et les caractères orbitaux associés.

Etat de Bloch	Orbitales correspondantes
$\Delta_1$	$s ; p_z ; 3d_{z^2}$
$\Delta_2$	$3d_{x^2-y^2}$
$\Delta_2'$	$3d_{xy}$
$\Delta_5$	$p_x ; p_y ; 3d_{xz} ; 3d_{yz}$

tableau IV-2

Regroupement des orbitales suivant la représentation irréductible.

Bien que la théorie des groupes permette de regrouper les orbitales en fonction de leur invariance par certaines opérations de symétrie et qu'elle donne en plus le nombre de dégénérescence des états aux différents points de haute symétrie, en revanche elle ne permet en aucun cas de connaître les courbes de dispersion  $E(k)$ .

### IV.1.3 Structure de bande

Le calcul de la structure de bande s'effectue à partir de codes de calcul de structure électronique, tel que le récent Wien2k utilisé à plusieurs reprises dans cette thèse [Wien2k]. Les relations de dispersions  $E(k)$  pour le cristal de Fe cc suivant les principales directions cristallines sont représentées à la figure IV-3a. La figure IV-3b est un agrandissement de la structure de bande du volume suivant la direction particulière  $\Delta$ . Au niveau de Fermi, on remarque les états de Bloch  $\Delta_1$ ,  $\Delta_2$  et  $\Delta_5$  pour le spin majoritaire alors que pour la bande minoritaire, seuls les états  $\Delta_2$ ,  $\Delta_2'$  et  $\Delta_5$  sont présents. De plus, la bande  $\Delta_1$  apparaît très dispersive alors que les bandes  $\Delta_2$  et  $\Delta_5$  le sont très faiblement ; ceci est en parfait accord avec l'analyse des composantes  $s$ ,  $p$  ou  $d$  de ces bandes.

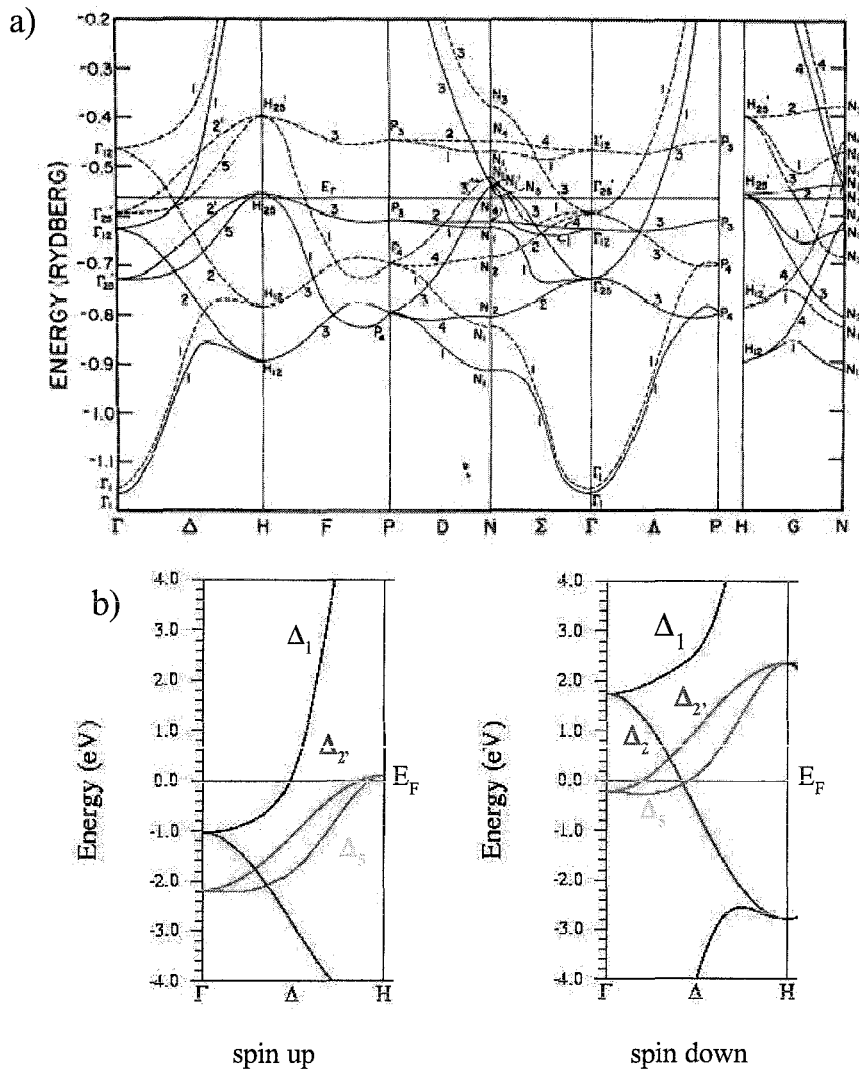


figure IV-3

Structure de bandes du cristal de Fe cc :

a) le long des lignes de haute symétrie. Les lignes représentent le spin majoritaire et les pointillés le spin minoritaire [Callaway\_PRB16\_1977]. Voir la figure IV-2 pour la nomenclature des symboles.

b) calcul réalisé avec le code Wien2k représentant la structure de bandes suivant la direction  $\Delta$ . Seules les bandes proches du niveau de Fermi sont représentées.

#### IV.1.4 Importance de la notion de symétrie

Les propriétés magnétorésistives des systèmes épitaxiés reposent sur la conservation de la symétrie pendant toutes les étapes du processus tunnel : extraction du spin hors de l'électrode émettrice, passage par effet tunnel à travers l'isolant puis injection dans l'électrode collectrice. Cette notion de symétrie est primordiale pour plusieurs raisons.

Si on se place dans le cas d'un processus tunnel élastique, sans diffusion aux interfaces, les électrons conservent leur symétrie de telle sorte que s'il n'y a pas d'états de Bloch avec la même symétrie susceptibles de les accueillir dans l'électrode réceptrice, ils ne pourront pas passer par effet tunnel. Ainsi, sans phénomène diffusif ou liaison chimique particulière, un état  $\Delta_1$  ne peut en aucun cas être accepté par un état autre que  $\Delta_1$ . La bande  $\Delta_1$  du spin minoritaire est située nettement au-dessus du niveau de Fermi (environ 1.7eV, figure IV-3b) et par conséquent les électrons de symétrie  $\Delta_1$  ne pourront pas passer en configuration antiparallèle des aimantations pour de faibles tensions appliquées. Nous reviendrons en détail au paragraphe IV.4.3 sur ce point qui est l'origine même de la forte magnétorésistance dans notre système.

Ensuite, la conservation de la symétrie nécessite que la barrière possède une structure cristallographique « compatible » avec celle des électrodes. C'est le cas du MgO qui a une structure de type NaCl (voir chapitre II). Cependant, l'épitaxie du système Fe(100)/MgO(100) se fait au prix d'une rotation de 45° des deux réseaux du Fe et du MgO de telle sorte qu'un état ayant une symétrie  $x'y'$  dans le Fe correspond à une symétrie  $x^2-y^2$  dans le MgO avec les repères  $\{x',y'\}$  et  $\{x,y\}$  tournés à 45°. On pourrait imaginer le cas extrême d'un isolant qui « casserait » toutes les symétries : les électrons ne pourraient alors pas se propager en conservant leur symétrie initiale ; le transport tunnel ne pourrait se faire que grâce aux phénomènes de diffusion aux interfaces dont l'effet serait une redistribution des symétries compatibles avec l'isolant. La construction d'un tel système complètement épitaxié apparaît cependant difficile puisque par définition même, l'épitaxie implique une notion d'arrangement spécifique des atomes de l'isolant sur le métal et que, par conséquent, les groupes d'espace (qui déterminent les symétries électroniques) des deux matériaux sont intimement liés. En revanche dans le cas d'électrodes cristallines et d'une barrière amorphe, les phénomènes de forte diffusion sont également responsables du mélange complet des symétries de telle sorte que les mécanismes de transport peuvent être décrits par le modèle des électrons libres.



Une conséquence supplémentaire de la symétrie cristalline est la variation spatiale de la fonction d'onde à l'origine de différents taux d'atténuation suivant les états considérés. Le paragraphe suivant montre que le transport tunnel dans les systèmes métalliques réels ne peut pas être décrit par le modèle simpliste des électrons libres.

### IV.1.5 Variation spatiale de la fonction d'onde

La symétrie tridimensionnelle du cristal implique notamment une symétrie dans le plan perpendiculaire aux interfaces. Le modèle des électrons libres ne décrit pas correctement les métaux parce qu'il ne considère pas les variations spatiales de la fonction d'onde dans le plan  $(x,y)$ . Un modèle plus réaliste consiste à décomposer la fonction d'onde en un produit  $\psi(x,y,z)=\phi(x,y) \exp(-\kappa z)$  qui prend en compte à la fois la décroissance de la fonction d'onde dans l'isolant et sa variation spatiale dans le plan  $(x,y)$ . La résolution de l'équation de Schrödinger conduit à :

$$\kappa^2 = \frac{2m}{\hbar^2} (V_b - E) + k_{//}^2 + \frac{-\left\langle \phi \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) \phi \right\rangle}{\langle \phi | \phi \rangle}. \quad (\text{IV-1})$$

Comme dans le modèle des électrons libres, on retrouve le fait que les valeurs non nulles de  $k_{//}$  diminuent la probabilité de tunnel. Mais cette fois-ci, la symétrie cristalline impose à la fonction  $\phi(x,y)$  une variation oscillatoire. Par conséquent, le dernier terme de l'équation précédente est positif et d'autant plus important que le nombre de nœuds de  $\phi(x,y)$  l'est. Pour éclairer ces propos, prenons l'exemple simple de la fonction  $\phi(x) = \cos(\omega x)$ . Le dernier terme de l'équation (IV-1) est bien positif puisque  $\phi''(x) = -\omega^2 \phi(x)$ . Considérons maintenant deux fonctions  $\phi_1$  et  $\phi_2$  du même type que précédemment mais telles que la fonction  $\phi_1$  possède plus de nœuds que  $\phi_2$ , autrement dit,  $\phi_1$  oscille « plus » que  $\phi_2$ . Ceci se traduit par des pulsations  $\omega_1 > \omega_2$ , et explique pourquoi le dernier terme de l'équation (IV-1) est d'autant plus important que le nombre de nœuds de  $\phi(x,y)$  est grand. Ainsi, cette courbure additionnelle de la fonction d'onde dans le plan parallèle aux interfaces se traduit par une augmentation du taux de décroissance perpendiculairement aux interfaces. Le rôle de la symétrie est de déterminer le nombre de nœud de la fonction d'onde dans le plan de l'interface et par conséquent de « quantifier » la courbure dans le plan. On peut intuitionner qu'un état de type  $s$  a une faible courbure, qu'un état  $p$  un peu plus et un état  $d$  en aura beaucoup plus. Pour cette raison, on peut conclure le fait que la nature d'un état dans l'électrode influence son taux de décroissance dans la barrière est un phénomène général [Butler\_PRB63\_2001b].

D'après [MacLaren\_PRB59\_1999], lorsque l'on se place dans la limite des barrières épaisses de sorte que les termes évanescents croissants sont éliminés, la fonction d'onde dans la barrière peut s'écrire :

$$\psi_{\vec{k}_\parallel}(\rho, z) = \sum_{\mathbf{g}} c_{\mathbf{g}} e^{i(\vec{k}_\parallel + \vec{g}) \cdot \vec{\rho} - \sqrt{2m/\hbar^2(V_b - E) + (\vec{k}_\parallel + \vec{g})^2} z} \quad (\text{IV-2})$$

avec  $\mathbf{g}$  un vecteur du réseau réciproque 2D et  $\boldsymbol{\rho}=(x,y)$  un vecteur du plan de l'interface.

### Cas où $k_\parallel=0$

Considérons tout d'abord dans le cas simple  $k_\parallel=0$  et regardons comment varient les taux d'atténuation suivant la symétrie des états de Bloch. L'équation (IV-1) s'écrit alors

$$\kappa = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(V_b - E) + g^2} \quad \text{avec } \phi(x,y)=\exp(i\mathbf{g} \cdot \boldsymbol{\rho}).$$

L'état  $\Delta_1 (s, p_z, d_{z^2})$  n'a pas de nœud dans le plan xy ce qui correspond à  $\mathbf{g}=0$ . Ainsi, le taux de

décroissance associé est lié à  $\kappa = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(V_b - E)}$  exactement comme dans le cas d'une simple

barrière de potentiel. En notant  $a$  le paramètre de maille dans l'espace réel, les états  $\Delta_2 (d_{x^2-y^2})$  et  $\Delta_5 (p_x, p_y, d_{xz}$  et  $d_{yz})$  correspondent à des vecteurs  $\mathbf{g}=\mathbf{g}_1=(2\pi/a,0), (0, 2\pi/a), (-2\pi/a,0), (0, -2\pi/a)$

successivement. Ces états sont alors atténués en  $\kappa = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(V_b - E) + g_1^2}$  avec  $g_1=2\pi/a$ . L'état  $\Delta_2$

a un caractère  $d$  avec un symétrie  $xy$  et sa fonction de variation spatiale associée  $\phi(x,y)$  est obtenue en posant successivement  $\mathbf{g}=\mathbf{g}_2=(2\pi/a, 2\pi/a), (2\pi/a, -2\pi/a), (-2\pi/a, 2\pi/a), (-2\pi/a, -2\pi/a)$ , qui sont en fait les deuxièmes vecteurs de l'espace réciproque et ont pour norme  $g_2=2\pi/a \times \sqrt{2}$ . Ces états sont

alors plus fortement atténués en  $\kappa = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(V_b - E) + g_2^2}$ .

Les expressions analytiques des fonctions  $\phi(x,y)$  ne sont pas triviales. Ces fonctions doivent impérativement respecter la symétrie des états auxquels elles se rapportent. A titre d'exemple, on peut construire des fonctions  $\phi(x,y)=\exp(i\mathbf{g} \cdot \boldsymbol{\rho})$  pour chaque état  $\Delta$ . On sait déjà que  $\phi_{\Delta_1}=1$  ( $\mathbf{g}=0$ ). Des combinaisons linéaires obtenues à partir des fonctions  $\phi$  associées aux différents vecteurs  $\mathbf{g}_1$  précédemment cités,  $\phi(x,y)=\exp(\pm i2\pi x/a)$  et  $\exp(\pm i2\pi y/a)$ , nous permettent de construire des fonctions ayant la symétrie  $\Delta_5$ , à savoir  $\sin(2\pi x/a)$  et  $\sin(2\pi y/a)$  (par symétrie dans le plan xy, ces fonctions doivent changer de signe par les opérations respectives  $x \rightarrow -x$  ou  $y \rightarrow -y$ , ce qui est bien le cas en accord avec les orbitales associées). Dans le plan xy, la symétrie  $\Delta_2$  se caractérise par les opérations suivantes :  $\phi(-x,y)=\phi(x,-y)=\phi(-x,-y)=\phi(x,y)$  et  $\phi(y,x)=-\phi(x,y)$  (orbitale  $d_{x^2-y^2}$ ,

figure IV-1). A partir des mêmes vecteurs  $\mathbf{g}_1$ , nous obtenons la fonction  $\cos(2\pi x/a) - \cos(2\pi y/a)$  qui a bien la symétrie  $\Delta_2$ . De la même manière, les fonctions  $\phi$  correspondant aux vecteurs  $\mathbf{g}_2$ , soit  $\phi(x,y) = \exp(\pm i2\pi x/a \pm i2\pi y/a)$ , donnent une fonction d'onde ayant la symétrie  $\Delta_2$  :  $\cos(2\pi x/a + 2\pi y/a) - \cos(2\pi x/a - 2\pi y/a)$ .

Butler et ses collaborateurs ont calculé numériquement la décroissance de la densité d'états dans la barrière [Butler\_PRB63\_2001b]. La méthode utilisée est la méthode Layer by Layer Korringa Kohn Rostoker (généralement abrégée LKKR) qui repose sur l'approximation des sphères atomiques (ASA) ; elle permet de résoudre l'équation de Schrödinger, de calculer les fonctions de Green et enfin d'obtenir les probabilités de transmission. Nous décrirons plus en détail ce type de calcul au paragraphe IV.4.1. Les calculs illustrés à la figure IV-4 représentent ce qui sera défini plus tard comme la *Tunneling Density of States (TDOS)* et qui reflète la probabilité de propagation d'un même état électronique à travers l'empilement. Ces courbes concernent les électrons au niveau de Fermi et tels que  $k_{\parallel} = 0$  c'est-à-dire les électrons qui sont censés participer le plus au transport tunnel. Trois taux d'atténuation différents dans la barrière sont clairement mis en évidence. Ceci est en parfait accord avec l'étude théorique qui s'appuyait sur la nature oscillatoire de la fonction  $\phi(x,y)$  : l'état  $\Delta_1$  est moins atténué puis viennent ensuite les états  $\Delta_2$  et  $\Delta_5$  et pour finir  $\Delta_2$ . L'isolant considéré dans ce calcul est le vide : cette précision a toute son importance puisque le vide n'affecte aucune symétrie des électrons ce qui ne sera pas le cas quand on considèrera la barrière de MgO. En effet, il a déjà été précisé qu'à cause de la rotation des plans de Fe et de MgO à  $45^\circ$ , un état  $\Delta_2$  dans le Fe se comporte comme un état  $\Delta_2$  dans le MgO. Nous verrons que ce changement de repère dans le MgO augmente en fait la décroissance de l'état  $\Delta_2$  qui ne suit alors plus celle de l'état  $\Delta_5$ . De plus, les liaisons chimiques à l'interface Fe/MgO peuvent modifier le transport tunnel (paragraphe IV.6).

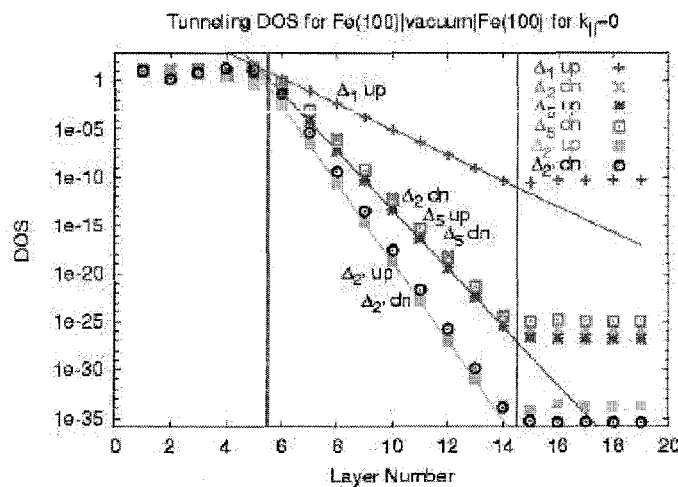


figure IV-4  
TDOS calculée pour  $k_{\parallel} = 0$  au niveau de Fermi pour Fe(100)/vide/Fe(100) en configuration magnétique parallèle. Remerciements à W.H. Butler.

### Cas où $k_{\parallel} \neq 0$

Afin de compléter cette étude, nous devons considérer le cas où  $k_{\parallel} \neq 0$ . La symétrie des états de Bloch et la décroissance des états évanescents correspondants sont alors plus compliquées. Nous ne traiterons que l'aspect qualitatif du problème ; les articles [MacLaren\_PRB59\_1999] et [Butler\_PRB63\_2001b] en apportent toutes les justifications mathématiques.

La figure IV-5a présente la TDOS pour  $k_{\parallel} \neq 0$  et pour un état ayant une symétrie  $\Delta_1$  au point  $\bar{\Gamma}$  ( $k_{\parallel}=0$ ). Sur ce graphique, la TDOS a été décomposée suivant les différentes orbitales constituant l'état  $\Delta_1$  originel. On remarque que les différentes TDOS (la TDOS totale et celles associées aux types  $s$  et  $d$ ) ont la même décroissance et donc que ces états sont affectés dans les mêmes proportions par le vide. Ceci était prévisible car comme on est encore très proche du point  $\bar{\Gamma}$ , on peut supposer qu'il s'agit *grosso modo* des orbitales  $s$  et  $d_{z^2}$  qui n'ont pas de nœud dans le plan ( $xy$ ). Intéressons-nous maintenant à la TDOS pour un état ne correspondant pas à un état  $\Delta_1$  au point  $\bar{\Gamma}$ . Cela implique que la fonction d'onde a des oscillations dans le plan ( $xy$ ) et qu'elles sont plus prononcées pour les composantes  $d$  que pour les composantes  $s$  (comme on s'éloigne du centre de zone, les caractères orbitaux sont moins purs et un électron sans composante  $s$  en  $\bar{\Gamma}$  peut en avoir une en un point proche de  $\bar{\Gamma}$ ). La conséquence immédiate est illustrée à la figure IV-5b : la TDOS totale a majoritairement des composantes de type  $d$  qui chutent très vite lorsque l'épaisseur du vide augmente. La composante  $s$  est minoritaire mais elle décroît avec le même taux que dans la figure IV-5a. Pour de grandes épaisseurs d'isolant, seul le terme associé à  $g=0$  subsiste et gouverne l'atténuation de la TDOS.

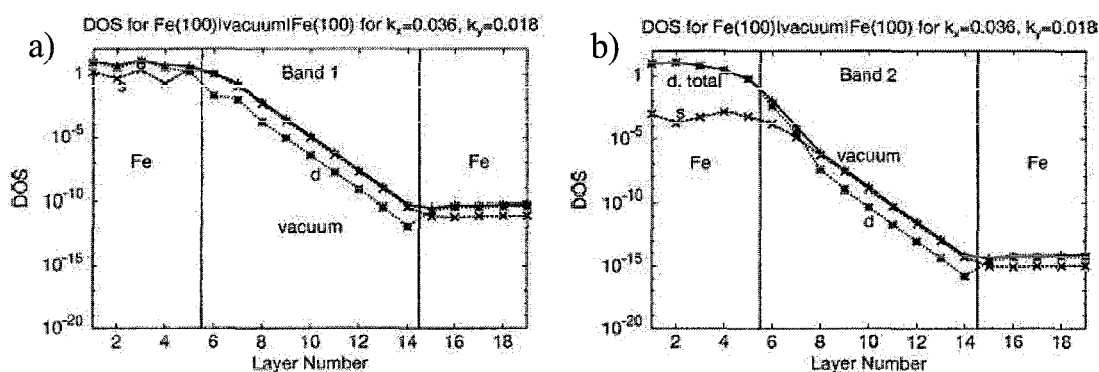


figure IV-5

- a) DOS calculée pour  $k_{\parallel} \neq 0$  pour Fe(100)/vide/Fe(100) pour un état de Bloch ayant la symétrie  $\Delta_1$  en  $k_{\parallel}=0$ .  
 b) DOS calculée pour  $k_{\parallel} \neq 0$  pour Fe(100)/vide/Fe(100) pour un état de Bloch n'ayant la symétrie  $\Delta_1$  en  $k_{\parallel}=0$ .  
 [Butler\_PRB63\_2001b].

## IV.1.6 Récapitulatif

Nous avons décrit dans cette partie l'impact de la cristallinité des électrodes ferromagnétiques : elles assument une fonction de différenciation des électrons suivant leur symétrie électronique dont la classification est justifiée par la théorie des groupes. Ainsi, dans le cas du Fe(001), le niveau de Fermi est peuplé par des électrons de Bloch  $\Delta_1$ ,  $\Delta_2$  et  $\Delta_5$  pour le spin majoritaire alors que pour la bande minoritaire, seuls les états  $\Delta_2$ ,  $\Delta_2'$  et  $\Delta_5$  sont présents. Cette sélection se traduit par des taux de décroissance dans le vide qui sont intimement liés à la symétrie des états de Bloch et sont donc fortement différents.

## IV.2 Filtrage de la barrière

Nous avons vu dans la partie précédente que la symétrie des électrodes métalliques imposait des variations latérales à la fonction d'onde. Suivant le type de variation, imposé par la symétrie même de l'état de Bloch, le taux de décroissance dans le vide n'était pas le même. Mais, à l'opposé du vide, le MgO possède une structure cristallographique bien déterminée ; son groupe d'espace est  $Fm\bar{3}m$  ou  $O_h^5$ . Comment se comporte l'atténuation des électrons dans cet isolant ?

Le MgO est un isolant à gap direct (i.e. le gap est minimum au point  $\bar{\Gamma}$ , voir figure IV-6a), autrement dit, le transport tunnel se fait préférentiellement perpendiculairement au plan (001)<sub>Fe</sub>. Il est donc important d'analyser la transmission dans la barrière des états électroniques  $\Delta_i$  ( $k_{\parallel}=0$ ). Pour les électrons tels que  $k_{\parallel} \neq 0$ , l'analyse est plus compliquée et nous ne l'aborderons que de façon qualitative.

### IV.2.1 Bandes complexes et MIGS

Heine fut le premier à montrer qu'une onde électronique près d'une surface, ou d'une interface, peut être obtenue en raccordant les solutions permises de part et d'autre de la frontière [Heine\_SS2\_1964]. Dans un cristal massif, le vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  est réel, mais près d'une interface on peut faire coïncider une fonction d'onde ayant un  $\mathbf{k}$  complexe avec une onde à l'extérieur du cristal. Ces états correspondent à l'extension dans l'isolant de la fonction d'onde du métal et sont abrégés MIGS pour Metal-Induced Gap States. Comme leur nom l'indique, ce sont des ondes de Bloch issues du métal et évanescences dans l'isolant avec un vecteur d'onde complexe ( $\mathbf{k}_{\parallel}, k_z=q+i\kappa$ ) qui pénètrent de plusieurs couches dans l'isolant.

Les MIGS sont connus depuis longtemps mais leur rôle fondamental dans le transport tunnel dépendant du spin n'a été mis en évidence que récemment [Mavropoulos\_PRL85\_2000]. La relation entre l'énergie  $E$  et les états évanescents, i.e. les relations de dispersion  $E=E(k_z)$ , est contenue dans ce que l'on appelle la structure de bandes complexes. Nous allons voir comment l'étude de ces bandes permet de connaître le taux d'atténuation des différents MIGS.

## IV.2.2 Analyse pour $k_{\parallel}=0$

Le cristal impose les symétries électroniques dans les bandes majoritaire et minoritaire si bien que les MIGS issus des états de Bloch  $\Delta_i$  du métal ont nécessairement la même symétrie  $\Delta_i$ .

La structure de bandes complexes du MgO pour  $k_{\parallel}=0$  est représentée à la figure IV-6a. Ces bandes partent des points de haute symétrie ( $\bar{\Gamma}$  et  $\bar{X}$  sur la figure) et ressemblent soit à des bandes paraboliques (à l'image du modèle des électrons libres) soit à des boucles de symétrie  $\Delta_i$  reliant la bande de valence  $\Delta_i$  et la bande de conduction  $\Delta_i$ . Dans le cas du MgO<sup>30</sup>, le niveau de Fermi du Fe se positionne au milieu du gap représenté en gris, correspondant à un gap direct d'environ 5eV entre la bande de valence  $\Delta_1$  et la bande de conduction  $\Delta_1$ . A titre de comparaison, le gap entre les bandes  $\Delta_5$  de valence et de conduction vaut approximativement 15eV : ceci explique pourquoi la bande complexe  $\Delta_5$  est plus « large » que celle de symétrie  $\Delta_1$ . Pour chaque état de Bloch  $\Delta_i$  à l'énergie  $E_F$ , la valeur de  $\kappa$  est obtenue par l'intersection du niveau de Fermi avec la bande complexe correspondante (on applique le même principe pour déterminer  $k_F$  en intersectant la structure de bande des métaux avec le niveau de Fermi). Ceci est représenté à la figure IV-6b qui montre clairement que  $\kappa_{\Delta_1} < \kappa_{\Delta_5} \ll \kappa_{\Delta_2}$  (la bande complexe  $\Delta_2$ , a été translatée, en réalité, elle est située largement en dessous de sa position sur la figure IV-6b). On en déduit par conséquent que, pour la configuration P, l'état  $\Delta_1$  est celui dont la probabilité de transmission est la plus forte puisque son vecteur d'onde évanescente  $\kappa_{\Delta_1}$  est le plus petit des  $\kappa_{\Delta_i}$ , soit  $\kappa_{\Delta_1}=\kappa_{\min}$ . En configuration AP, le canal  $\Delta_1$  n'existe pas et le transport tunnel est alors gouverné par les états de Bloch  $\Delta_5$ .

<sup>30</sup> Ce n'est pas vrai pour tous les isolants épitaxiés, voir l'exemple du SrTiO<sub>3</sub> [Bowen\_thèse\_2003].

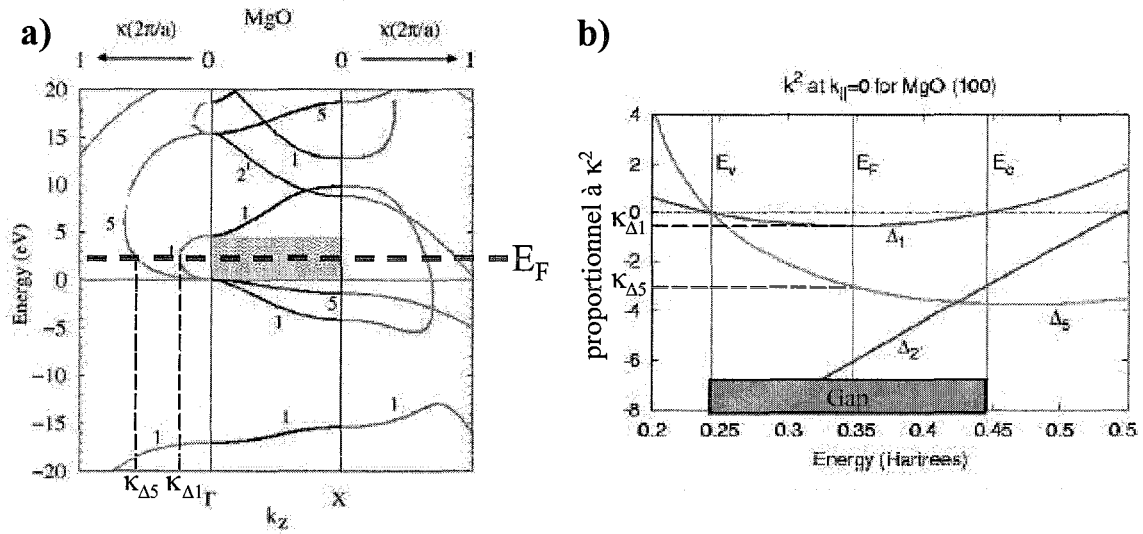


figure IV-6

Structure de bandes complexes du MgO pour  $k_{\parallel}=0$  : l'intersection avec  $E_F$  détermine le taux d'atténuation des différentes symétries de Bloch. Le gap est représenté en gris.

A gauche : pour  $q=0$  (panneau gauche) et  $q=2\pi/a$  (panneau droit). On observe soit des paraboles soit des boucles joignant les bandes de même symétrie [Dederichs\_JMMM240\_2002]

A droite :  $E_v$  et  $E_c$  sont respectivement le sommet de la bande de valence et le bas de la bande de conduction [Butler\_PRB63\_2001a].

### IV.2.3 Analyse qualitative pour $k_{\parallel} \neq 0$

Lorsque l'on s'écarte des lignes de haute symétrie, les électrons ne correspondent plus à des symétries « pures ». Cependant, une étude superficielle au voisinage du point  $\bar{\Gamma}$  permet d'appréhender qualitativement le problème. Autour du point  $\bar{\Gamma}$ , les états de valence sont diminués en énergie, les états de conduction, eux, voient leur énergie augmenter. Ceci permet de supposer que le gap correspondant à  $q=0$  ( $k_{\perp} = \kappa$ ) augmente lorsque  $k_{\parallel}$  s'éloigne de la valeur nulle. Par conséquent, les boucles complexes s'élargissent et donc  $\kappa$  augmente. Ceci est illustré à la figure IV-7 : les surfaces d'énergie constante  $\kappa=\kappa(k_{\parallel})$  sont représentées dans le cas du ZnSe. Les structures de bande du MgO et du ZnSe ont la même topologie, on peut donc supposer que leur comportement est extrêmement proche et qu'une courbe analogue serait obtenue pour le MgO [Mavropoulos\_PRL85\_2000]. Cette courbe montre clairement que les  $k_{\parallel}$  correspondant à  $\kappa_{\min}$  (i.e. ceux qui participent le plus au courant tunnel) sont très resserrés autour du point  $\bar{\Gamma}$ .

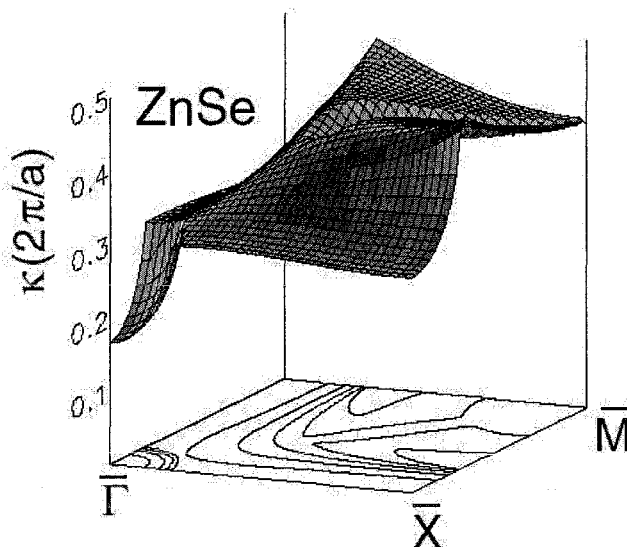


figure IV-7

Surface d'énergie constante  $\kappa=\kappa(k_x)$  dessinée dans un quart de la zone de Brillouin pour le ZnSe. Seules les branches positives les plus basses sont représentées pour une énergie au milieu du gap. On remarque que le taux d'atténuation  $\kappa$  atteint son minimum au point  $\Gamma$  [Mavropoulos\_PRL85\_2000].

#### IV.2.4 Analyse qualitative pour $q=2\pi/a$

Le vecteur d'onde  $k=2\pi/a+i\kappa$  correspond à des bandes complexes issues du point  $\bar{X}$ . Le gap en bord de zone est plus élevé que celui au point  $\bar{\Gamma}$ , par suite, les boucles complexes, quand elles existent, sont plus larges que celles qui partent du point  $\bar{\Gamma}$ . Ces états participent peu au courant tunnel puisque leur  $\kappa$  est plus grand (point  $\bar{X}$ , figure IV-7).

#### IV.2.5 Récapitulatif

Cette partie met en évidence le rôle de filtrage joué par la barrière : les taux d'atténuation des fonctions d'onde dans l'isolant dépendent de leur symétrie électronique. Différents taux d'atténuation signifient que les électrons ne participent pas de la même manière au courant tunnel.

Ainsi, seuls les MIGS ayant une atténuation proche de  $\kappa_{\min}$  sont faiblement atténués dans l'isolant et donc participent efficacement au courant tunnel. La plus grande conséquence d'un tel comportement se produit dans le régime des grandes épaisseurs, ou régime asymptotique : le transport tunnel est alors gouverné par les symétries les moins atténuées et qui constituent alors les canaux de conduction « survivants » dans le régime asymptotique.



## **IV.3 Approche qualitative du transport tunnel**

Les deux parties précédentes ont posé les bases du raisonnement du transport tunnel dans les JTM épitaxiés : sélection des états de Bloch par les électrodes monocristallines et filtrage dans l'isolant en fonction de ces symétries. Ces deux seuls points-clés autorisent une prédiction qualitative du phénomène de magnétorésistance tunnel dans le système Fe/MgO/Fe et soulignent l'importance du choix de l'orientation cristalline du métal, qui sera vue au paragraphe IV.3.3.

### **IV.3.1 Configuration parallèle**

#### Canal majoritaire

Au niveau de Fermi, les électrons majoritaires  $\Delta_1$  s'associent à un état complexe  $\Delta_1$  qui sera faiblement atténué dans l'isolant, contrairement aux autres symétries ( $\Delta_5, \Delta_2$ ). Ces MIGS se couplent alors dans l'autre électrode métallique avec les états de leur symétrie respective. Dans la limite des fortes épaisseurs de barrière, le canal majoritaire se réduit au canal  $\Delta_1$ .

#### Canal minoritaire

Les états minoritaires du Fe au niveau de Fermi sont les états de Bloch  $\Delta_2, \Delta_2'$  et  $\Delta_5$  qui vont se coupler aux interfaces avec des MIGS ayant des décroissances importantes. Par suite, la conduction minoritaire est inférieure à la conduction majoritaire.

Dans le régime asymptotique, le canal  $\Delta_1$  est le seul survivant en configuration parallèle<sup>31</sup>.

### **IV.3.2 Configuration antiparallèle**

Dans le cas d'une orientation antiparallèle des aimantations, les états complexes  $\Delta_1$  ne peuvent pas s'associer à des états acceptants puisque la bande minoritaire ne possède pas d'état  $\Delta_1$  au niveau de Fermi (voir figure IV-3b). Par conséquent, ces électrons sont totalement réfléchis à la deuxième interface MgO/Fe. La conductance antiparallèle est gouvernée par le canal  $\Delta_5$  mais dont la

---

<sup>31</sup> Dans le cas d'une autre structure cristalline, les calculs semi-quantitatifs effectués par Oleinik et al [Oleinik\_PRB62\_2000] en considérant une phase cristalline de l'alumine (Co/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co) montrent également que la décroissance du canal majoritaire est moins forte que celle du minoritaire. Cela conduit à une inversion de la polarisation du courant tunnel qui devient positive lorsque l'épaisseur de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> devient supérieure à 10Å. Cette structure sera traitée au paragraphe IV.6.2.2.

décroissance dans l'isolant est plus forte que celle du canal  $\Delta_1$  qui domine la transmission dans l'état parallèle, autrement dit  $G_P > G_{AP}$ .

### IV.3.3 Importance de l'orientation cristalline du métal ferromagnétique

Le modèle de Jullière (ou des autres versions améliorées) met en avant les populations de spin. Bien évidemment, suivant l'orientation cristalline, ces populations vont être modifiées. Une première approche sur l'impact de l'orientation cristalline sur la TMR a été réalisée par Yuasa et al pour des échantillons Fe(monocristal)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(amorphe)/Fe<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> [Yuasa\_EPL52\_2000]. La valeur de la TMR à 2K est de 13% pour le Fe(100), 32% pour le Fe(110) et 42% pour le Fe(211). Puisque l'alumine amorphe ne filtre pas les électrons, la différence observée dans les amplitudes de TMR découle simplement de l'anisotropie de la surface de Fermi (figure IV-8). On reste dans le cadre du modèle de Jullière. Cependant, il convient de préciser que les conclusions exprimées par les auteurs ne prennent pas en compte l'influence de l'orientation de l'électrode inférieure sur la croissance de l'alumine : bien qu'amorphe, des différences structurales doivent exister entre les barrières et pourraient ainsi expliquer les propriétés magnétorésistives différentes.

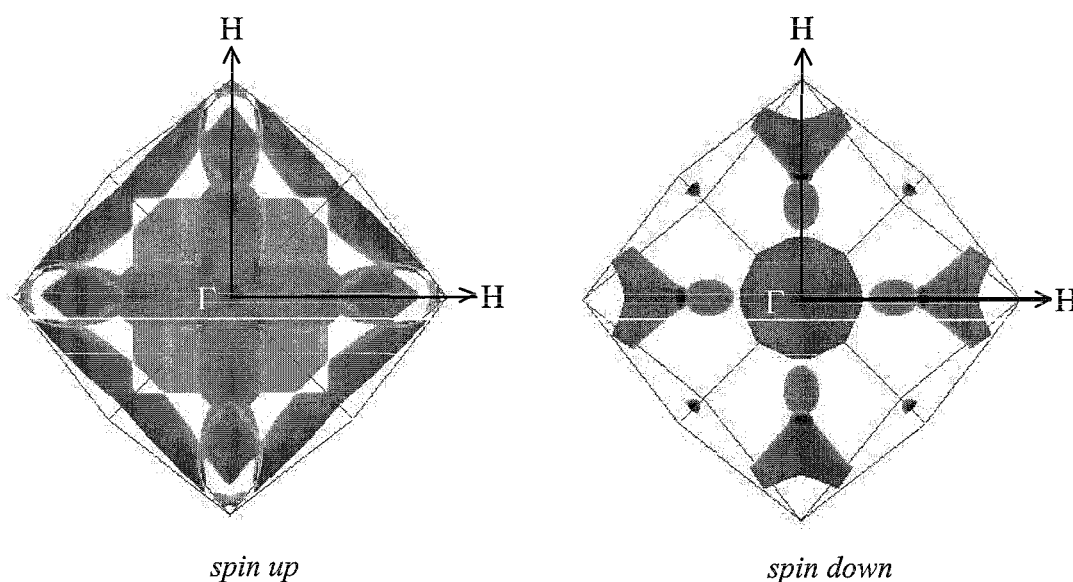


figure IV-8  
Surfaces de Fermi du Fe cc pour les spins up et down. Quelque soit la direction, elles sont fortement différentes (<http://www.phys.ufl.edu/fermisurface/>).

Les fortes valeurs de TMR prédites dans les systèmes cristallins trouvent leur origine dans les symétries disponibles pour chaque spin. Par conséquent, la nature du métal et son orientation cristalline ont toute leur importance. Dans le cas du Fe, le tableau ci-dessous (tableau IV-3) résume le type et la symétrie des états de Bloch pour  $k_{\parallel}=0$  pour trois orientations différentes. Pour les orientations  $(110)_{\text{Fe}}$  et  $(111)_{\text{Fe}}$ , les bandes de spin *up* et *down* sont peuplées par des états ayant exactement la même symétrie, par conséquent, le filtrage de la barrière s'effectue de la même façon pour les configurations P et AP. Ainsi, si l'atténuation des états en fonction de leur symétrie se fait toujours ressentir, en revanche, cela n'a plus d'impact sur la TMR. La TMR dépend alors seulement de la population de spin au niveau de Fermi comme dans le cas du modèle de Jullière. Seule la direction  $[100]_{\text{Fe}}$  présente une TMR dépendante de la symétrie qui augmente lorsque l'épaisseur d'isolant augmente.

	(100)	(110)	(111)
Fe $\uparrow$	$\Delta_1 (s, p, d), \Delta_2 (d), \Delta_5 (p, d)$	$\Sigma_1 (s, p, d), \Sigma_3 (p, d)$	$\Lambda_1 (s, p, d)$
Fe $\downarrow$	$\Delta_2 (d), \Delta_2 (d), \Delta_5 (p, d)$	$\Sigma_1 (s, p, d), \Sigma_3 (p, d)$	$\Lambda_1 (s, p, d)$

tableau IV-3

Symétrie et caractère orbital des états de Bloch pour  $k_{\parallel}=0$  pour trois orientations cristallines différentes du Fe cc [Moruzzi\_1978].

### IV.3.4 Conclusion

A cause du champ moléculaire intrinsèque aux métaux ferromagnétiques, le Fe se comporte comme un demi-métal au regard de la symétrie  $\Delta_1$ . Cette symétrie domine la conduction parallèle et est absente de la configuration antiparallèle qui est alors gouvernée par les états de Bloch  $\Delta_5$  d'atténuation plus importante. Ceci se traduit par une différence de conductance entre les deux configurations magnétiques qui est d'autant plus prononcée que l'épaisseur de la barrière est importante. On s'attend donc à une augmentation de la magnétorésistance avec l'augmentation de l'épaisseur de MgO.

Cette étude sommaire montre qu'une simple inspection de la bande complexe de l'isolant dans la région du gap permet de prédire grossièrement les propriétés de magnétotransport dans les systèmes cristallins comme cela a été fait par l'équipe de Dederichs avec ZnSe, GaAs, Si et Ge entre deux électrodes de Fe monocristallin [Mavropoulos\_PRL85\_2000].

## **IV.4 Calcul de la conductance tunnel**

### **IV.4.1 Formule de Landauer et descriptif rapide de la méthode LKKR**

La formule de Landauer relie la conductance  $G$  à la probabilité pour un électron  $j$  d'un côté de la barrière d'être transmis par effet tunnel vers l'électrode opposée, soit  $T^+(k_{||}, j)$  :

$$G = \frac{e^2}{h} \sum_{k_{||}, j} T^+(k_{||}, j). \quad (\text{IV-3})$$

Butler et al. ont utilisé la méthode Layer Korringa-Kohn-Rostoker (LKKR) qui est adaptée pour calculer les amplitudes de réflexion et de transmission des ondes de Bloch [Butler\_PRB63\_2001a]. Elle est basée sur la théorie de la fonctionnelle de densité qui permet de calculer la structure électronique d'un solide sans avoir recours aux contraintes usuelles imposées par la symétrie de translation tridimensionnelle. La périodicité selon la direction perpendiculaire aux couches n'est pas nécessaire : le système est ainsi traité comme un empilement infini de plans atomiques, chacun d'entre eux ayant une symétrie de translation bidimensionnelle. Pour calculer la conductance d'une jonction tunnel, on considère deux réservoirs semi infinis de Fe (i.e les électrodes) séparés par un empilement du type Fe(5 plans)/MgO/Fe(5 plans), l'épaisseur de l'isolant variant de une à trente monocouches. Grâce à ces réservoirs massifs, on peut choisir l'orientation magnétique des électrodes en modifiant les conditions aux limites, c'est-à-dire le raccordement de la fonction d'onde et de sa première dérivée. Dans le calcul SCF (Self Consistent Field) les potentiels des cinq couches de Fe sont relaxés de chaque côté du MgO. A chaque itération de la méthode auto cohérente, les conditions aux limites sont imposées par les réservoirs auxquels se rattachent les couches de Fe qui sont les seules couches métalliques prises en compte dans le calcul. Un calcul préalable sur le système massif complet (sans jonction tunnel) est effectué de manière à trouver les potentiels auto cohérents et les fonctions d'onde dans les couches de Fe séparant les réservoirs. Parmi ces couches, les atomes situés loin de la barrière sont supposés avoir des propriétés du massif c'est-à-dire celles qui ont été calculées précédemment. En effet, l'écrantage dans les systèmes métalliques permet d'affirmer que la perturbation électronique liée à la barrière est spatialement limitée près des interfaces.

Les équations qui décrivent les ondes planes réfléchies et transmises sont ainsi transformées en un jeu d'équation qui décrit la transmission et la réflexion des ondes de Bloch. Ces équations contiennent à la fois les solutions propagatives et les solutions évanescentes de l'équation de Schrödinger pour le cristal.

## IV.4.2 Transport en configuration parallèle

### IV.4.2.1 Transmission du canal majoritaire en configuration parallèle

La conductance du canal majoritaire en configuration parallèle est illustrée à la figure IV-9 pour des épaisseurs de barrière croissantes. La transmission ressemble à un pic relativement large et centré sur  $k_y=0$  ; quand l'épaisseur de MgO augmente, le pic se resserre comme dans le cas d'une simple barrière de potentiel de profil rectangulaire. En fait, la dépendance de la transmission en fonction de  $k_y$  est bien plus compliquée et présente un caractère oscillatoire qui peut être mis en évidence en utilisant une échelle logarithmique comme illustré aux figures IV-9b et IV-10a.

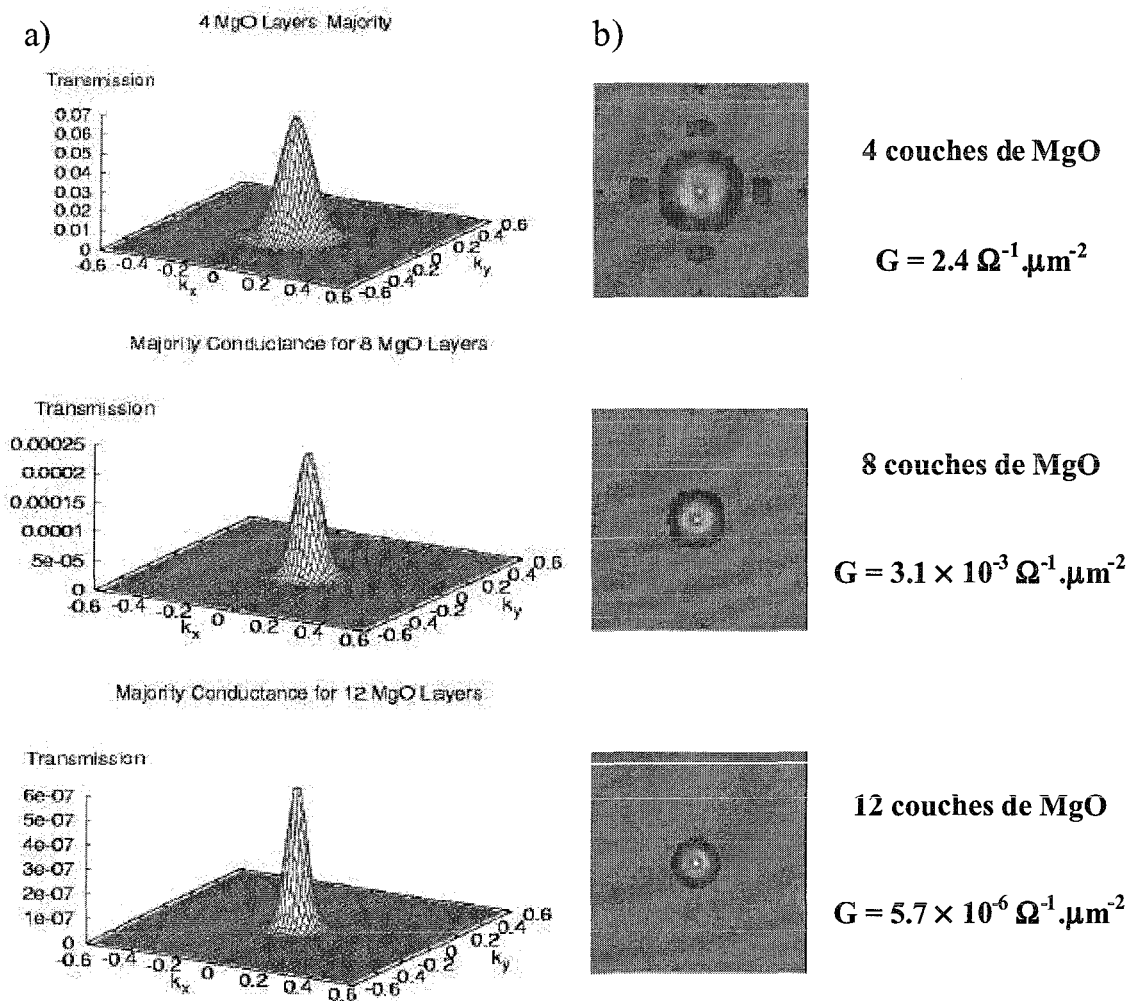


figure IV-9  
a) conductance du canal majoritaire (configuration P) pour 4, 8 et 12 couches de MgO [Butler\_PRB63\_2001a].

b) même quantité mais tracée en échelle logarithmique pour faire ressortir les oscillations dans la transmission le long des lignes  $k_x=0$  et  $k_y=0$ . Ces oscillations diminuent quand l'épaisseur de MgO augmente de même que la valeur de la conductance intégrée sur l'ensemble de la zone de Brillouin. Remerciements à W.H. Butler.

Ces oscillations s'expliquent par les interférences électroniques des bandes complexes. La figure IV-10 présente les bandes complexes calculées avec la méthode LKKR. Au point  $\bar{\Gamma}$  ( $k_x \Delta z = 0$  sur la courbe), on a les valeurs des parties imaginaires  $\kappa$ , des vecteurs du type  $k = \kappa$ . A l'état de Bloch  $\Delta_1$  correspond un  $k_z \Delta z = 0.7$  environ et, comme cela a été vu au paragraphe IV.2.2, l'état  $\Delta_5$  a une valeur de  $k_z \Delta z$  plus importante et égale à environ 1.75 ( $\Delta z$  est l'espacement interréticulaire du MgO, soit 2.1Å). Nous incitons le lecteur à regarder la différence avec le modèle des électrons libres qui présente une variation monotone fortement différente du caractère oscillatoire qui apparaît lorsque les composantes imaginaires des vecteurs d'onde s'égalent.

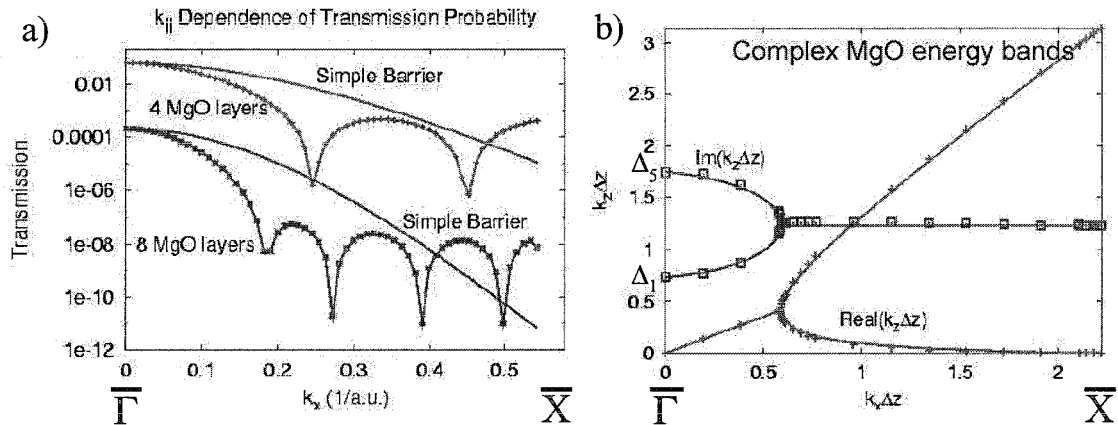


figure IV-10

a) probabilité de transmission en fonction de  $k_{||}$  le long de  $k_y=0$  pour 4 et 8 couches de MgO et comparaison avec le modèle des électrons libres [Butler\_PRB63\_2001a]  
 b) parties réelles et imaginaires de  $k_z$  en fonction de  $k_x$  pour le MgO. Les interférences se produisent lorsque les parties imaginaires s'égalent.

#### IV.4.2.2 Transmission du canal minoritaire en configuration parallèle

La conductance du canal minoritaire est loin d'être comparable avec le résultat obtenu dans le modèle des électrons libres (figure IV-11). On observe des pics dans la transmission qui ne se produisent pas pour  $k_x=0$  mais grossièrement le long des lignes  $k_x=0$  et  $k_y=0$ ; de plus, la conductance est quasi nulle au point  $\bar{\Gamma}$ . Lorsque l'épaisseur de MgO augmente, ces pics voient leurs amplitudes fortement diminuer (l'amplitude maximale passe de  $0.035\Omega^{-1}$  pour quatre couches de MgO à  $4 \times 10^{-11}\Omega^{-1}$  pour douze monocouches). Cette décroissance est nettement supérieure à celle du canal majoritaire (de  $0.07$  à  $5 \times 10^{-7}\Omega^{-1}$ ). De même, la conductance surfacique  $G_{\text{Pmin}}$  calculée passe  $0.46\Omega^{-1}\mu\text{m}^{-2}$  (quatre couches de MgO) à  $5.9 \times 10^{-10}\Omega^{-1}\mu\text{m}^{-2}$  (douze couches de MgO) alors que celle du canal majoritaire,  $G_{\text{Pmaj}}$ , ne diminue que de  $2.4\Omega^{-1}\mu\text{m}^{-2}$  à  $5.7 \times 10^{-6}\Omega^{-1}\mu\text{m}^{-2}$  dans la même gamme d'épaisseur. De plus, lorsque l'épaisseur de MgO augmente, les zones de conductance occupent de moins en moins de place dans la zone de Brillouin et la couronne sur laquelle elles sont réparties se resserre autour du point  $\bar{\Gamma}$ .

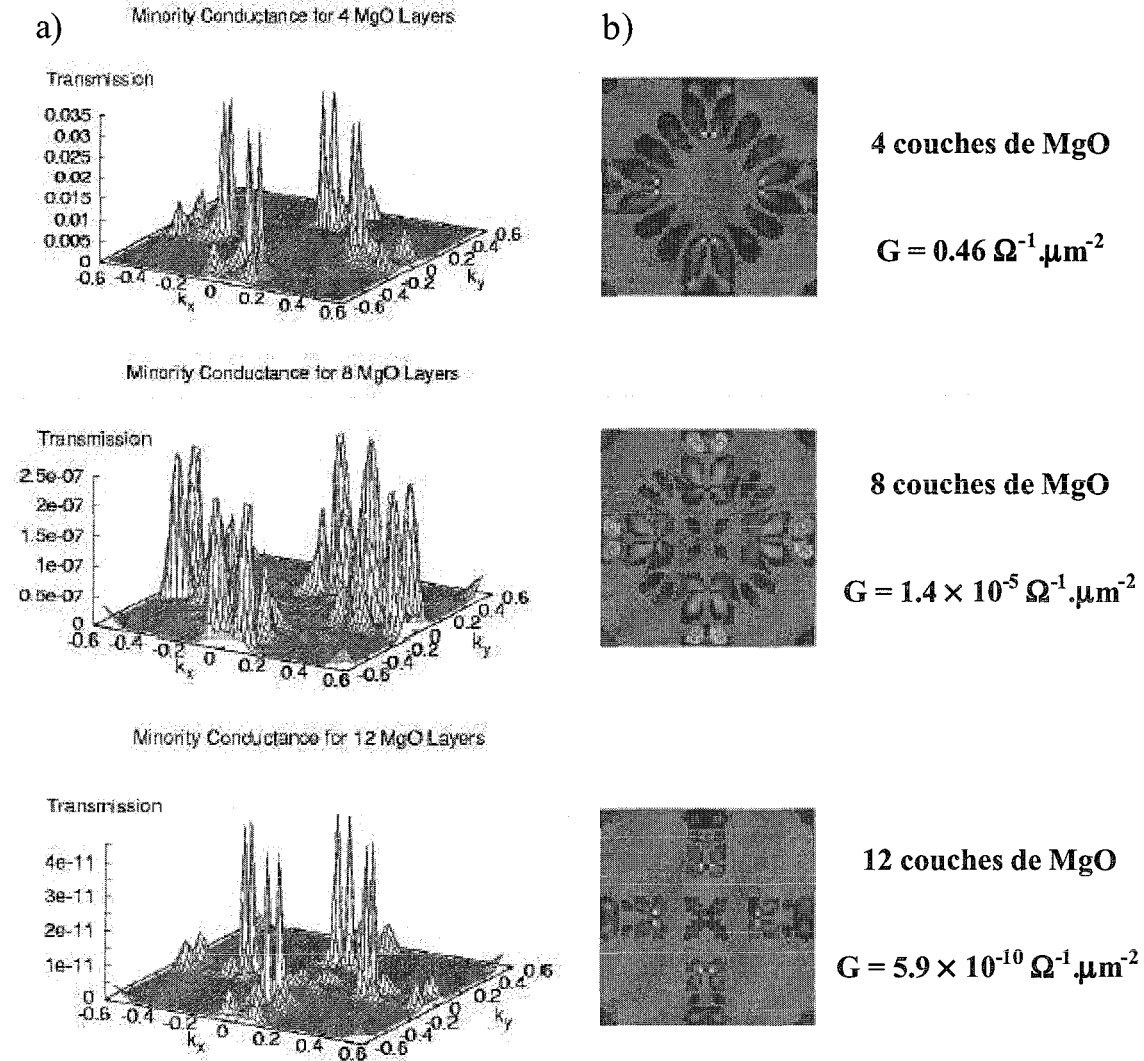


figure IV-11

a) conductance du canal minoritaire (configuration P) pour 4, 8 et 12 couches de MgO. On remarque des pics près des lignes  $k_x=0$  et  $k_y=0$ . Lorsque l'épaisseur de MgO augmente, ces pics se rapprochent du centre de zone et leur largeur diminue [Butler\_PRB63\_2001a]

b) même quantité mais tracée en échelle logarithmique et valeur de la conductance intégrée sur l'ensemble de la zone de Brillouin. Remerciements à W.H. Butler.

Nous avons vu que les interférences électroniques des bandes complexes induisent une oscillation de la transmission le long des lignes  $k_x=0$  et  $k_y=0$  pour la configuration parallèle. Puisque les points de transmission maximale sont proches de lignes  $k_x=0$  et  $k_y=0$  et pour des valeurs  $k_y > 0.154$  et  $k_x > 0.154$ , respectivement, on peut s'attendre à un comportement analogue pour la transmission minoritaire parallèle.

### IV.4.2.3 Probabilité de transmission pour $k_{\parallel}=0$ en configuration parallèle

L'étude qui suit concerne les conductances uniquement suivant la direction  $k_{\parallel} = 0$  et au niveau de Fermi. Les courbes de la figure IV-12 représentent l'évolution de la *Tunneling Density Of States (TDOS)* en fonction du nombre de couches pour les canaux majoritaire et minoritaire en configuration parallèle. La TDOS reflète la probabilité de propagation d'un même état électronique à travers l'empilement. La propagation des fonctions d'onde et leur raccordement se fait de proche en proche. Les densités des états électroniques sont soumises aux conditions limites suivantes : un état de Bloch arrive sur la première interface et a une certaine probabilité pour être réfléchi ; de l'autre côté de l'interface, l'onde transmise est celle qui nous intéresse. Cette TDOS représente donc, pour chaque symétrie, le nombre d'états qui se trouve dans telle ou telle couche de l'empilement : ceci est donc directement lié à la probabilité de transmission et à son taux d'atténuation (figure IV-12). Le caractère cristallin de l'électrode de Fe de droite, i.e. l'électrode émettrice, sélectionne les symétries des états de Bloch. Ainsi, le niveau de Fermi est peuplé par les états  $\Delta_1$ ,  $\Delta_2$  et  $\Delta_5$  pour le canal majoritaire alors que les états  $\Delta_2$ ,  $\Delta_2'$  et  $\Delta_5$  sont présents pour les électrons minoritaires. Les états  $\Delta_1$  dans le Fe conservent leur symétrie au passage de l'interface Fe/MgO et s'atténuent donc comme des états  $\Delta_1$  dans le MgO. De même, les états  $\Delta_5$  conservent leur symétrie pendant tout le processus tunnel. Du fait de la rotation de  $45^\circ$  entre les deux réseaux de Fe et de MgO, un état  $\Delta_2'$  ayant une symétrie  $xy$  dans le Fe se retrouve avec une symétrie de type  $x^2-y^2$  dans le MgO. Par conséquent, un état  $\Delta_2'$  du Fe va s'atténuer comme un état  $\Delta_2$  dans le MgO. Pour les mêmes raisons, l'état  $\Delta_2$  présent au niveau de Fermi dans le Fe minoritaire va s'atténuer comme un état  $\Delta_2'$ . Le calcul numérique ne fait que confirmer les résultats déduits de l'analyse des bandes complexes : les états  $\Delta_1$  dominent le transport tunnel dans cette configuration ; ceci est d'autant plus valable que l'épaisseur de MgO augmente.

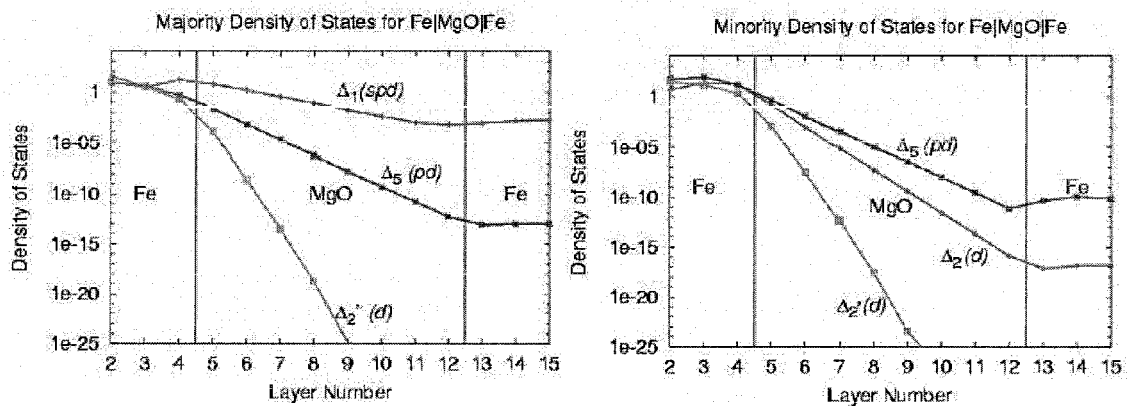


figure IV-12  
TDOS pour  $k_{\parallel}=0$  pour Fe(100)/MgO (8 couches)/Fe(100) en configuration magnétique parallèle. A gauche pour le canal majoritaire et à droite pour le minoritaire. Les quatre taux d'atténuation en fonction de la symétrie de l'électron incident sont clairement visibles [Butler\_PRB63\_2001a].



### IV.4.3 Transmission et TDOS pour $k_{\parallel}=0$ en configuration antiparallèle

La transmission en configuration antiparallèle présente les caractéristiques combinées des transmissions  $T_{P_{maj}}$  et  $T_{P_{min}}$  (figure IV-13).

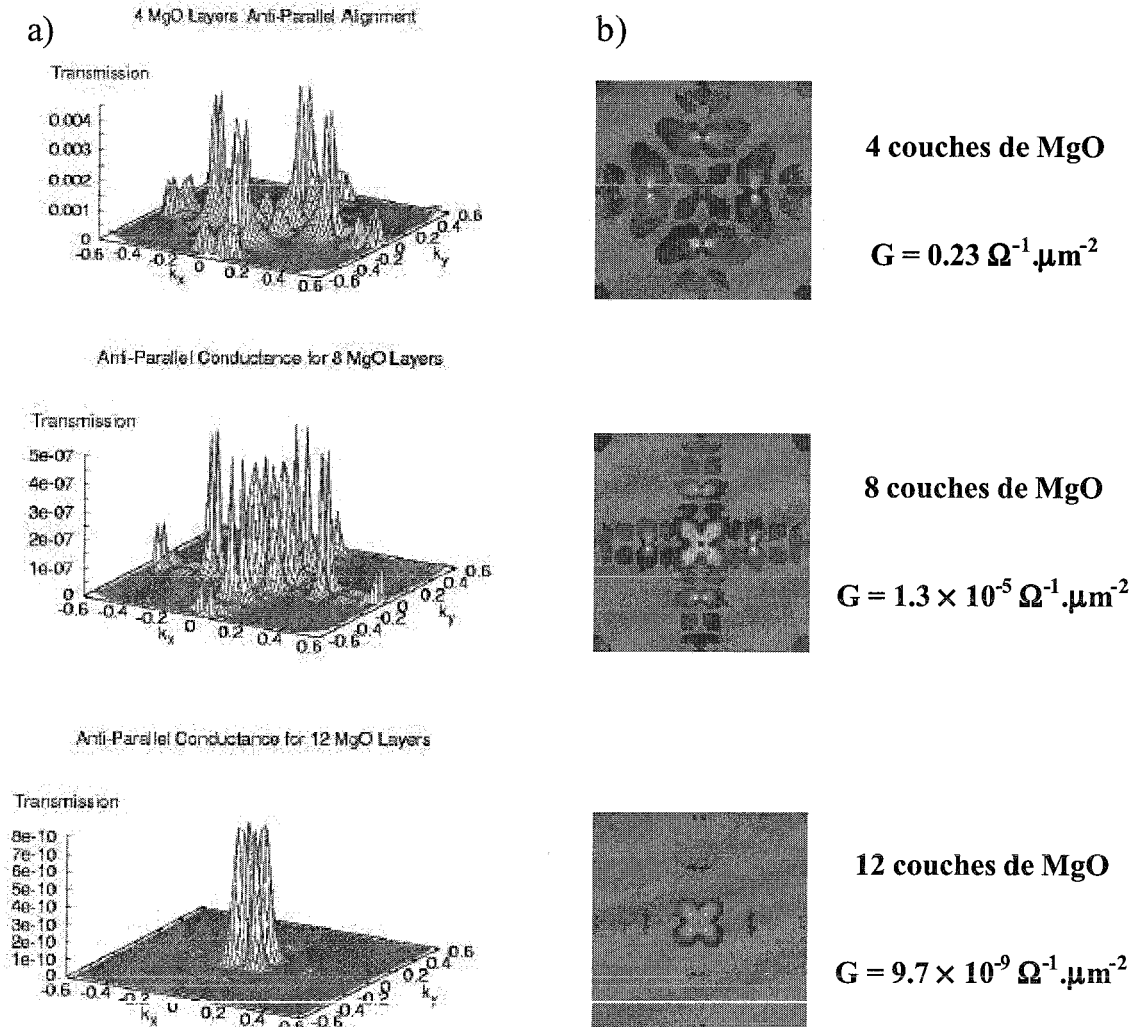


figure IV-13

a) conductance en configuration antiparallèle pour 4, 8 et 12 couches de MgO. Les pics se resserrent vers le centre de zone lorsque l'épaisseur de MgO augmente. Cette conductance présente clairement les caractéristiques mélangées des canaux majoritaire et minoritaire [Butler\_PRB63\_2001a]

b) même quantité mais tracée en échelle logarithmique et valeur de la conductance intégrée sur l'ensemble de la zone de Brillouin. Remerciements à W.H. Butler.

Pour les faibles épaisseurs d'isolant, on observe des pics de conductance aux alentours des lignes  $k_x=0$  et  $k_y=0$ . Lorsque l'épaisseur augmente, ces points de haute transmission se rapprochent du centre de zone. Cela pourrait faire penser à une participation des états  $\Delta_1$  majoritaires de plus en plus importante puisque ces derniers ont un taux d'atténuation plus lent. Malheureusement, il n'y a

pas d'états  $\Delta_1$  disponibles au niveau de Fermi dans la bande minoritaire. Par conséquent, ces électrons ne trouvent pas d'états accepteurs dans l'électrode collectrice : ils sont totalement réfléchis à l'interface et ne participent pas au transport tunnel antiparallèle. Ceci explique pourquoi, même si le maximum de conductance se rapproche du point  $\bar{\Gamma}$ , la transmission maximale n'a jamais lieu exactement au centre de la zone de Brillouin.

Le filtrage des électrons dans la barrière dépend de leur symétrie mais n'est en aucune manière affecté par la configuration magnétique des aimantations. La magnétorésistance trouve réellement son origine dans la sélection qu'opère la deuxième électrode monocristalline. La bande de spin minoritaire ne possédant pas d'états  $\Delta_1$  près du niveau de Fermi, ces derniers sont totalement réfléchis et le canal AP  $\Delta_1$  ne peut pas s'établir : cela se traduit sur la figure IV-14 par une atténuation faible mais continue de la TDOS de l'état  $\Delta_1$ , y compris dans la deuxième électrode de Fe. Pour exactement les mêmes raisons, le canal AP  $\Delta_2$  ne peut pas s'établir puisque les électrons  $\Delta_2$  provenant du spin minoritaire ne pourront pas trouver de place dans la bande majoritaire. La conductance AP est donc gouvernée par le canal  $\Delta_5$  puisqu'il s'agit des électrons qui, d'une part, ont des états de la même symétrie de chaque côté de la barrière, et d'autre part, ce sont ceux qui se propagent le mieux parmi les symétries existantes. Le canal AP  $\Delta_5$  est en fait constitué des canaux  $\Delta_{5maj} \rightarrow \Delta_{5min}$  et  $\Delta_{5min} \rightarrow \Delta_{5maj}$ . L'équipe de Butler précise que le canal  $\Delta_{5maj} \rightarrow \Delta_{5min}$  est le plus important des deux [Zhang\_PRB68\_2003].

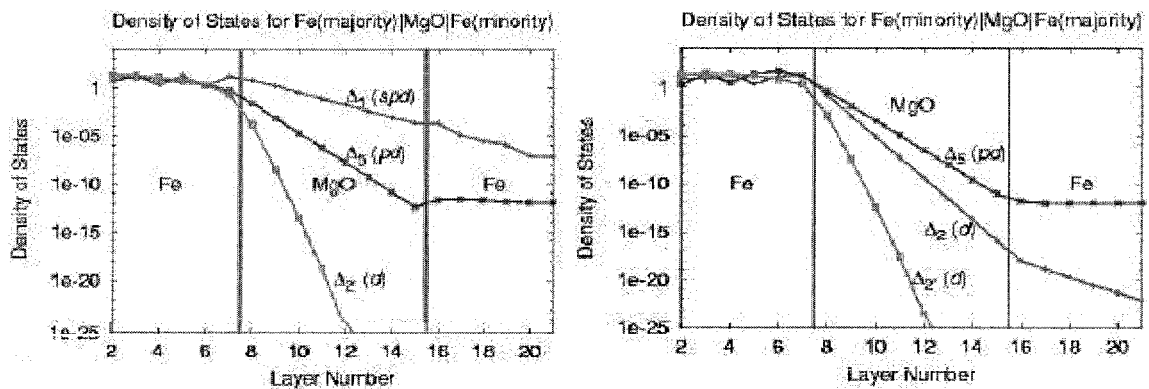


figure IV-14

TDOS pour  $k_{//}=0$  pour Fe(100)/MgO (8 couches)/Fe(100) en configuration magnétique antiparallèle. A gauche pour le canal majoritaire  $\rightarrow$  minoritaire et à droite pour le canal minoritaire  $\rightarrow$  majoritaire [Butler\_PRB63\_2001a].

#### IV.4.4 Variation de la TMR avec l'épaisseur

Les variations des conductances surfaciques  $G_{maj}$ ,  $G_{min}$  et  $G_{AP}$  avec l'épaisseur de MgO sont illustrées à la figure IV-15. Elles ont été calculées en intégrant la probabilité de transmission sur toute la zone de Brillouin. Lorsque l'épaisseur de MgO augmente, le canal majoritaire domine de

plus en plus la conduction parallèle au détriment du canal minoritaire. La conductance antiparallèle diminue plus vite que la conductance parallèle totale, ce qui se traduit par une augmentation de la TMR pouvant atteindre, d'après les prédictions théoriques, environ 8000% pour 12 couches de MgO.

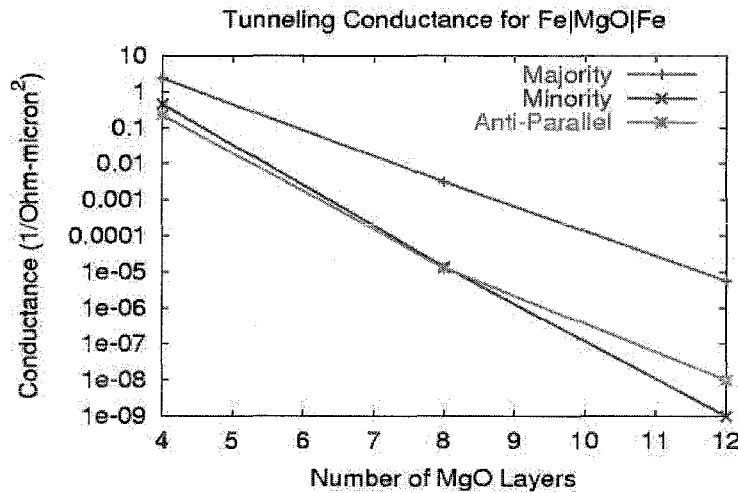


figure IV-15

Conductance tunnel en fonction du nombre de couches de MgO [Butler\_PRB63\_2001a].

#### IV.4.5 Raccordement à l'interface :

##### notion d'efficacité d'extraction et d'injection de spin

Le caractère de la symétrie des états de Bloch contrôle les taux d'atténuation mais également la facilité d'injection et d'extraction des électrons aux interfaces. Pour une interface Fe/MgO, l'influence de ce raccordement est minime : on devine que l'atténuation à l'interface d'un état  $\Delta_2$  ( $d$ ) est plus importante que celle d'un état  $\Delta_1$  ( $s, p, d$ ) mais cette atténuation apparaît comme le prolongement des différences entre les taux de décroissance dans l'isolant (figure IV-12 et figure IV-14). En revanche, le système Fe/ZnSe/Fe est un cas d'école dans ce domaine (figure IV-16) :

- la bande  $\Delta_1$ <sup>32</sup> du canal majoritaire se raccorde facilement avec un état évanescent ayant la même symétrie ( $s, p$ ) dans l'isolant. Ceci, ajouté au fait que cet état a une très faible atténuation, fait que la bande  $\Delta_1$  domine le canal P majoritaire ;
- la bande  $\Delta_2$  est une bande de pure symétrie  $d$  et donc ne peut pas s'associer efficacement avec un état  $sp$  dans le semi-conducteur. Le raccordement de ces états avec des électrons ayant la symétrie  $sp$  est cependant réalisé au prix d'une très mauvaise efficacité : on constate une chute

<sup>32</sup> Le groupe d'espace du ZnSe n'est pas le même que celui du MgO et par suite, les bandes  $\Delta_i$  ne regroupent plus les mêmes caractères orbitaux. Il s'agit ici du groupe F-43m ou Td<sup>2</sup>.

brutale de la TDOS. Ainsi, malgré une atténuation identique à celle de la bande  $\Delta_1$ , les états  $\Delta_2$  ne fournissent qu'une contribution limitée au transport ;

- la bande  $\Delta_5$  à une symétrie  $d$ , s'associe à un état  $\Delta_5$  dans l'isolant et donc décroît plus vite dans le semi-conducteur.

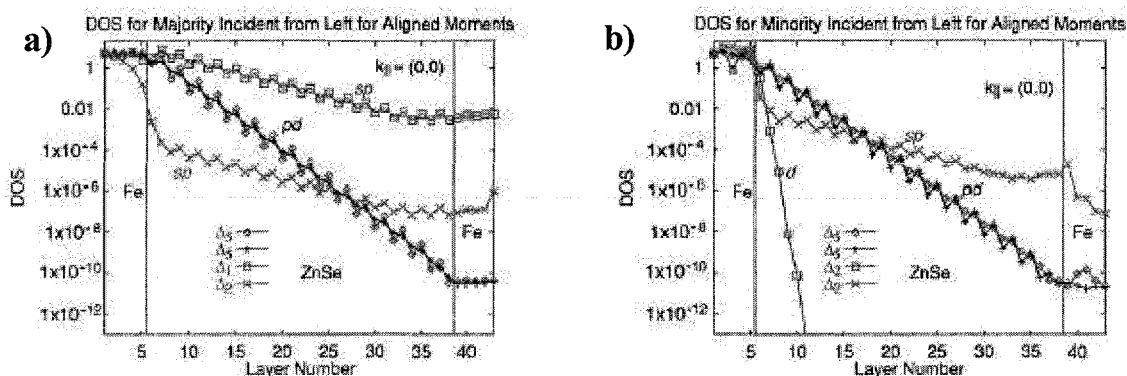


figure IV-16  
TDOS au niveau de Fermi pour  $k_{\parallel}=0$  pour Fe(100)/ZnSe/Fe(100) en configuration parallèle [MacLaren\_PRB59\_1999] :

- a) canal majoritaire dominé par un état  $\Delta_1$  ( $sp$ )
- b) canal minoritaire, gouverné par un état  $\Delta_5$  pour les faibles épaisseurs puis par le canal  $\Delta_2$  dans le régime asymptotique.

Ces raccordements plus ou moins efficaces aux interfaces modifient complètement les propriétés de transport lorsque l'épaisseur de l'isolant varie : posséder une symétrie ayant une faible atténuation dans l'isolant est une condition nécessaire mais non suffisante pour dominer le courant tunnel. Ceci est illustré à la figure IV-16b : à cause d'une très faible efficacité d'extraction de spin, l'état  $\Delta_2$  est fortement atténué à l'interface. Ainsi pour les faibles épaisseurs de ZnSe, le canal minoritaire est gouverné par le canal  $\Delta_5$  qui a certes un taux d'atténuation plus important mais dispose d'un très bon raccordement à l'interface. En revanche, lorsque l'on atteint les très grandes épaisseurs de ZnSe (vers vingt monocouches), la TDOS de  $\Delta_2$  domine le transport parallèle minoritaire.

Bien évidemment, ce raccordement de la fonction d'onde dépend fortement de la nature chimique de l'interface et plus précisément des liaisons qui se créent entre les différentes orbitales. Il sera vu par exemple au paragraphe IV.6 la différence entre les empilements Fe/ZnSeZn... et Fe/SeZnSe... ainsi que l'influence d'une interface de FeO sur le transport tunnel dans le système épitaxié Fe/MgO/Fe.

## IV.4.6 Système hors équilibre

Les calculs de conductance qui ont été vus dans cette partie sont effectués lorsque le système est à l'équilibre, c'est-à-dire lorsque la tension appliquée est nulle.

L'étude des propriétés de transport polarisé en spin nécessite une mesure du courant tunnel et s'effectue donc obligatoirement sous une tension non nulle. Dans ce cas, la quantité relevante est le comportement de la structure électronique hors équilibre. Bien que le traitement du transport hors équilibre soit un problème bien compris et traité [Lang\_PRB52\_1995 ; Keldysh\_SPJETP20\_1965], la prise en compte du magnétisme rend ce type de calcul *ab initio* particulièrement compliqué. Jusqu'à présent, de tels calculs sont restés dans le cadre de la théorie de la réponse linéaire, c'est-à-dire pour de très faibles tensions. De plus, ces modèles considèrent de simples barrières de potentiel et négligent la dépendance en  $k_{\parallel}$  de la transmission (états de résonance interfaciale). Toutes ces simplifications peuvent entraîner de fausses conclusions sur la dépendance de la conductance en fonction de la hauteur et largeur de la barrière.

Le premier effet de l'application d'une tension est la dépendance en énergie de la probabilité de transmission. La seconde modification concerne le changement des structures électroniques dû au champ de Coulomb faisant suite à l'accumulation des charges induites par le passage du courant. Au contraire des métaux, ce dernier phénomène est loin d'être négligeable dans le cas d'isolants. Enfin, le courant modifie le potentiel de corrélation d'échange utilisé dans l'approche de la fonctionnelle de densité. Négligeant ce dernier phénomène et ne prenant en compte que les deux premiers, Zhang et al ont calculé l'évolution de la conductance tunnel et de la magnétorésistance en fonction de la tension pour des jonctions du type Fe/FeO/MgO/Fe [Zhang\_PRB69\_2004]. Leurs résultats montrent une évolution asymétrique des moments magnétiques des atomes de Fe interfaciaux. De plus, lorsque la tension augmente, les auteurs mettent en évidence un rapprochement des pics de transmission des états de résonance interfaciale vers le point  $\bar{\Gamma}$  ; la transmission majoritaire parallèle n'est pas affectée.

Dans cette thèse, nous traiterons le transport polarisé en spin en ne prenant en compte que le décalage en énergie de la densité d'états lors de l'application d'une tension. Cette approche, certes très simpliste, a le mérite de permettre de comprendre, au moins grossièrement, les concepts qui seront mis en valeur par la suite.

## IV.4.7 Récapitulatif

A ce stade, nous pouvons résumer les principales caractéristiques du transport tunnel dans le système Fe/MgO/Fe :

- la transmission parallèle est dominée par le canal majoritaire et a lieu principalement au point  $\bar{\Gamma}$
- la transmission antiparallèle est caractérisée par des pics de transmission répartis sur l'ensemble de la zone de Brillouin 2D
- lorsque l'épaisseur de MgO augmente, la conductance parallèle se concentre autour de  $\bar{\Gamma}$  alors que les pics de la transmission se rapprochent eux aussi du centre de zone mais sans jamais l'atteindre. Dans le même temps, cette conductance antiparallèle diminue plus vite que son homologue parallèle
- ce comportement se traduit par une magnétorésistance augmentant avec l'épaisseur de MgO, résultat apparemment contre intuitif si l'on se fie à l'ensemble des travaux réalisés jusqu'à présent sur les jonctions tunnels
- de plus, le caractère demi-métallique du Fe au regard de la symétrie  $\Delta_1$  justifie les fortes valeurs magnétorésistives attendues
- on peut également remarquer que la polarisation en spin du système Fe/MgO/Fe est positive puisque  $G_{p\text{maj}}$  est supérieur à  $G_{p\text{min}}$
- enfin, les compatibilités de symétrie électronique entre le métal et l'isolant conditionnent les efficacités d'extraction et d'injection de spin aux interfaces. A travers l'exemple frappant du système épitaxié Fe/ZnSe/Fe, nous avons vu le rôle majeur du raccordement de la fonction d'onde à l'interface. De manière générale, cette notion est valable pour tout système épitaxié.

*Remarque :*

*Estimant que le chapitre courant est déjà relativement complexe, notre souci de clarté nous a incité à ne pas traiter l'approche théorique réalisée par Mathon et Umerski sur le système Fe/MgO/Fe dans le corps de ce manuscrit [Mathon\_PRB63\_2001]. Le lecteur pourra la trouver en annexe E. Succinctement, ils ont calculé la conductance tunnel à partir de la formule de Kubo [Mathon\_PRB56\_1997], valable uniquement pour de faibles tensions appliquées (théorie de la réponse linéaire) et strictement équivalente à la formule de Landauer utilisée par Butler et ses collaborateurs ; elle donne des résultats fortement similaires.*

## IV.5 Etats de résonance interfaciale

Dans ce paragraphe, nous allons discuter l'importance d'un état de résonance interfaciale (IRS pour *Interfacial Resonance State*) sur la conductance. Ces IRS ont été mis en évidence dans les calculs *ab initio* les plus récents sur la conductance résolue en  $k_{\parallel}$  dans les jonctions tunnel épitaxiées et

semblent être une caractéristique de la bande de spin minoritaire. Il se traduit par des pics localisés à des endroits précis de la surface de Brillouin dans la conductance résolue en  $k_y$ . Lorsqu'une fonction d'onde se présente à l'interface, sa probabilité de raccordement est très fortement augmentée par la grande amplitude de l'IRS [Butler\_PRB63\_2001a ; Wunnicke\_PRB65\_2002]. Par conséquent, ce sont des états très faiblement atténués dans le régime préasymptotique et nous montrerons notamment qu'ils peuvent dominer le transport tunnel pour de faibles épaisseurs de barrière.

### IV.5.1 Origine physique des états de surface / d'interface

La figure IV-17 représente les densités totales des spins majoritaire et minoritaire en fonction de l'énergie pour l'interface et les deux couches sous-jacentes. Le spin minoritaire présente un pic très étroit pour une énergie légèrement supérieure à  $E_F$ . Ce pic correspond à des états d'interface. Près d'une surface, la brisure de la symétrie du cristal donne naissance à des solutions divergentes de l'équation de Schrödinger : ce ne sont alors plus des exponentielles complexes mais des exponentielles réelles, i.e.  $\exp(ik \cdot r)$  avec  $k$  complexe. Lorsque l'on s'éloigne de la surface, la fonction d'onde perçoit le potentiel du vide et son amplitude décroît exponentiellement. Il résulte de ceci la création d'un état de surface dont l'énergie est située dans le gap de la symétrie correspondante. En terme de densité spectrale, cela se traduit par un pic dans la DOS minoritaire à une énergie appropriée (figure IV-18).

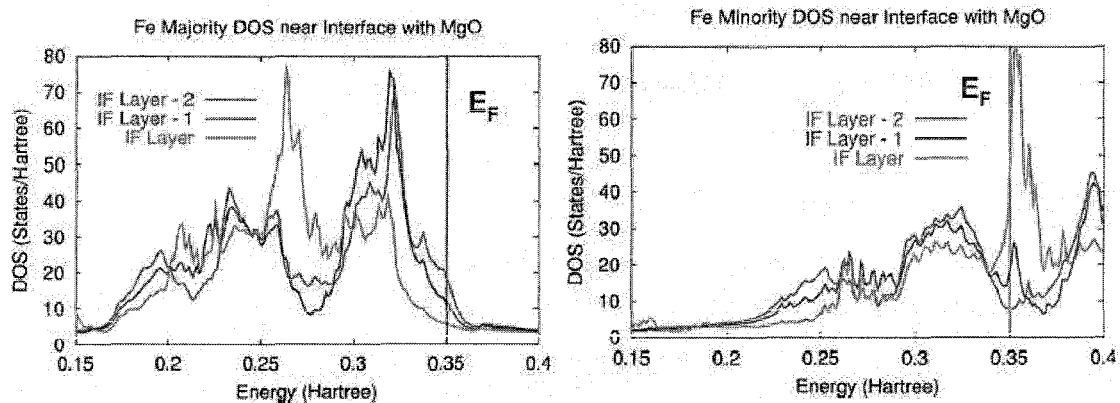


figure IV-17

Densité d'états pour chaque couche à la surface de Fe (100) près de la surface avec du MgO (1 Hartree = 27.2 eV). En rose, la DOS de la couche de surface S, en bleu de la couche S-1 et en rouge de la couche S-2.

A gauche : spin majoritaire

A droite : spin minoritaire. Remerciements à W.H. Butler.

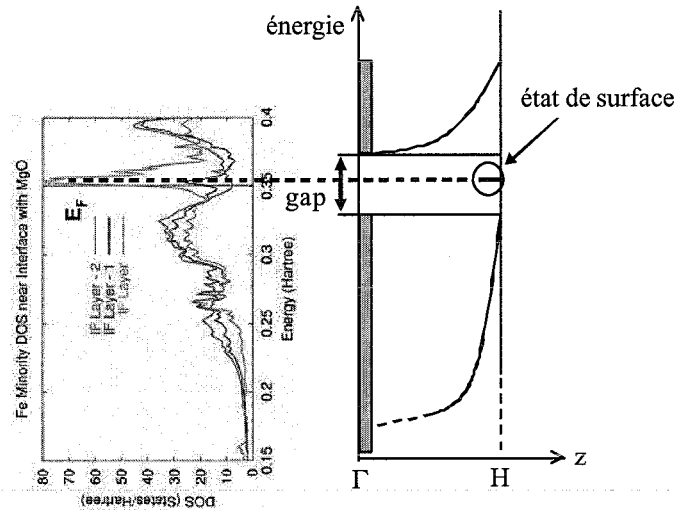


figure IV-18

Densité minoritaire spectrale du Fe et représentation schématique de la présence d'un état de surface dans le gap. Les régions grisées correspondent aux énergies accessibles et laissent apparaître le gap.

## IV.5.2 Impact sur le transport tunnel

Les courbes de la figure IV-17 correspondent à des quantités intégrées sur l'espace des  $k$  et ne sont pas réellement exploitables en l'état. La DOS résolue en  $k_x$  pour le spin minoritaire est nettement plus intéressante (figure IV-19a) : on observe des zones de forte densité d'états localisées le long des lignes  $k_x=0$  et  $k_y=0$ .

Cependant, une forte DOS concentrée à des points particuliers de la zone de Brillouin ne suffit pas pour assurer que ces états vont effectivement participer au courant tunnel. Pour cela, ils doivent en plus correspondre à une forte transmission. La figure IV-19b représente la transmission résolue en  $k_x$  pour le même canal minoritaire. Bien que les pics maximaux dans la DOS et dans la transmission se superposent pas exactement, les zones de forte DOS et de forte transmission, elles, se correspondent bien. La conductance résultante (figure IV-11) est en quelque sorte le produit de la DOS et de la transmission et elle présente donc des caractéristiques très similaires.

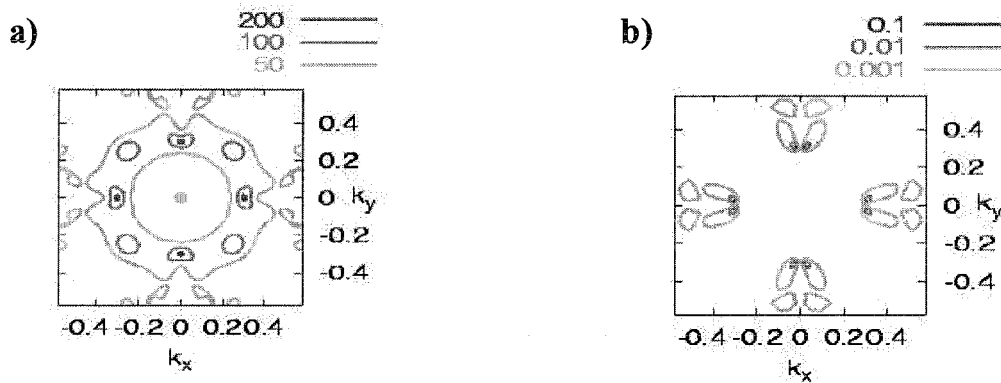


figure IV-19

a) DOS minoritaire (en états par hartree) pour la couche interfaciale de Fe  
b) Transmission du canal minoritaire [Butler\_PRB63\_2001a].



La figure IV-20 permet de voir que les états associés à ces IRS sont fortement localisés près de l'interface. Ceci est valable pour les électrons du pic de la DOS (courbe rouge) comme pour ceux qui correspondent aux coordonnées  $\{k_x, k_y\}$  du maximum de transmission (courbe bleue).

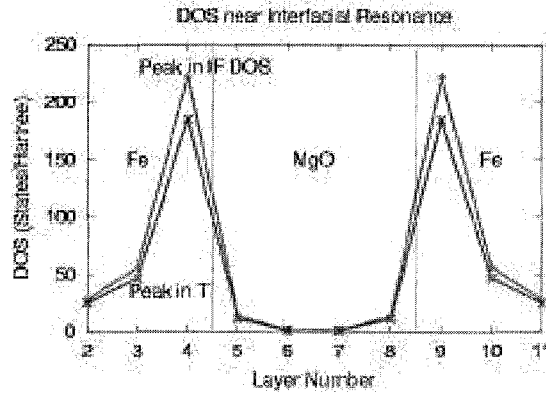


figure IV-20

DOS couche par couche pour des valeurs de  $k//$  correspondant soit au pic dans la DOS interfaciale (courbe rouge) soit au pic dans la transmission (courbe bleue) [Butler\_PRB63\_2001a].

Comme cela a déjà été vu à plusieurs reprises, la symétrie de la fonction d'onde joue également un rôle très important dans la transmission. La figure IV-21 montre la variation de la TDOS avec l'épaisseur de MgO pour les pics dans la DOS interfaciale et dans la transmission. L'analyse du caractère de l'état de Bloch correspondant au pic dans la DOS interfaciale montre qu'il n'a pas de composante de type  $s$  contrairement à la fonction d'onde associée au pic dans la transmission et qui peut donc s'associer à un état faiblement évanescent. Ceci explique pourquoi la TDOS du point  $(k_x=0.299, k_y=0)$  diminue extrêmement vite alors que celle du point  $(k_x=0.308, k_y=0.018)$  décroît très lentement.

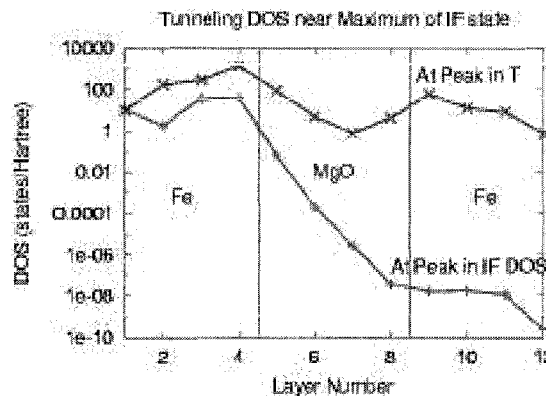


figure IV-21

TDOS près d'un état de résonance interfaciale, pour un  $k_y$  correspondant soit à un pic dans la DOS interfaciale (courbe rouge), soit à un pic dans la transmission (courbe bleue). [Butler\_PRB63\_2001a].

### IV.5.3 Régime des faibles épaisseurs

Il est facile d'imaginer que, lorsque la barrière est très fine, les électrons situés au niveau des IRS pourront facilement passer de l'autre côté de la barrière sans être atténués : la barrière leur apparaît transparente. Wunnicke et al. ont élaboré un modèle analytique simple permettant d'expliquer ce phénomène de résonance dans le cas d'une jonction « cristalline » du type Co/vidé/Co [Wunnicke\_PRB65\_2002]. Leur calcul montre que la présence de deux états de surface de part et d'autre de la barrière donne naissance à deux hybridations, l'une combinaison linéaire liante des états de surface, l'autre anti-liante, et correspondant respectivement à un état localisé et un état de résonance interfaciale. Les fonctions d'onde associées sont représentées à la figure IV-22a et résultent du chevauchement des extensions des fonctions d'onde des états d'interface. Pour de faibles épaisseurs, elles montrent clairement que l'amplitude de la fonction d'onde résonante, et donc sa probabilité de présence, est maximale aux interfaces : l'électron passe par effet tunnel mais sans atténuation puisque dès qu'il entre dans cet état de résonance, il a autant de probabilité d'être de l'autre côté. Lorsque l'épaisseur d'isolant augmente, la fonction d'onde devient fortement asymétrique (figure IV-22b) et la probabilité de transmission est fortement diminuée (figure IV-23).

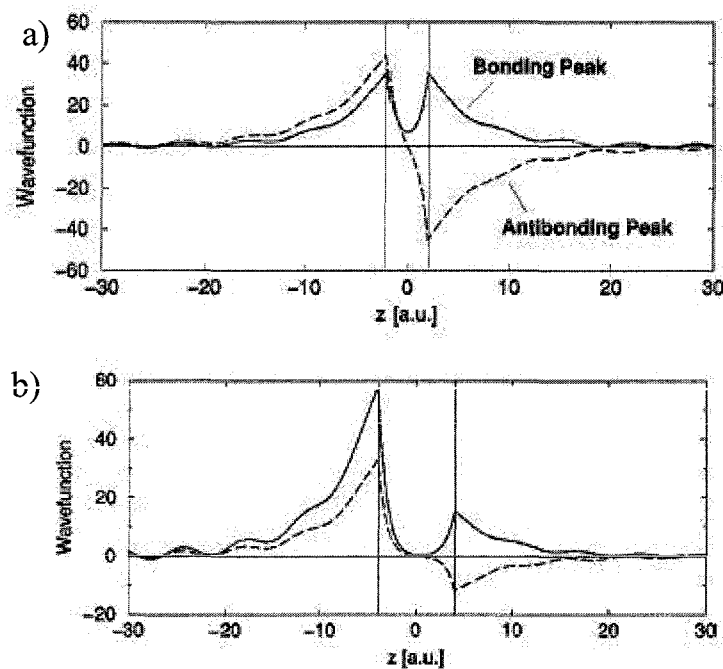


figure IV-22

Résultats du modèle analytique simple de [Wunnicke\_PRB65\_2002]. La forte amplitude de la fonction d'onde aux interfaces est clairement visible.

a) Comportement symétrique dans le cas d'une barrière de faible épaisseur

b) Comportement antisymétrique pour des épaisseurs de barrières plus épaisses.

Il est important de signaler que Wunnicke et ses collaborateurs ont également montré que ces pics de résonance ne peuvent être obtenus que dans le cas de jonctions symétriques parfaites de telle sorte que les états d'interface se correspondent parfaitement de chaque côté de la barrière. La modification de l'une des deux interfaces, par la rugosité notamment, détruit ou amoindrit l'un des états de résonance. La transmission est alors fortement diminuée par rapport au cas symétrique, ceci est illustré à la figure IV-23.

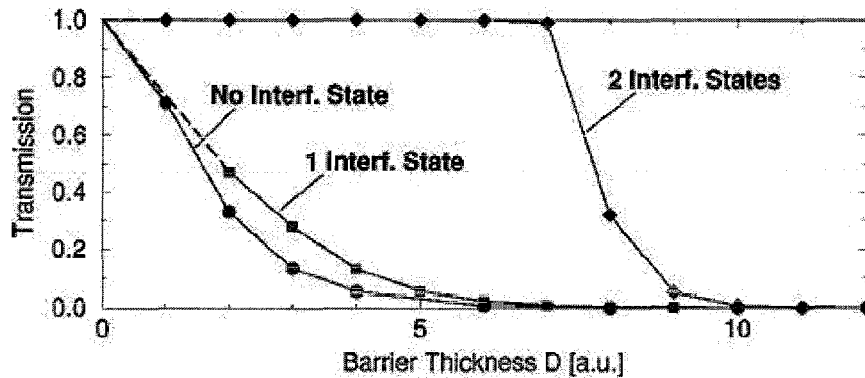


figure IV-23

Evolution du maximum de la résonance en fonction de l'épaisseur d'isolant en présence de deux, d'un seul ou d'aucun état d'interface [Wunnicke\_PRB65\_2002]. Lorsque les états de résonance sont présents de chaque côté de la barrière, la transmission reste à son maximum jusqu'à des barrières relativement épaisses.

#### IV.5.4 Couplage des états de résonance avec le volume

Pour que l'influence des états d'interface sur le transport tunnel soit effective, il faut que les électrons qui « transitent » par ces états puissent pénétrer dans le métal massif. Si tel n'est pas le cas, la conductance associée est extrêmement faible puisque toute propagation est interdite dans le volume. Un état d'interface ne devient donc un état de résonance interfaciale que lorsqu'il est couplé à un état du volume [Desjonquères\_1995] (nous verrons l'importance de cette précision dans les jonctions du type Pd/Fe/MgO/Fe au chapitre V). A ce niveau, le rôle des processus de diffusion est primordial : ce sont eux qui vont permettre le couplage état interfacial/état volumique. Même dans notre système quasi parfait, nous ne pouvons pas exclure l'existence de sites ponctuels de diffusion (fautes d'empilement, marches de terrasses atomiques, dislocations,...) ; si le système était parfait (aucune terrasse, empilement parfait,...) ces états resteraient confinés à l'interface et ne participeraient pas au transport tunnel [Tsymbal\_JPCM15\_2003].

## IV.5.5 Récapitulatif

Bien que répartis sur une faible surface de la zone de Brillouin, les IRS dominent la conductance tunnel pour les faibles épaisseurs d'isolant et jouent un rôle non négligeable pour les épaisseurs intermédiaires. Leur impact sur le transport se fait essentiellement sentir dans le cas de jonctions parfaites et symétriques de telle sorte que toute modification de la structure électronique (rugosité ou application d'une tension) peut lourdement affecter ces états (voir les parties IV.6 et V.2).

## IV.6 Influence des liaisons chimiques à l'interface sur le transport tunnel

La structure atomique, la composition chimique de la barrière et les liaisons qui se créent à l'interface métal-oxyde contrôlent l'effet tunnel dépendant du spin en influençant fortement la structure électronique locale. Il a été démontré que la polarisation en spin de la conductance tunnel est très sensible à la DOS interfaciale [LeClair\_PRL86\_2001] et qu'elle n'est pas intrinsèque au métal ferromagnétique seul, mais dépend des propriétés électroniques de l'isolant et de l'interface métal-isolant, comme cela avait été pressenti par Slonczewski [Slonczewski\_PRB39\_1989] et démontré expérimentalement par De Teresa et al. [DeTeresa\_PRL82\_1999].

Les calculs *ab initio* réalisés sur des systèmes épitaxiés parfaits prévoient de fortes valeurs pour la magnétorésistance. Cependant, la réalité expérimentale nous oblige à estimer dans quelle mesure les propriétés de transport vont être affectées par la vraie nature chimique des interfaces.

L'équipe de Kirschner a montré la présence d'une interface FeO entre l'électrode de Fe et la barrière de MgO [Meyerheim\_PRL87\_2001] et nous avons déjà signalé la présence d'une quantité non négligeable de C sur la surface du Fe recuit (chapitre II). Dans les deux cas, nous allons voir que cela induit une forte chute de la conductance majoritaire parallèle alors que le canal AP n'est pas affecté. Il s'en suit une diminution significative de la TMR par rapport à la valeur prévue dans le cas d'un système parfait. Nous aborderons également la modification des raccordements des fonctions d'onde à l'interface suivant la séquence d'empilement de la barrière.

### IV.6.1 Effet d'une couche d'oxyde de Fe

La mise en évidence expérimentale d'une couche de FeO entre l'électrode de Fe et la barrière de MgO par l'équipe de Kirschner a incité l'équipe de Butler à s'intéresser aux conséquences électroniques. Le code utilisé par cette équipe n'est pas vraiment adapté pour ce genre de calcul. En effet, la valeur de la distance entre la couche de FeO et la première couche de MgO déduite des travaux expérimentaux conduirait à un trop grand recouvrement des potentiels (Approximation des Sphères Atomiques, ASA) et gênerait la convergence du calcul. De plus, le taux de recouvrement des atomes d'oxygène sur la surface de Fe semble proche de 60% [Meyerheim\_PRL87\_2001] ; ce recouvrement partiel indique que les atomes d'O sont trop larges pour se placer dans tous les sites interstitiels, par conséquent, on peut s'attendre à un désordre dans le réseau de surface, paramètre qui ne peut pas être pris en compte par le code de calcul utilisé par Butler et son équipe. Cependant, une légère adaptation des données expérimentales permet d'assurer la convergence du code et le taux d'occupation partielle des atomes d'oxygène (de 0 à 100%) est simulé en considérant deux types de sphères (une correspondant à un atome d'O et une autre vide) mais pour une maille non déformée.

Nous avons vu au paragraphe IV.4.2 que les états de Bloch  $\Delta_1$  dominent le courant tunnel. Il est donc primordial de regarder dans quelle mesure leur densité électronique est affectée par la présence d'atomes d'oxygène à la surface de Fe. La figure IV-24 permet de comparer les nuages électroniques des états  $\Delta_1$  en l'absence ou en présence d'une couche de FeO à l'interface Fe/MgO.

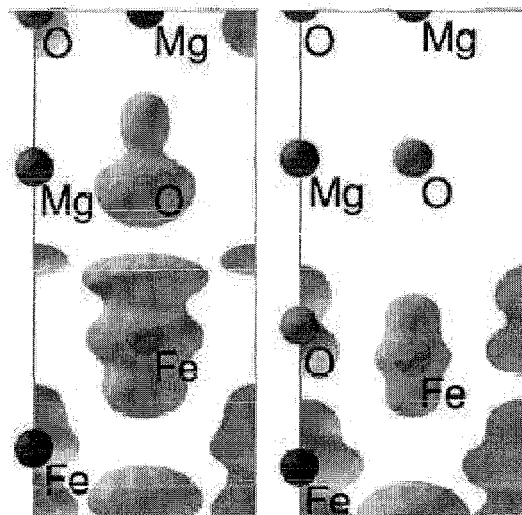


figure IV-24

DOS partielle au niveau de Fermi correspondant à la symétrie  $\Delta_1$  (canal majoritaire). A gauche sans couche de FeO et à droite avec une couche de FeO [Zhang\_PRB68\_2003].

Cette figure montre clairement que l'introduction d'atomes d'O dans les sites interstitiels de la surface de Fe entraîne une grande diminution de la densité d'états  $\Delta_1$ . De plus, cela se traduit par une diminution du chevauchement des orbitales entre l'atome de Fe et l'atome d'O situé au-dessus de lui. Ainsi, la conductance du canal majoritaire est de plus en plus diminuée lorsque la concentration d'oxygène augmente, comme cela est illustré à la figure IV-25. La modification de la densité électronique implique également un changement dans la charge électronique des atomes d'oxygène constituant la première couche de MgO. L'évolution de la charge électronique sur ces atomes d'O en fonction de la concentration en oxygène dans la couche de FeO<sub>x</sub> est illustrée sur cette même figure. Il est remarquable que la conductance du canal majoritaire suive exactement la même variation. Cela montre sans ambiguïté que le processus tunnel se fait entre les atomes de Fe et les atomes d'O situés au-dessus d'eux dans la couche de MgO.

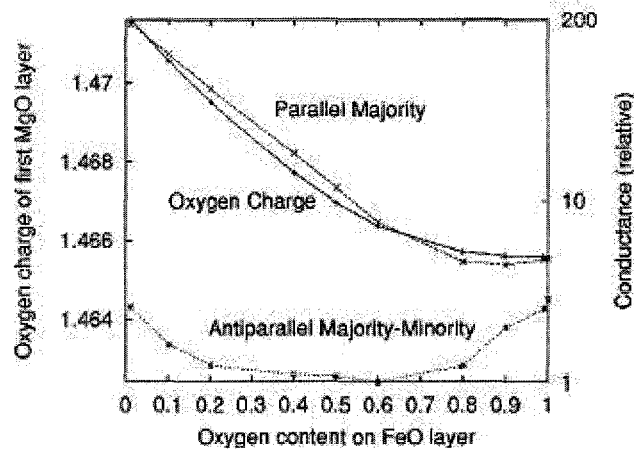


figure IV-25

Charge sur l'atome d'O dans la couche de MgO juxtaposée à la couche de FeO (trait continu) et conductance des canaux majoritaire parallèle et majoritaire-minoritaire antiparallèle (en pointillés) en fonction de la concentration d'O dans la couche de FeO. Les conductances sont normalisées de telle sorte que le minimum de la conductance majoritaire-minoritaire antiparallèle soit égal à 1 [Zhang\_PRB68\_2003].

La présence d'une couche de FeO déplace la charge électronique par hybridation entre les orbitales du Fe et celles des atomes d'O du plan de l'interface. Ce changement dans la densité électronique est également perceptible au niveau du moment magnétique de l'atome de Fe de l'interface (figure IV-26) : alors que le moment d'un atome de Fe associé à une interface parfaite est de 0.19 électron×Bohr, il chute à seulement 0.05 électron×Bohr pour un atome magnétique dans une couche de FeO.

En revanche, la conductance du canal AP majoritaire-minoritaire n'est que peu affectée. En effet, le courant antiparallèle est porté par des électrons  $\Delta_5$  (principalement de type *d*) qui ne sont pas concernés par ce transfert de charge et par les liaisons *s* et *p* créées entre le Fe et l'O (l'atome d'oxygène ne possède que des électrons *s* et *p*).

Il faut maintenant rappeler que les deux canaux de conduction que sont les canaux « parallèle  $\Delta_1$  majoritaire  $\rightarrow$  majoritaire » et « antiparallèle  $\Delta_5$  majoritaire  $\rightarrow$  minoritaire » dominent le transport tunnel dans leur configuration magnétique respective. Puisque le premier est fortement diminué alors que le deuxième n'est que peu affecté par la présence d'O à l'interface, on peut s'attendre à une TMR fortement réduite par rapport au cas idéal. L'impact quantitatif de la concentration d'oxygène dans la couche d'oxyde de fer sur la magnétorésistance est illustré à la figure IV-26 : la TMR chute d'environ 4600% (interface parfaite sans oxygène) à seulement 100% (interface FeO complète) pour huit monocouches de MgO.

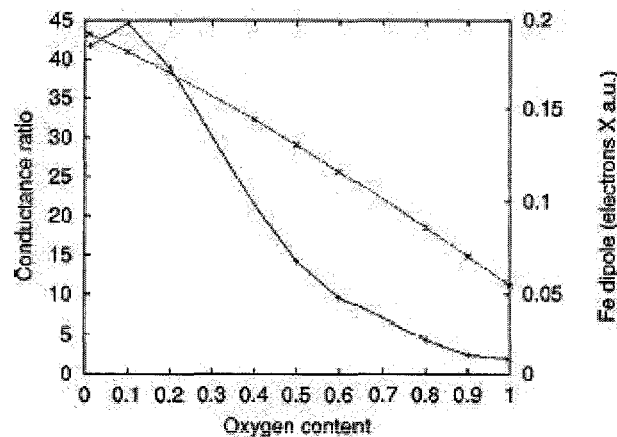


figure IV-26

Rapport des conductances P et AP (trait continu) en fonction de la concentration en oxygène dans la couche de FeO pour huit monocouches de MgO. Le moment dipolaire est représenté en pointillés [Zhang\_PRB68\_2003].

Puisque la formation de liaisons Fe-O est responsable de la dépopulation des états  $\Delta_1$  et donc de la chute de la TMR, il est intéressant de regarder si ces liaisons vont affecter le courant tunnel en terme de taux d'atténuation ou de raccordement des fonctions d'onde. La comparaison des TDOS pour  $k_{\parallel}=0$  pour les empilements Fe/MgO/Fe et Fe/FeO/MgO/Fe est faite à la figure IV-27. On constate que la présence d'une couche de FeO fait fortement chuter les probabilités de transmission. En revanche, ni le taux d'atténuation ni le raccordement des fonctions d'onde à l'interface MgO/Fe de droite ne semblent affectés.

Considérons maintenant l'interface Fe/FeOx/MgO de gauche sur cette même figure IV-27. Les atomes d'O dominent la TDOS dans les couches où ils sont présents [Zhang\_PRB68\_2003]. Dans le cas d'une interface Fe/MgO, les atomes d'O sont situés au-dessus de la première couche de Fe (voir figure IV-24). Dans le cas d'une interface FeO, le transport tunnel va être dominé par le transfert électronique entre les atomes d'O de l'interface et les atomes de Fe situés en dessous d'eux, c'est-à-dire ceux de la deuxième couche superficielle de Fe. Alors que les composantes  $s$  et  $p$  d'un état  $\Delta_1$  sont à peu près égales sur les sites d'O dans la couche de MgO, il y a beaucoup plus de caractère  $p$  (et donc nécessairement moins de  $s$ ) pour un atome d'O dans la couche de FeO.

La conduction via les orbitales  $p$  de l'oxygène est limitée par celles du Fe et la conduction via les orbitales  $s$  est fortement réduite (les électrons  $s$  du Fe se raccordent nettement moins bien que dans le cas d'une interface Fe/MgO). Autrement dit, la symétrie de la fonction d'onde sur les sites d'O dans la couche de FeO est moins compatible avec celle des atomes de Fe que celle sur les sites d'O dans la couche de MgO. Par conséquent, l'efficacité d'extraction de spin est nettement diminuée et ceci explique pourquoi on a une décroissance extrêmement rapide de la TDOS dans la fine couche d'oxyde de fer. Mais une fois le raccordement à l'interface effectué, le taux d'atténuation est strictement identique. En fin de compte, la couche de FeO diminue la TDOS de plus d'un ordre de grandeur et la TMR d'autant. Ce phénomène met une fois de plus en valeur l'importance du raccordement à l'interface et ce comportement est à rapprocher de ce qui sera vu au paragraphe IV.6.2.1 pour le ZnSe : le taux d'atténuation n'est pas tout, il faut aussi considérer le raccordement à l'interface.

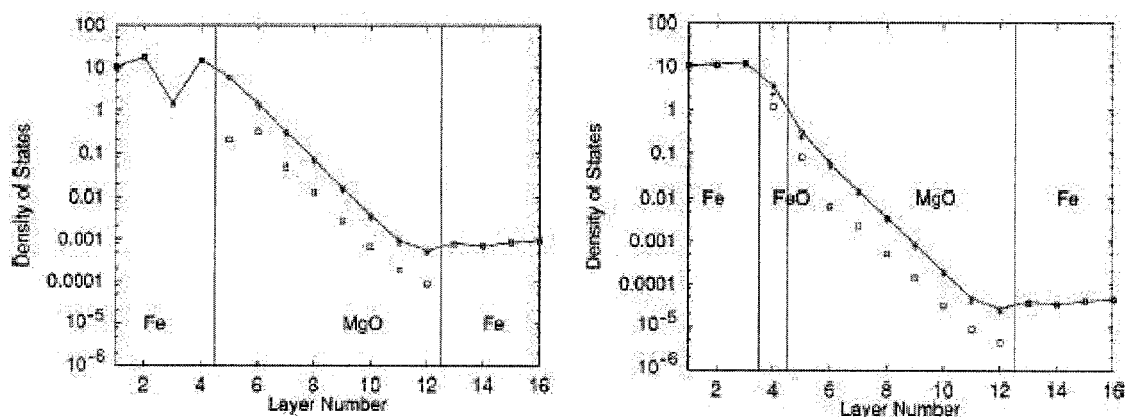


figure IV-27

TDOS pour  $k_{\parallel}=0$  pour les structures Fe(100)/MgO(8MC)/Fe(100) et Fe(100)/FeO/MgO(8MC)/Fe(100). Les traits continus correspondent à la TDOS sommée sur chaque couche atomique, les croix sont la contribution des atomes d'O, les carrés sont la contribution des atomes de Mg ou des atomes de Fe [Zhang\_PRB68\_2003].

Par extension, le raisonnement détaillé dans cette partie s'applique à toute espèce chimique contaminante ne possédant que des orbitales  $s$  et  $p$ , et qui ont ainsi une influence plus ou moins néfaste suivant l'élément chimique considéré (voir paragraphe V.1.4).

## IV.6.2 Influence de la séquence d'empilement

### IV.6.2.1 Fe/ZnSe/Fe

Freyss et al ont approfondi les calculs réalisés par Butler et ses collaborateurs sur Fe/ZnSe/Fe : ils ont considéré différents types de terminaisons à l'interface entre le Fe et le ZnSe (structure de type Blende), c'est-à-dire des empilements Fe/ZnSeZn... ou Fe/SeZnSe... [Freyss\_PRB66\_2002]. Leurs calculs *ab initio* basés sur la méthode LKKR montrent que les MIGS correspondant au pic dans la DOS du Fe minoritaire sont présents à l'énergie  $E_F$  quelque soit la terminaison de



l'interface (Zn ou Se). En effet, ce sont des électrons  $d$  qui ne trouvent pas de partenaires pour former des liaisons avec les orbitales  $sp$  du semi-conducteur. Dans le cas d'une interface Fe/Zn, il n'y a pas de MIGS dans la DOS majoritaire alors que pour une terminaison Fe/Se, l'état d'interface est situé à 2eV en dessous du niveau de Fermi. Par conséquent, la polarisation en spin des MIGS et donc du courant tunnel est moins importante dans le cas d'une terminaison Se que dans le cas d'une terminaison Zn. Ainsi, la TMR devrait être plus importante dans le cas d'un empilement Fe/ZnSeZn... que pour Fe/SeZnSe... Dans le cas d'une barrière GaAs, les auteurs font remarquer que l'influence de la séquence d'empilement est analogue, Ga se comportant comme Zn et As comme Se.

#### IV.6.2.2 Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co

La plupart des JTM qui ont été réalisées jusqu'à présent sont faites avec des barrières d'alumine, et cette dernière est amorphe. Une telle structure est impossible à modéliser pour effectuer des calculs *ab initio*. Oleinik et al. ont voulu comprendre les propriétés tunnel dans le système Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co en évaluant l'impact de la structure atomique interfaciale sur la structure électronique locale [Oleinik\_PRB62\_2000]. Cela a été possible en considérant non pas une phase amorphe, mais une phase cristalline  $\alpha$ - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (saphir) avec l'orientation [0001] sur un plan (111) de Co cfc. S'inspirant des problèmes expérimentaux récurrents de sous- ou sur-oxydation de la barrière d'alumine, leurs travaux prennent en compte deux types d'interfaces : une terminaison en Al et une terminaison en O, respectivement. Ainsi, ils ont mis en évidence une modification du moment magnétique des atomes de Co à l'interface dans le cas d'une terminaison en Al alors qu'il n'y avait presque aucun changement pour une terminaison en O. Dans cette dernière configuration, la DOS locale minoritaire décroît plus rapidement avec l'épaisseur d'isolant que la DOS majoritaire. La DOS minoritaire étant plus importante que la DOS majoritaire à la surface du Co, ceci se traduit par une polarisation en spin initiale négative et devenant positive à partir de 10Å d'alumine.

#### IV.6.2.3 Co/SrTiO<sub>3</sub>/Co

La même équipe a réalisé un travail similaire pour une barrière en SrTiO<sub>3</sub> dont les différentes terminaisons sont représentées à la figure IV-28 [Oleinik\_PRB65\_2001]. La configuration la plus stable est constituée par une interface TiO<sub>2</sub> dont les atomes de O se superposent aux atomes de Co (schéma a, figure IV-28). Les calculs de structure électronique montrent la création d'un moment magnétique antiparallèle sur les atomes de Ti à l'interface. Ceci a le même effet que de changer la direction du moment magnétique de l'interface de la couche ferromagnétique et se traduit par une inversion de la polarisation en spin comme cela fut vérifié expérimentalement par de Teresa et al [DeTeresa\_PRL82\_1999].

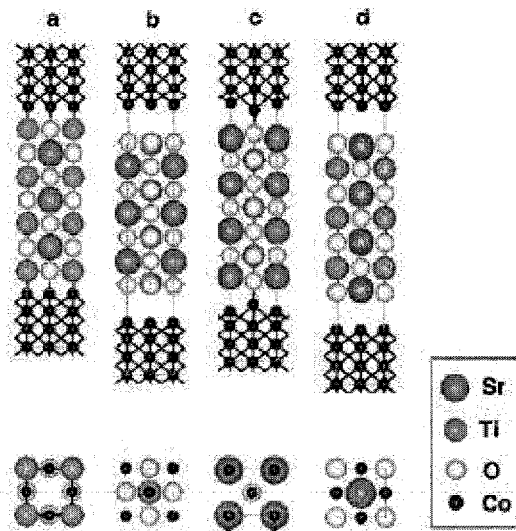


figure IV-28

Les différentes configurations possibles pour la tricouche Co/SrTiO<sub>3</sub>/Co :

- interfaces TiO<sub>2</sub> (a) avec O au sommet du Co et (b) avec Ti au sommet du Co

- interfaces SrO avec Sr et O (c) au sommet du Co et (d) dans les sites interstitiels [Oleinik\_PRB65\_2001].

### IV.6.3 Influence des effets de désordre

La prise en compte de la rugosité est extrêmement difficile. Seules quelques approches grossières ont été développées [Caroli\_JPC4\_1971 ; Itoh\_JPSJ68\_1999]. La rugosité se présente sous différentes formes : rugosité purement «géométrique», défauts d'empilements, dislocations ou plus simplement interdiffusion. Toutes ces rugosités modifient la structure électronique locale en cassant la symétrie du système ce qui se traduit par un mélange des états de Bloch se propageant dans l'électrode correspondante.

S'il s'agit de l'interface {électrode émettrice/barrière}, alors tous les électrons en sont extraits indépendamment de leur symétrie : l'effet de sélection vu au paragraphe IV.1 est moins efficace. Cependant, la barrière isolante et l'électrode collectrice filtrent toujours ces électrons en fonction de leur symétrie propre. Finalement, la conductance totale reflète les propriétés électroniques de la barrière et de son interface avec l'électrode réceptrice.

Supposons maintenant que l'électrode rugueuse joue le rôle de l'électrode collectrice. Les électrons viennent scanner sa DOS dont on peut supposer, puisque l'interface est rugueuse, qu'elle ne présente pas de caractéristiques abruptes et que par exemple, aucun état de résonance interfaciale n'est présent, un peu à l'image d'une bande *s*. Par conséquent, le transport tunnel reflète principalement les propriétés de la barrière tunnel et de l'électrode émettrice monocristalline.

## IV.7 Conclusion

Ce chapitre a mis en évidence les phénomènes électroniques propres aux systèmes épitaxiés. Ces particularités montrent que le modèle de Jullière n'est pas adapté pour décrire le transport dans une structure cristalline. Alors que dans les barrières amorphes on distingue les électrons suivant leur caractère orbital, dans un système épitaxié, ils sont regroupés par leurs propriétés de symétrie déduites des représentations irréductibles du groupe d'espace. La symétrie des états de Bloch et leur relation avec la structure de bandes complexes de l'isolant déterminent la conductance tunnel. De plus, les états de résonance interfaciale peuvent fortement augmenter la probabilité tunnel grâce à la grande amplitude de la fonction d'onde.

Dans le cas du Fe(100), le niveau de Fermi est peuplé d'états de Bloch  $\Delta_1$ ,  $\Delta_2$ ,  $\Delta_5$  pour le spin majoritaire et  $\Delta_2$ ,  $\Delta_2'$  et  $\Delta_5$  pour le spin minoritaire. L'analyse de la structure en bandes complexes donne le taux de décroissance des MIGS associés à chacune de ces symétries électroniques :  $\kappa_{\Delta_1} < \kappa_{\Delta_5} < \kappa_{\Delta_2} \ll \kappa_{\Delta_2'}$ . De plus, sur l'ensemble de la zone de Brillouin, seuls les MIGS ayant un  $\kappa$  proche de  $\kappa_{\min}$  participent efficacement au courant tunnel. Ainsi, au delà de la « simple » polarisation exprimant la différence des populations de spin au niveau de Fermi, on doit concevoir une polarisation basée sur le concept de symétrie électronique.

Compte tenu des taux d'atténuation et le Fe(100) étant un demi-métal pour la symétrie  $\Delta_1$ , le transport dans la configuration parallèle est dominé par le canal majoritaire  $\Delta_1$  alors que le canal  $\Delta_5$  (et principalement le canal  $\Delta_{5\text{maj}} \rightarrow \Delta_{5\text{min}}$ ) gouverne la conductance antiparallèle. Par suite, les calculs numériques basés sur la méthode LKKR prévoient de grands effets magnétorésistifs qui augmentent avec l'épaisseur de l'isolant. La conductance minoritaire résolue en  $k_{\parallel}$  montre la présence d'états de résonance interfaciale qui dominent le transport pour de faibles épaisseurs (transport quasi balistique) et jouent un rôle dans le régime des épaisseurs intermédiaires.

Nous avons mis également en évidence l'importance des liaisons chimiques à l'interface : si un faible taux de décroissance est nécessaire pour dominer le courant tunnel, il faut de plus que la fonction d'onde puisse se raccorder aux interfaces comme l'ont montré les notions d'efficacité d'extraction (cas du ZnSe) et d'injection de spin (électrons  $\Delta_1$  en configuration antiparallèle). Ces liaisons chimiques sont extrêmement sensibles à bons nombres de paramètres : séquence d'empilement de la barrière, espèce chimique contaminante, rugosité et peuvent considérablement altérer les propriétés de transport par rapport aux prédictions théoriques.

Ce chapitre a mis en évidence la complexité du transport dans un système ordonné : les électrodes monocristallines sélectionnent et la barrière épitaxiée filtre les symétries électroniques. Ces mécanismes permettent d'obtenir des signatures franches de la structure interfaciale (efficacité d'injection/extraction, IRS,...) comme nous allons voir dans le chapitre suivant.

## Chapitre V

# Phénomènes de transport tunnel polarisé en spin dans le système épitaxié Fe/MgO/Fe

Le chapitre II a décrit les qualités structurales de nos multicouches. Elles ont montré que nous sommes proches du système modèle dont les mécanismes de transport ont été appréhendés au chapitre IV. Nous sommes maintenant au point de convergence et à l'aboutissement de ces deux chapitres. Au travers de l'analyse des résultats de magnétotransport présentés ici, un certain nombre de mécanismes fondamentaux et de prédictions théoriques sont abordés et expérimentalement démontrés.

La première partie concerne les phénomènes de magnétotransport observés ; ils montrent que la physique fondamentale sous-jacente dépasse le cadre du modèle des électrons libres. Cependant une analogie approximative est possible et sera décrite dans le régime des grandes épaisseurs. L'évolution des mécanismes de transport avec la température sera examinée, de même que l'impact de la concentration de carbone à l'interface dont l'influence sur la TMR sera démontrée.

Une partie sera consacrée à la mise en évidence de la participation à la conductance tunnel d'un état de résonance interfaciale situé dans la bande de spin minoritaire. Ceci entraîne une inversion du signe de la magnétorésistance avec la tension appliquée. Dans ce même domaine, l'étude de la symétrie électronique de cet état montrera un autre résultat fort : l'établissement d'un canal AP de symétrie  $\Delta_1$ , théoriquement interdit aux faibles tensions.

Nous avons également utilisé le transport tunnel pour mieux caractériser le magnétisme de nos couches. Cette propriété a déjà été mise à profit au chapitre III avec les systèmes AAF. De plus, nous utiliserons un système de type *exchange spring magnet* pour « inhiber » artificiellement l'état de résonance interfaciale en modifiant les épaisseurs des couches magnétiques.

Enfin, nous montrerons comment la manipulation des structures de bandes et des symétries électroniques suivant la nature des couches déposées permet d'obtenir des propriétés magnétorésistives « prépensées ».

## V.1 Magnétorésistance tunnel

### V.1.1 Forte valeur de la TMR

Les premiers résultats de magnétorésistance obtenus par notre équipe ont été de 15% à température ambiante pour une barrière de 10Å de MgO [Popova\_APL81\_2002]. La grande taille des jonctions tunnel ( $200 \times 100 \mu\text{m}^2$ ) et la faible valeur de la résistance tunnel liée à la faible épaisseur de la barrière nous obligèrent à faire les mesures en *mode deux points* de façon à limiter les effets géométriques [Veerdonk\_APL71\_1997 ; Montaigne\_JMMM217\_2000 ; annexe F].

Ces premiers résultats étaient prometteurs. Les calculs théoriques réalisés sur le système épitaxié Fe/MgO/Fe prédisent une augmentation de la TMR avec l'épaisseur de l'isolant. En accord avec les prédictions théoriques, nous avons ainsi observé, à température ambiante, 67% de TMR pour 25Å de MgO [Faure-Vincent\_APL82\_2003] et 100% pour 30Å de MgO (figure V-1).

Les diverses améliorations, aussi bien structurales, chimiques ou lithographiques, ont permis d'augmenter la valeur de la TMR et d'obtenir des résultats reproductibles. Malheureusement, pour de plus grandes épaisseurs d'isolant, l'augmentation exponentielle de la résistance entraîne soit des résistances impossibles à mesurer avec notre dispositif expérimental soit des problèmes de conductance parasite à travers le SiO<sub>2</sub> (annexe F). La figure V.1 montre le cycle de magnétorésistance pour une jonction avec 30Å de MgO sous une tension appliquée de 10mV et selon l'axe de facile aimantation. Les cycles magnétorésistifs sont en accord avec les cycles d'aimantation présentés au chapitre III : à fort champ magnétique, les deux couches sont en configuration parallèle (P) puis, lorsque le champ magnétique diminue et inverse son signe, le retournement de la couche douce s'effectue vers -200e. La jonction est alors en configuration antiparallèle (AP) et cela se traduit par une brusque augmentation de la résistance. L'état AP est conservé jusqu'à ce que l'intensité du champ magnétique soit assez forte pour retourner la bicouche dure Fe/Co à son tour.

Pour des telles épaisseurs de barrière (25-30Å), la résistance de la jonction proprement dite est nettement supérieure à la résistance carrée des électrodes de telle sorte que la longueur caractéristique des effets de distribution de courant est largement supérieure à la taille d'une jonction mesurée [Veerdonk\_APL71\_1997 ; Montaigne\_JMMM217\_2000]. Ceci nous permet d'exclure d'éventuels effets géométriques. De plus, ces mesures ont été effectuées en *mode deux points* ; ainsi, même si des effets géométriques étaient présents, la TMR mesurée serait sous-estimée alors qu'en *mode quatre points*, elle pourrait être sur-estimée, comme cela fut le cas avec

les premiers résultats de magnétorésistance obtenus par Miyazaki et Tezuka sur des échantillons Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Fe [Miyazaki\_JMMM139\_1995].

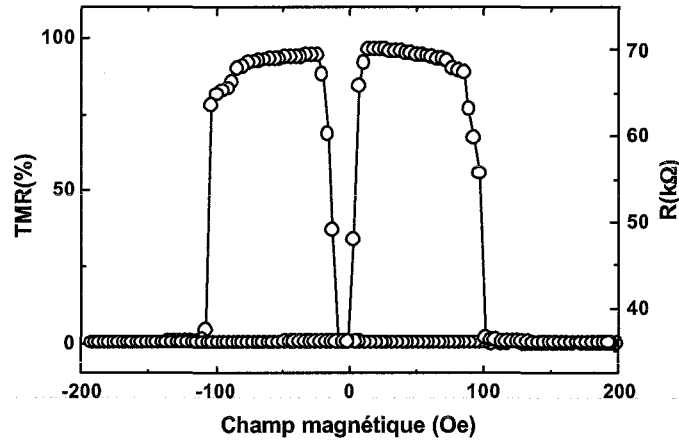


figure V-1  
Cycle de magnétorésistance pour un échantillon Fe/MgO(30Å)/Fe réalisé suivant l'axe [100]<sub>Fe</sub>.

## V.1.2 Simulation des courbes courant-tension

### V.1.2.1 Courbes I(V) expérimentales

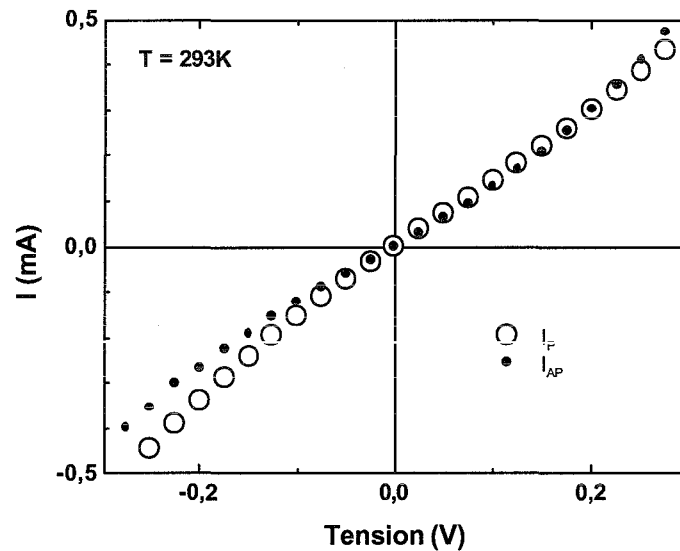


figure V-2  
Courbes I(V) en configuration P et AP pour une jonction Fe/MgO(25Å)/Fe.

La figure V-2 représente les courbes I(V) en configuration P et AP pour une barrière de 25Å de MgO. La courbe I<sub>F</sub> a un comportement très différent suivant le signe de la tension appliquée : en tension négative, la courbe présente le profil caractéristique incurvé mais en tension positive, c'est-à-dire quand les électrons sont injectés dans l'électrode inférieure de Fe, on observe une

évolution plutôt linéaire. Le comportement de l'intensité en configuration AP est lui aussi nettement différent suivant le sens de la tension appliquée : alors que le courant  $I_{AP}$  est inférieur au courant  $I_P$  en tension négative, il augmente fortement et dépasse le courant  $I_P$  en tension positive : cette augmentation considérable de la conductance du canal AP est reliée à la contribution des états de résonance interfaciale et sera traitée au paragraphe V.2. Les différences observées entre les tensions positive et négative peuvent s'expliquer par des interfaces Fe/MgO et MgO/Fe différentes (chimiquement ou structurellement). En revanche, l'évolution des courants P et AP en tension positive traduit un comportement très différent : le courant P semble suivre une loi linéaire et le courant AP augmente plus que dans sa partie en tension négative.

Ceci reflète simplement que le transport tunnel n'est pas gouverné par les mêmes mécanismes premièrement suivant le signe de la tension appliquée et deuxièmement suivant la configuration magnétique.

### V.1.2.2 Pourquoi le modèle de Brinkman est-il inadapté ?

Les modèles de Simmons [Simmons\_JAP34\_1963] et Brinkman [Brinkman\_JAP41\_1970] sont très utilisés pour simuler les courbes  $I(V)$  des JTM afin d'en extraire la hauteur moyenne et l'épaisseur de la barrière. Ces formules reposent sur le modèle des électrons libres, ne considèrent qu'un seul type d'électrons se propageant perpendiculairement à la barrière ( $k_{//}=0$ ) et leur associent

un unique vecteur d'onde dans la barrière  $\kappa = \sqrt{\frac{2m^* \phi}{\hbar^2}}$  dans lequel  $\phi$  et  $m^*$  sont respectivement la hauteur de la barrière et la masse effective de l'électron dans la barrière.

Nous avons déjà signalé les raisons pour lesquelles de tels modèles basés sur le concept des électrons libres ne sont pas satisfaisants pour décrire les processus tunnel dans les jonctions épitaxiées (chapitres I et IV). Les courbes  $I(V)$  en sont l'une des manifestations : la simulation ne donne qu'une hauteur de barrière moyenne ainsi qu'un vecteur d'onde effectif,  $\kappa_{\text{eff}}$ , pour l'ensemble des électrons impliqués dans une configuration donnée alors que l'analyse de la conductance dans les systèmes épitaxiés montre clairement la contribution d'états de différentes symétries. De plus, les paragraphes IV.5 et V.2 montrent la participation d'états positionnés à des endroits précis sur la zone de Brillouin dont l'influence se fait fortement ressentir pour des épaisseurs faibles. Par conséquent, contrairement au modèle des électrons libres (et de Brinkman),  $\kappa_{\text{eff}}$  dépend en fait de l'épaisseur de l'isolant et il en est de même pour la masse effective et la hauteur de la barrière. De même, il ne faut pas considérer uniquement les électrons ayant un  $k_{//}$  nul : les simulations de Brinkman donnent un  $\kappa_{\text{eff}}$  qui intègre tous les électrons indifféremment de leur composante parallèle, alors qu'en réalité, aucun d'eux ne perçoit la barrière de la même manière.

De plus, le transport tunnel est sensible à la DOS de l'électrode collectrice explorée par les électrons. La forme de cette DOS est caractéristique de la structure cristalline du métal et ne peut pas être décrite correctement par des bandes paraboliques (modèle des électrons libres) dans la gamme de tension pour laquelle les simulations de Brinkman sont généralement effectuées.

Enfin, ces modèles de simulation ne prennent pas en compte le magnétisme des électrodes alors que les symétries électroniques impliquées sont différentes dans l'une ou l'autre des configurations.

### V.1.2.3 Rapprochement du transport tunnel dans les systèmes épitaxiés avec le modèle simple des électrons libres

Si l'on souhaitait toujours raisonner dans une approche du modèle des électrons libres, une description plus adéquate conduirait à définir, pour chaque spin, chaque symétrie et chaque état magnétique, une masse effective  $m_{\Delta_i}^*$  et une hauteur de barrière  $\phi_{\Delta_i}$  bien spécifiques et à leur associer un vecteur d'onde  $\kappa_{\Delta_i}$ . Un rapprochement avec l'analyse de la structure en bandes complexes vue au paragraphe IV.2 est alors envisageable : les bandes de valence et de conduction des électrons  $\Delta_1$  dans le MgO ne sont séparées que de 7.8eV ; à l'inverse, l'écart entre la bande de valence  $\Delta_5$  et la bande de conduction  $\Delta_5$  vaut approximativement 20eV. Par conséquent, on peut dire que la barrière de potentiel  $\phi_{\Delta_5}$  vue par un électron  $\Delta_5$  est plus grande que celle vue par un électron  $\Delta_1$  : on peut imaginer que chaque symétrie perçoit une marche d'une hauteur qui lui est spécifique. Toujours dans l'idée d'un rapprochement avec un modèle simpliste, une bande  $\Delta_5$  ( $p, d$ ) est faiblement dispersive, on peut donc lui associer une masse effective plus importante que celle d'une bande  $\Delta_1$  ( $s, p, d$ ) fortement dispersive. En raisonnement d'électron libre, cela implique que

$$\kappa_{\Delta_5} = \sqrt{\frac{2m_{\Delta_5}^* \phi_{\Delta_5}}{\hbar^2}}$$

est supérieur à  $\kappa_{\Delta_1}$  ; autrement dit, la probabilité de transmission d'un état  $\Delta_5$

décroit plus vite qu'un état  $\Delta_1$  quand on pénètre dans l'isolant. Ainsi, des raisonnements similaires tenus pour toutes les autres symétries permettent de modéliser en première approximation le transport dans un système cristallin par l'association en parallèle de canaux de conductance avec des taux d'atténuation différents, chacun correspondant à une symétrie donnée. Ceci est illustré à la figure V-3. Cette figure ne représente que les quatre canaux de conduction associés aux symétries « pures » ( $k_{\parallel}=0$ )  $\Delta_1, \Delta_2, \Delta_2'$  et  $\Delta_5$ . Les électrons ayant un  $k_{\parallel}$  non nul n'appartiennent plus à ces symétries et l'étude est plus compliquée puisque tous les caractères orbitaux entrent en jeu (voir paragraphe IV.1.5). Cependant, en se plaçant dans le régime des fortes épaisseurs, on peut limiter notre modèle aux seuls canaux de conduction perpendiculaires à l'interface. On associe alors à chaque canal un  $\kappa_{\Delta_i}$  reflétant sa participation au courant tunnel : en configuration P,  $\kappa_{\Delta_2'} > \kappa_{\Delta_2} > \kappa_{\Delta_5} > \kappa_{\Delta_1}$  et en configuration AP,  $\kappa_{\Delta_2'} > \kappa_{\Delta_2} > \kappa_{\Delta_5}$  ( $\kappa_{\Delta_1} = +\infty$  car le canal AP  $\Delta_1$  n'existe pas à faible tension). Dans ce cas, la conductance totale est  $G \propto \sum_{\Delta_i} \exp(-2\kappa_{\Delta_i} d_{MgO})$ .



Dans le régime asymptotique où nous nous sommes placés, la conductance totale est dominée par la conductance la plus grande si bien que le  $\kappa_{\text{eff}}$  total correspond en fait à la symétrie survivante ( $\Delta_1$  en configuration P et  $\Delta_5$  en configuration AP). Ce modèle rejoint les prédictions magnétorésistives théoriques : puisque  $\kappa_{\Delta_5}$  (configuration AP)  $\gg$   $\kappa_{\Delta_1}$  (configuration P), on s'attend à une forte valeur de la TMR et à son augmentation avec l'épaisseur de MgO.

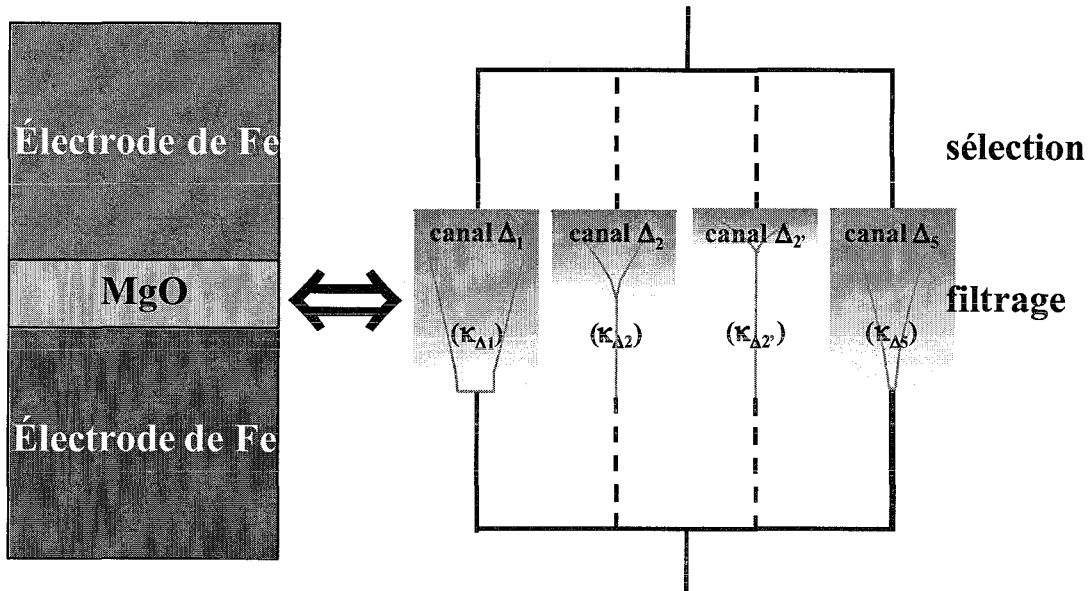


figure V-3  
Schéma illustrant l'équivalence simpliste entre la jonction tunnel Fe/MgO/Fe et l'association de résistances en parallèle dans le régime des grandes épaisseurs. Chaque résistance est proportionnelle à  $\exp(2\kappa_{\Delta_i} d_{\text{MgO}})$  avec  $\kappa_{\Delta_1} = +\infty$  en configuration AP. Les canaux de conduction  $\Delta_2, \Delta_2'$  sont en pointillés car ils participent très peu au courant tunnel, quelque soit la configuration magnétique.

#### Régime des faibles épaisseurs

Lorsque l'épaisseur de MgO ne fait que quelques plans atomiques, la configuration AP est gouvernée par les états de résonance interfaciale dont la transmission est quasi unitaire. En raisonnement d'électrons libres, cela revient à postuler une hauteur de barrière quasi nulle et un

$$\kappa = \sqrt{\frac{2m^* \phi}{\hbar^2} + k_{||}^2}$$

pour lequel cette fois-ci on ne peut absolument plus considérer les seuls états

tels que  $k_{||}=0$  puisque les états de résonance interfaciale sont localisés autour de  $\bar{\Gamma}$  mais pas au point  $\bar{\Gamma}$  (pour de faibles tensions). Par conséquent, en dehors des grandes épaisseurs, il est non seulement nécessaire d'intégrer l'ensemble des états sur la zone de Brillouin mais il faut également modifier pour chaque épaisseur la valeur du taux d'atténuation de chaque symétrie.

Cette dépendance du taux d'atténuation en fonction de l'épaisseur de la barrière fausse la valeur de la résistance théorique prévue par le modèle de Brinkman par rapport à la résistance expérimentale.

La simplicité de ce modèle créé par analogie avec celui des électrons libres mais avec différentes marches de potentiel est toute relative : la complexité réside dans l'impact du réseau cristallin d'une part, des électrodes qui sélectionnent les électrons et les différencient en fonction de leur symétries électroniques et d'autre part, de la barrière pour laquelle les types d'électrons ressentent différentes marches de potentiel, ce qui n'est, en fait, qu'une version fortement simplifiée de la structure des bandes complexes.

### V.1.3 Etude en température

La dépendance en température des résistances  $R_P$  et  $R_{AP}$  est illustrée à la figure V-4. Comme cela est attendu dans le cas d'un transport tunnel [Akerman\_APL79\_2001], la résistance augmente lorsque la température diminue de la température ambiante à 80K.

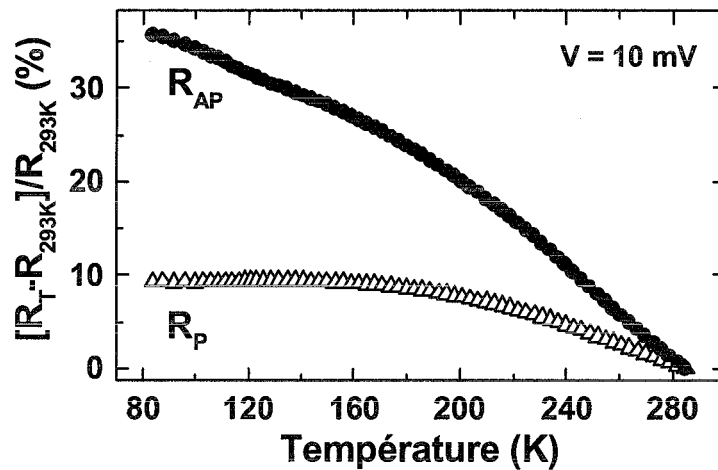


figure V-4

Variation relative de la résistance tunnel en fonction de la température pour une jonction Fe/MgO(25Å)/Fe dans les configurations parallèle et antiparallèle.

Cependant, nos mesures indiquent que la variation de la résistance est plus prononcée pour  $R_{AP}$  (35% de variation relative par rapport à la température ambiante) que pour  $R_P$  (seulement 10% de variation relative). Les principaux mécanismes entrant en jeu dans la variation de la résistance tunnel avec la température sont connus : les émissions ou absorptions de magnons et phonons donnent naissance à des canaux de conduction additionnels [Zhang\_PRL79\_1997 ; Moodera\_PRL80\_1998] qui augmentent la conductance [Xu\_PRB52\_1995]. A très basse température, ces canaux de conduction additionnels sont gelés, la résistance est maximale. Puis, lorsque l'on augmente la température, les phénomènes de diffusion aux interfaces autorisent cette conduction parasite ce qui a pour effet de diminuer la résistance.

Nous faisons remarquer que la qualité structurale de nos jonctions ainsi que le mode de dépôt de la barrière (dépôt par canon à électron et non par oxydation d'une couche métallique, par exemple) nous permettent de rejeter les hypothèses d'un canal additionnel via des impuretés dans l'isolant créant des états localisés à des niveaux d'énergie précis [Zhang\_JAP83\_1998 ; Vedyayev\_PRB63\_2001].

### V.1.3.1 Influence de la température sur la configuration P

Dans le cas du système Fe/MgO/Fe, le canal majoritaire  $\Delta_1$  est le principal canal de conduction dans la configuration parallèle. Ses mécanismes de transport sont peu dépendants de la température : les magnons (ondes de spin  $\pm 1$ ) auraient pour effet de faire passer un électron de la bande  $\Delta_1$  de spin *up* dans la bande de spin *down*, ce qui est impossible puisqu'il n'y a pas d'état  $\Delta_1$  disponible dans cette bande (voir paragraphe IV.1). De même, l'effet tunnel assisté par phonon d'une part doit obéir à certaines règles de sélection et d'autre part, puisque nous sommes en présence d'un système cristallin, les phonons sont eux aussi soumis à des obligations de symétrie si bien que tous ne sont pas permis. Par conséquent, l'effet tunnel assisté par phonon est limité. De plus, la transmission des autres états de Bloch ( $\Delta_5$  principalement) est nettement inférieure et la transmission des canaux de conduction additionnels assistée par les phonons ou les magnons sur ces symétries est toujours nettement inférieure à celle des états  $\Delta_1$ . Ainsi, la résistance parallèle varie peu avec la température.

### V.1.3.2 Influence de la température sur la configuration AP

En revanche, en configuration antiparallèle, on ne peut plus négliger les contributions des magnons et des phonons. Dans cette configuration, le canal dominant est le canal  $\Delta_5$  ( $\Delta_{5\text{maj}} \rightarrow \Delta_{5\text{min}}$  et  $\Delta_{5\text{min}} \rightarrow \Delta_{5\text{maj}}$ ). Les magnons peuvent grandement faciliter le transport tunnel des électrons  $\Delta_5$  puisqu'il y a des états libres ayant la même symétrie dans l'électrode collectrice, quel que soit leur spin. Ces phénomènes diffusifs aux interfaces se développent au fur et à mesure que la température augmente et entraînent la participation de canaux de conduction parasites, ce qui se traduit par une augmentation de la conductance et une baisse de la résistance observée à la figure V-4.

Ainsi, les mécanismes de conduction suivant les deux canaux de spin sont différents. Une étude plus détaillée sur l'influence des phonons et des magnons notamment grâce à des expériences IETS (Inelastic Electron Tunneling Spectroscopy) fera partie des perspectives à développer à l'issue de cette thèse.

### V.1.3.3 Variation de la TMR avec la température

Ainsi, puisque les phénomènes de diffusion aux interfaces ne jouent pas sur les canaux de conduction de la même manière, les variations relatives des résistances  $R_P$  et  $R_{AP}$  ne sont pas identiques. En fait, lorsque la température augmente, les processus de diffusion des magnons affectent doublement la TMR : premièrement, l'écart entre  $G_P$  et  $G_{AP}$  diminue et deuxièmement, le terme  $G_{AP}$ , qui est le dénominateur dans l'expression  $TMR = \frac{G_P - G_{AP}}{G_{AP}}$ , augmente également.

Le résultat, illustré à la figure V-5, est une décroissance quasi-linéaire de la TMR avec T comme cela a précédemment été signalé par Bowen [Bowen\_thèse\_2003].

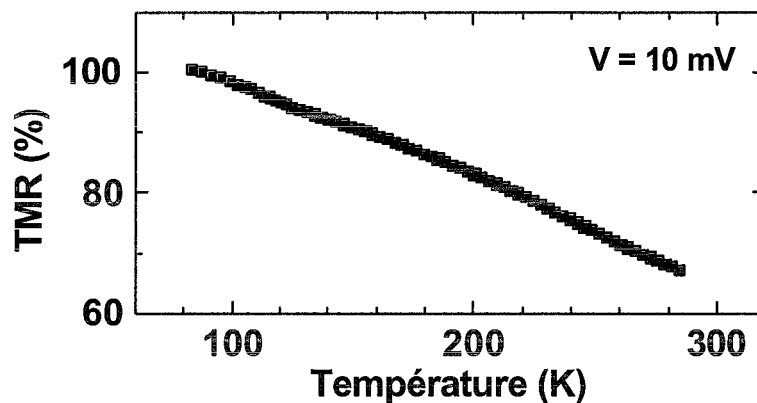


figure V-5

Variation de la TMR en fonction de la température pour une jonction Fe/MgO(25Å)/Fe.

### V.1.4 Influence de la nature chimique de l'interface sur le transport tunnel

L'approche qualitative de l'impact sur le transport de la modification de la nature chimique de l'interface a été abordée au paragraphe IV.6. Brièvement, l'hybridation d'orbitales  $s$  et  $p$  entre le Fe et les espèces contaminantes situées dans les sites interstitiels diminue la probabilité de transmission des électrons  $\Delta_1$  (donc  $G_P$  diminue) alors qu'elle n'affecte pas celle des électrons  $\Delta_5$  (qui gouvernent  $G_{AP}$ ). Par conséquent, les calculs théoriques ont prédit une forte diminution de la TMR. Nous présentons ici les premiers résultats quantitatifs obtenus sur trois échantillons ayant la même épaisseur de MgO (30Å, valeur correspondant à nos meilleurs résultats magnétorésistifs). Nous avons signalé au paragraphe II.2.2.6 la corrélation entre les raies de reconstructions sur la surface de la couche tampon de Fe recuite et la concentration en atomes de carbone (C). La figure V-6 présente les résultats obtenus sur un échantillon dont les clichés RHEED indiquaient une reconstruction atypique en (1/3 ; 2/3) (associée à une forte concentration de C), un échantillon avec la reconstruction C2x2 (correspondant à une concentration de C moindre), et enfin un

échantillon pour lequel aucune reconstruction n'était visible (le carbone a été piégé par une couche de MgO déposée sur le substrat).

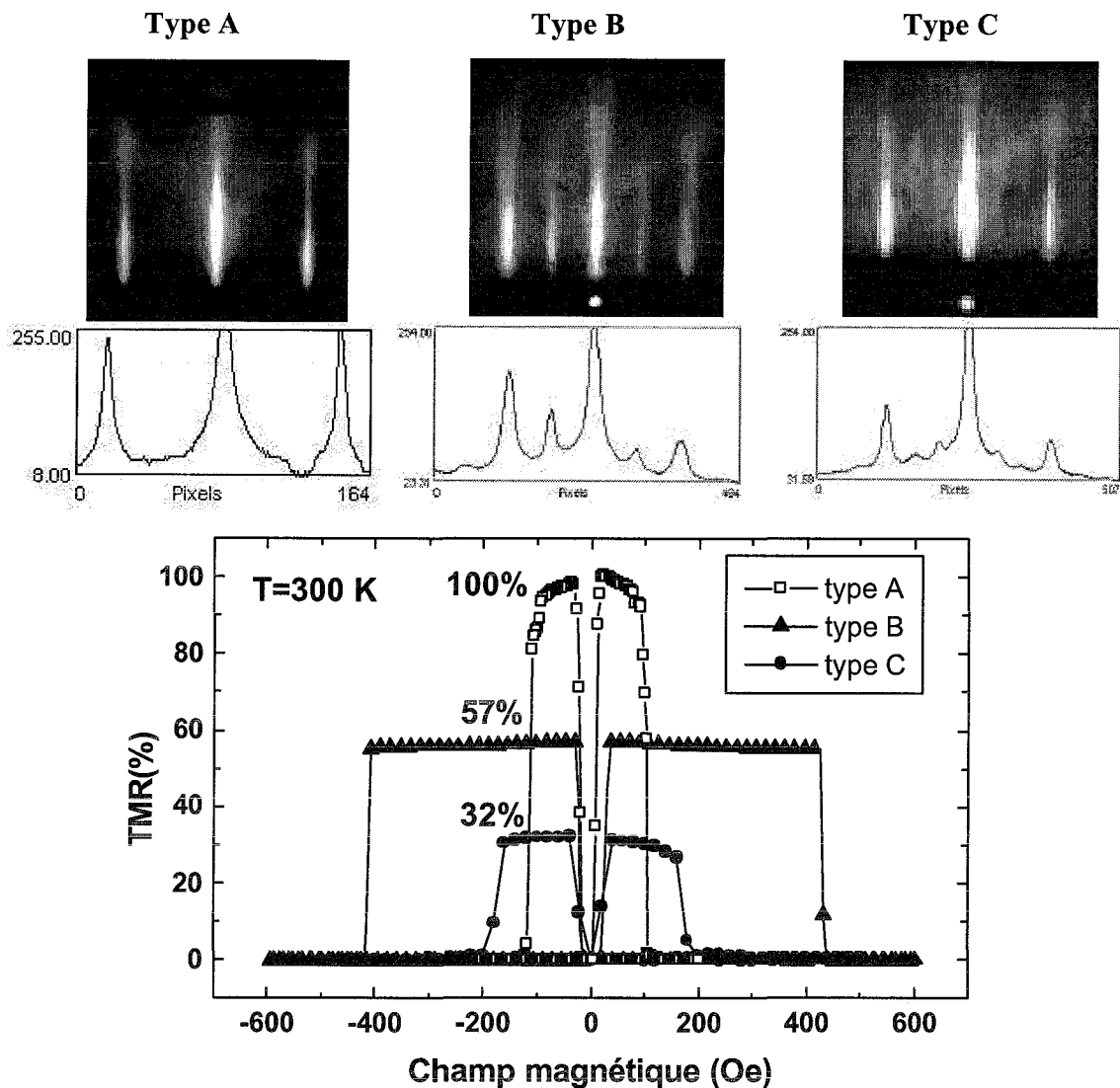


figure V-6

Illustration de l'influence de la contamination en carbone à l'interface inférieure Fe/MgO. La différence des champs coercitifs entre les échantillons s'explique par la réduction de l'épaisseur de la couche magnétique supérieure afin de limiter les inhomogénéités de gravure durant le procédé lithographique pour les échantillons A et C.

L'amplitude de la TMR augmente de 32% à 100% lorsque la concentration de C à l'interface inférieure Fe/MgO diminue. Malgré l'absence de caractérisation chimique *in situ* précise, ces résultats permettent de dégager une tendance. Ils sont en bon accord avec les travaux théoriques et montrent les modifications du transport tunnel par la contamination chimique de l'interface. Toutefois, pour l'instant, une analyse quantitative exacte est difficile car, comme cela a été démontré au paragraphe II.2.2.6.3, l'absence du carbone à l'interface rend possible une contamination en oxygène dont l'influence néfaste a été analysée au paragraphe IV.6. Des approfondissements sont en cours, aussi bien théoriques qu'expérimentaux.

## V.2 Mise en évidence d'un état de résonance interfaciale

Il a été expliqué au paragraphe IV.5 de quelle manière les états de résonance interfaciale (IRS pour *Interfacial Resonance State*) dominent le transport tunnel dans la gamme des faibles épaisseurs (quelques couches atomiques) et peuvent le modifier pour les épaisseurs moyennes (environ une dizaine de plans atomiques). Cette partie concerne la mise en évidence expérimentale de ces IRS. L'observation de tels états nécessite tout d'abord qu'ils existent en tant que tels. L'origine des IRS est liée à la rupture de la symétrie cristalline au niveau de l'interface et par conséquent, ces états sont très sensibles à la rugosité de l'interface. Grâce aux processus de croissance et de recuit, l'électrode inférieure de Fe est plane et peut être considérée comme une électrode monocristalline parfaite, à l'échelle des terrasses (typiquement 200nm). Nous pouvons donc nous attendre à la présence d'IRS comme le montrent les calculs de densité électronique interfaciale pour le plan (001) du Fe. Cependant, nous avons vu au paragraphe IV.6 que l'ajout d'espèces chimiques peut entraîner des hybridations d'orbitales et ainsi modifier les propriétés électroniques de l'interface. Fort heureusement, nous verrons au paragraphe V.2.5 que les contaminations en carbone et/ou en oxygène de l'interface inférieure Fe/MgO (identifiées au chapitre II) n'affectent que peu l'IRS que nous avons mis en évidence.

### V.2.1 Mise en évidence expérimentale

Pour les courbes illustrées dans ce paragraphe, l'électrode inférieure de Fe est connectée à la borne positive V+ de l'appareil de mesure. Lorsque la jonction est soumise à une différence de potentiel positive, les électrons extraits de l'électrode supérieure traversent l'isolant et scannent en énergie la densité électronique de l'électrode inférieure, comme cela est indiqué à la figure V-7.

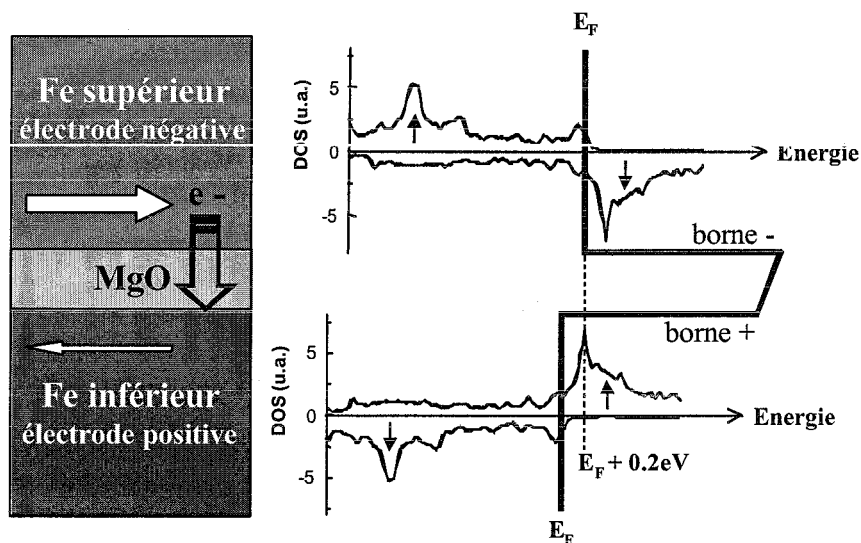


figure V-7

Schéma illustrant la correspondance des niveaux d'énergie lorsque la jonction est soumise à une différence de potentiel égale à 0.2V. Seule la configuration AP est représentée.

La figure V-8 présente les courbes  $I(V)$  et les courbes de conductance  $G(V)$  associées obtenues pour une jonction avec 25Å de MgO à la fois pour les configurations P et AP. Il est intéressant de remarquer que pour une tension de 0.19V, la conductance AP devient plus importante que la conductance P. Si l'on s'intéresse à la variation de la conductance, on s'aperçoit qu'elle est plus prononcée pour la configuration AP que pour la configuration P. L'étude de la densité électronique d'une interface Fe(001)/MgO révèle l'existence d'un pic dans la DOS minoritaire situé à quelques centaines de meV au dessus du niveau de Fermi (figure IV-18). Quand la jonction est soumise à une tension positive, les électrons du niveau de Fermi de l'électrode supérieure scannent ce pic de la DOS. Ceci s'accompagne d'un plus fort courant tunnel collecté et cela se traduit par l'augmentation considérable de la conductance AP qui dépasse la conductance P, entraînant ainsi une inversion du signe de la magnétorésistance ( $TMR = \frac{R_{AP} - R_P}{R_P} = \frac{G_P - G_{AP}}{G_{AP}}$ ), illustrée à la figure V-9.

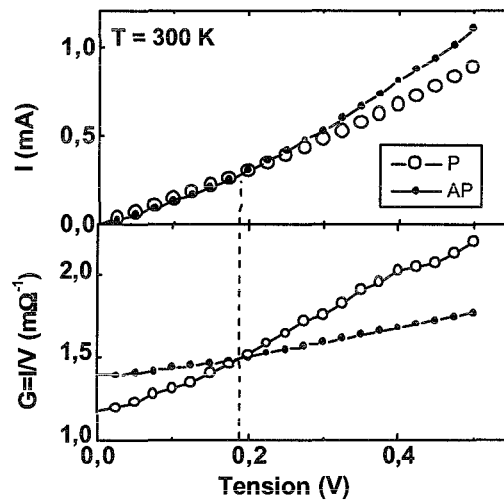


figure V-8  
Courbe  $I(V)$  pour une jonction Fe/MgO(25Å)/Fe et courbe déduite  $G(V)$  montrant plus clairement l'augmentation de  $G_{AP}$  qui dépasse  $G_P$  pour une tension de 0.19V.

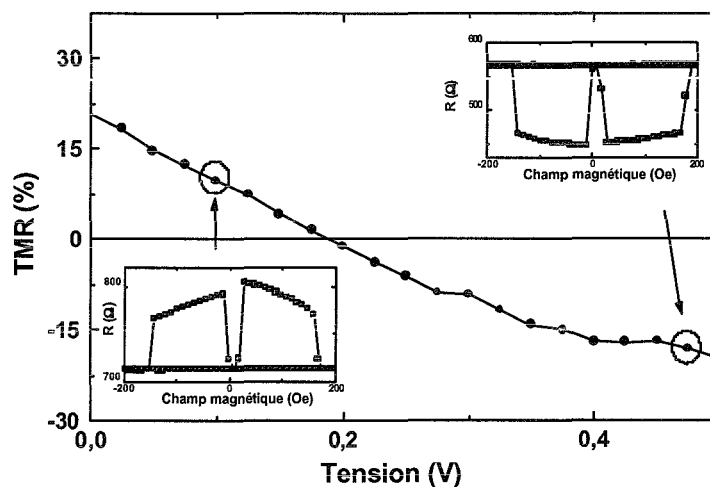


figure V-9  
TMR déduite de la figure V-8 et cycles  $R(H)$  pour les tensions 0.1V et 0.5V.

## V.2.2 Observation par STM

Bien que temporairement satisfaisante, cette analyse en terme de densité d'états minoritaires intégrée sur toute la zone de Brillouin n'est pas parfaitement exacte : ce pic dans la densité d'états n'est en fait que la manifestation de pics dans la DOS minoritaire résolue en  $k_{\parallel}$  comme cela est illustré à la figure IV-11.

De plus, les courbes fournies par Butler et ses collaborateurs sont calculées au niveau de Fermi. Elles semblent donc indiquer que les IRS peuvent modifier le transport tunnel même à tension nulle. Ceci est sans aucun doute valable pour de très faibles épaisseurs de MgO, puisque dans ce cas, la transmission de ces états est quasi unitaire [Wunnicke\_PRB65\_2002 ; paragraphe IV.5.3]. De plus, la largeur de ces pics est plus importante pour les fines barrières et donc plus d'électrons sont impliqués dans le phénomène que pour des plus grandes épaisseurs d'isolant [Butler\_PRB63\_2001a]. Cependant, pour l'épaisseur de 25Å que nous considérons, les pics dans la DOS résolue en  $k_{\parallel}$  sont plus étroits et de plus, la transmission est nettement amoindrie.

La modification du transport tunnel via les IRS ne peut être rigoureusement comprise qu'en suivant l'évolution de la DOS minoritaire résolue en  $k_{\parallel}$  pour différentes énergies  $E_{\parallel}+eV$ . Les calculs correspondants ont été réalisés grâce au code Wien2k et ils sont en bon accord avec les travaux de spectroscopie tunnel de Stroscio et al. [Stroscio\_PRL75\_1995]. Ce groupe fut le premier à mettre en évidence par STM la présence d'un état de surface pour le Fe(001) se traduisant par un pic à  $E_F+0.2eV$  dans le courant collecté par la pointe STM<sup>33</sup> à température ambiante. La figure V-10 montre les calculs de structure de bande suivant  $\bar{\Gamma}-\bar{X}$  réalisés par cette équipe. Sur ce graphique, les états fortement localisés près de la surface sont représentés avec des cercles. On remarque ainsi une bande d'états de surface pour le spin minoritaire faiblement dispersive autour du niveau de Fermi. Intéressons-nous au voisinage du point  $\bar{\Gamma}$  (les autres électrons ont un  $k_{\parallel}$  plus grand et ils participent moins au transport). Au niveau de Fermi, l'état de surface ne croise aucune bande : ces électrons sont confinés à la surface (il en est de même pour la plupart des valeurs de  $k_{\parallel}$  puisque la bande de surface traverse une zone «vide » de toute autre bande). Mais pour des énergies supérieures à  $E_F$ , cette bande de surface rencontre d'autres bandes : les électrons vont pouvoir se propager et l'état de surface devient un état de résonance [Turner\_PRB30\_1984].

---

<sup>33</sup> Auparavant, Turner et Erskine avaient étudié les états de surface de Fe(001) par photoémission résolue en angle [Turner\_PRB30\_1984].



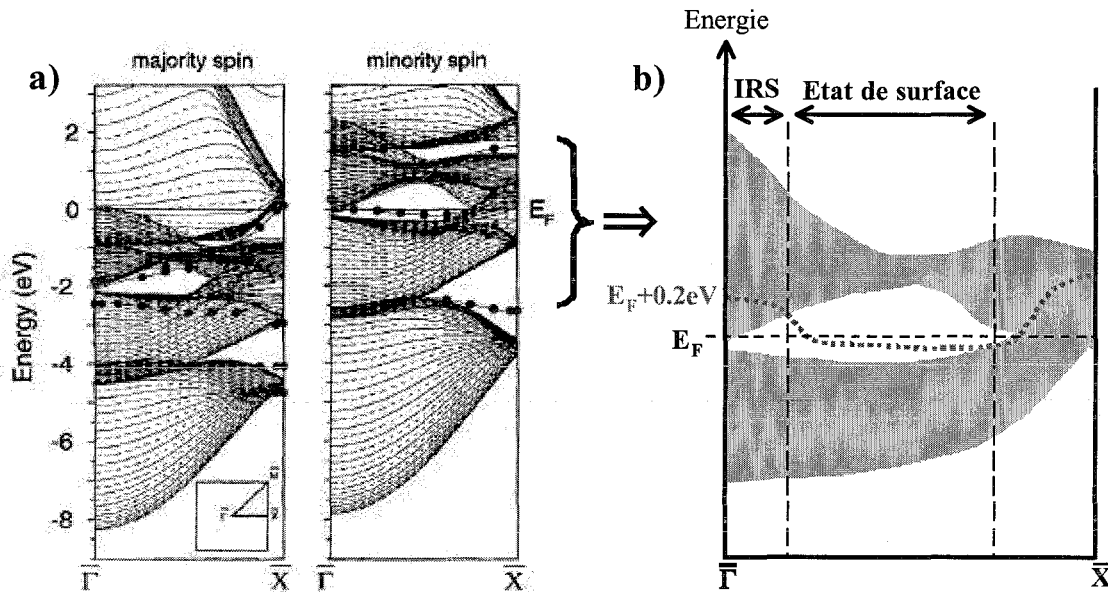


figure V-10

a) Structure de bande calculée pour les spins majoritaire (gauche) et minoritaire (droite) suivant  $\bar{\Gamma}$ - $\bar{X}$  pour un film de 49 couches de Fe. Les états fortement localisés près de la surface sont marqués avec des cercles [Stroschio\_PRL75\_1995].

b) Agrandissement du voisinage du niveau de Fermi. L'état de surface devient résonant au point  $\bar{\Gamma}$  pour une énergie  $E_F + 0.2\text{eV}$ .

Ainsi, lorsqu'on augmente la tension  $V$ , la figure V-10 indique que les états de résonance d'énergie  $E_F + eV$  se rapprochent du point  $\bar{\Gamma}$  et l'atteignent pour une tension de 0.2V. Expérimentalement, c'est effectivement dans ce voisinage d'énergie que nous observons une conductance AP devenant supérieure à la conductance P.

### V.2.3 Symétrie électronique

Travailler dans un système épitaxié oblige à raisonner en terme de symétrie, point que nous n'avons pas encore abordé pour l'IRS et qui va nous permettre d'identifier le canal de conduction à l'origine de l'inversion de TMR.

Les calculs de densité de spin de l'état de surface minoritaire réalisés pour une surface  $(001)_{\text{Fe}}$  en contact avec le vide montrent clairement le caractère  $d_{z^2}$  de l'IRS (figure V-11).

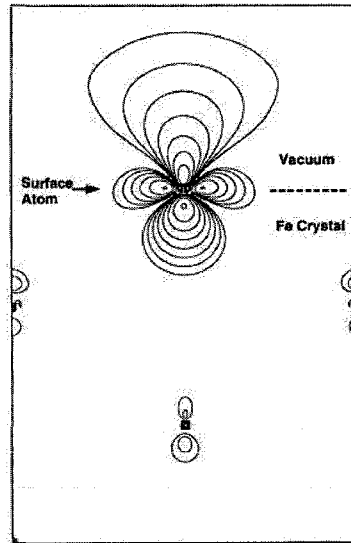


figure V-11

Représentation de la densité électronique de l'état de surface minoritaire au point  $\bar{\Gamma}$  dans le plan (110) du cristal de Fe. Les contours adjacents diffèrent d'un facteur 2, le contour le plus bas correspond à une densité de 34 électrons par  $\text{nm}^3$  [Stroschio\_PRL75\_1995].

Ce résultat est confirmé par les calculs *ab initio* de Uiberacker et Levy qui montrent la forte symétrie  $\Delta_1$  de l'état de surface (et essentiellement  $d_{z^2}$ ), les autres symétries ayant des participations nettement inférieures [Uiberacker\_PRB64\_2001]. Ainsi l'IRS relève de la représentation irréductible  $\Delta_1$  : il ne peut accepter que des électrons issus de l'électrode émettrice qui présentent une symétrie identique.

Les électrons  $\Delta_1$  qui « arrivent » sur l'état de résonance sont une combinaison linéaire des caractères orbitaux  $s$ ,  $p_z$  et  $d_{z^2}$ . Ces électrons sont-ils acceptés quels que soient les poids de leurs composantes  $s$ ,  $p_z$  et  $d_{z^2}$  ou sont-ils filtrés de telle sorte que seule la composante  $d_{z^2}$  est acceptée ? La probabilité pour un électron  $\Delta_1$  d'être accepté par l'IRS est proportionnelle à  $\langle \bar{\Psi}_{IRS}^{final}(\vec{a}_{z^2}) | \bar{M} | \bar{\Psi}_{\Delta_1}^{initial}(s, p_z, \vec{a}_{z^2}) \rangle$  où  $\bar{M}$  est l'élément de la matrice de transition (analogie avec la règle d'or de Fermi) [Bardeen\_PRL6\_1961]. La théorie des groupes précise les conditions de non-nullité de ce terme. Une étude plus approfondie permettrait de répondre précisément à la question : l'IRS va-t-il filtrer seulement le caractère  $d_{z^2}$  ou va-t-il accepter tous les électrons  $\Delta_1$  indépendamment de leur caractère orbital pour la seule raison qu'ils relèvent de la même symétrie que l'IRS ? Est-il concevable que les composantes  $s$  et  $p_z$  seront moins bien acceptées que la composante  $d_{z^2}$ , se traduisant ainsi par un filtrage partiel des électrons  $\Delta_1$  ? Dans l'état actuel de l'avancée de cette thèse, cette question n'est pas résolue.

## V.2.4 Création du canal antiparallèle $\Delta_1$

Nous avons vu au paragraphe IV.1 qu'à tension nulle, le canal  $\Delta_1$  AP ne peut pas s'établir puisqu'il n'y a pas d'états de symétrie compatible pour le spin minoritaire à l'énergie  $E_F$  et que par conséquent les électrons  $\Delta_1$  sont réfléchis à la deuxième interface (le comportement demi métallique de Fe au regard de la symétrie  $\Delta_1$  est à l'origine même de la TMR). Mais à une énergie égale à  $E_F+0.2\text{eV}$ , les électrons  $\Delta_1$  peuvent entrer dans un IRS de symétrie compatible ; ils ne sont plus réfléchis à l'interface : le canal  $\Delta_1$  AP est créé. Cependant, il reste encore un point important à expliquer : pour que ce canal existe réellement, il faut que ses électrons soient acceptés par le volume. Or, aucune bande de volume de symétrie  $\Delta_1$  n'existe entre  $E_F$  et  $E_F+1.8\text{eV}$  pour le spin minoritaire (figure IV-3). Comme cela a été expliqué au paragraphe IV.5.4, les différents chocs subis par ces électrons au cours de leur thermalisation changent leur symétrie (ou leur spin) et ils se propagent dans le volume.

L'analyse faite ici permet d'expliquer la considérable augmentation de la conductance AP : au canal  $\Delta_5$  AP déjà existant à très faible tension vient s'ajouter le canal  $\Delta_1$  AP. Nous faisons remarquer qu'il est normal que ce canal soit activé pour une tension suffisamment élevée mais la structure de bandes du volume ne prévoit sa participation que pour des tensions nettement supérieures à 0.2V (entre 1.4V et 1.8V suivant la méthode de calcul, voir figure IV-3). Ce canal additionnel possède des caractéristiques intéressantes : premièrement, à l'instar de son homologue le canal  $\Delta_1$  P qui domine la configuration P, ses états de Bloch sont ceux dont le taux d'atténuation dans la barrière est le plus faible et deuxièmement, leur efficacité d'injection est fortement augmentée par le caractère résonant de l'état de surface scanné à cette énergie [Wunnicke\_PRB65\_2002]. Le résultat est l'augmentation spectaculaire et « inattendue » de la conductance AP.

## V.2.5 Déplacement en énergie de l'IRS

Ce paragraphe traite de la dispersion, théorique ou expérimentale, de la position des IRS et justifie les différences que nous avons observées d'un échantillon à l'autre au cours de l'étude en température qui sera analysée au paragraphe suivant.

Tout d'abord, la position en énergie de l'état de surface (de même que la prédiction de son existence) dépend fortement de l'approche théorique de la structure de bande (*full* ou *spherical potential*). Dès 1975, Caruthers et Kleinman avaient mis en évidence cette sensibilité extrême au potentiel [Caruthers\_PRL35\_1975]. Ainsi, les résultats théoriques placent l'IRS à une énergie variant de  $-0.1\text{eV}$  [Fang\_SS445\_2000] à  $0.3\text{eV}$  [Biedermann\_PRL76\_1996] par rapport au niveau

de Fermi, bien que la plupart le situe près de  $E_F+0.2\text{eV}$  [Stroscio\_PRL75\_1995 et Papanikolaou\_PRB62\_2000 par exemple].

Expérimentalement, la position en énergie de tels états dépend bien évidemment de la qualité de la surface, qu'il s'agisse de rugosité, de reconstruction ou d'impuretés. La structure électronique locale des surfaces de Fe(001) a fait l'objet de nombreuses investigations par STM. Oka et al. ont montré qu'un simple réarrangement des atomes de surface est suffisant pour déplacer l'IRS en énergie : pour le Fe(001), le passage d'une surface (1×1) à une reconstruction C(2×2) déplace l'IRS de 0.2eV à 0.4eV au dessus de  $E_F$  [Oka\_JJAP\_2002]. Les auteurs font remarquer qu'il s'agit bien d'un simple réarrangement des atomes de Fe puisqu'aucune espèce chimique contaminante n'a été détectée. Dans la même idée, Bischoff et al ont montré la disparition de l'état de surface en bord de marche des terrasses de Fe [Bischoff\_PRB68\_2003]. De plus, ils ont constaté le décalage de l'IRS vers de plus hautes énergies lorsque la taille des îlots, sur lesquels sont effectués les mesures spectroscopiques, diminue. Ce décalage peut atteindre 0.43eV pour de très petits îlots. Cette même équipe a montré qu'une forte concentration de C sur une couche de V déplaçait le pic vers une plus haute énergie, conséquence de la redistribution de la charge électronique en surface [Bischoff\_PRL86\_2001].

On peut s'interroger sur l'impact des espèces contaminantes sur la forme de la densité de charge de l'IRS, autrement dit : a-t-on toujours une orbitale de type  $d_{z^2}$  ? Dans le cas d'impuretés de Si insérées dans une matrice de Fe, Biedermann et al. ont conclu à une légère inclinaison de l'orbitale  $d_{z^2}$  des atomes de Fe de surface suite à la faible création de liaisons avec les orbitales  $s$  et  $p$  du Si [Biedermann\_PRL76\_1996] : la symétrie de l'état de résonance interfaciale est préservée. Le carbone appartenant à la même colonne de la classification périodique, on peut espérer une conclusion similaire (ce raisonnement peut d'ailleurs s'étendre à toute autre espèce chimique adsorbée qui ne possède pas d'électrons  $d$ ). Au moment de la rédaction de ce manuscrit, des calculs sont en cours pour valider, au moins qualitativement, cette hypothèse mais ils nécessitent de connaître préalablement la position exacte des atomes de C à l'interface Fe/MgO, position qui sera obtenue grâce à un calcul de minimisation d'énergie. Un raisonnement similaire peut être tenu en cas de présence d'atomes d'O puisque les travaux de Butler et al. montrent clairement que la présence d'oxygène interstitiel n'affecte que les orbitales  $s$  et  $p$  du Fe de surface (voir partie IV.6.1). Bien évidemment, les orbitales  $d_{z^2}$  des atomes de Fe immédiatement situés sous la surface sont, quant à elles, fortement perturbées par une hybridation verticale avec les orbitales  $p_z$  des atomes O des sites interstitiels.

## V.2.6 Étude en température

Afin de mieux comprendre les mécanismes qui régissent cet IRS, nous avons effectué des mesures en température. Les courbes présentées dans cette partie ont une TMR modérée due à la présence de carbone. De plus, elles ont été obtenues sur un échantillon pour lequel le point d'inversion se produit pour une tension de 0.48V à température ambiante. Cette valeur est différente de la valeur de 0.19V reportée au paragraphe V.2.1 mais un tel déplacement en énergie d'un échantillon à l'autre a été expliqué au paragraphe précédent. En effet, même si nos échantillons ont été réalisés en appliquant le même protocole expérimental, la taille des terrasses, la morphologie de la surface de Fe après recuit et la caractérisation chimique exacte de l'interface sont des variables méconnues d'un échantillon à l'autre et modifient la reproductibilité des résultats. L'inconnue essentielle reste la concentration de carbone : si par la suite nous avons piégé le carbone grâce à une couche de MgO déposée préalablement sur le substrat (voir paragraphe II.2.2.6), les échantillons discutés dans cette partie datent d'une époque antérieure et sont donc sujets à de fortes variations de la teneur surfacique en carbone.

Parmi les phénomènes dépendant de la température, nous pouvons citer les interactions électrons-électrons, électrons-phonons et électrons-magnons de même que nous pouvons imaginer une diminution de l'agitation thermique (de l'ordre de  $k_B T$ ) et de la largeur du pic dans la DOS. En première approche, nous pouvons dire que ces deux derniers phénomènes auraient tendance à retarder l'activation de l'état de résonance. A notre grande surprise, nous n'avons trouvé aucune étude sur l'évolution avec la température de l'énergie de cet état de surface pour le Fe(001). Une étude sur le sujet est prévue en collaboration avec l'équipe de Spectroscopie des Surfaces de notre laboratoire, aussi bien sur l'influence du carbone que sur celle de la température. Expérimentalement, lorsque la température descend de 294K à 84K, le point d'inversion passe de 0.48V à 0.45V (figure V-12). Ainsi, l'activation de l'état de résonance se produit plus tôt, en terme de tension appliquée, ce qui accrédirait la thèse d'un déplacement de l'IRS vers les basses énergies. Les mesures de spectroscopie tunnel en fonction de la température devraient venir confirmer prochainement nos observations.

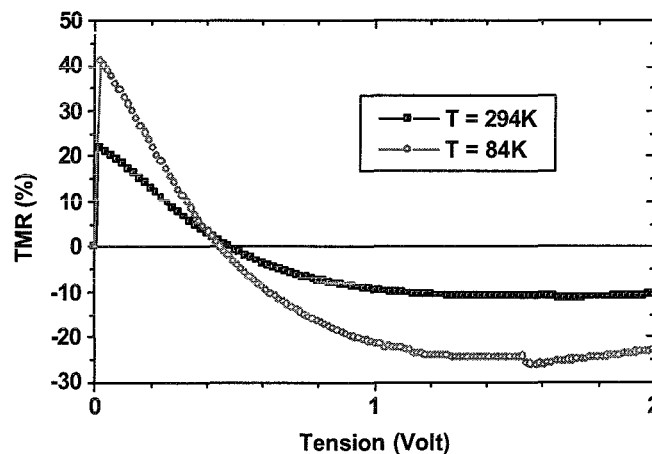


figure V-12  
Evolution de la TMR avec la tension pour deux températures différentes (294K et 84K).

Fixant la tension à la valeur de 0.465V, c'est-à-dire à une tension comprise entre les deux valeurs extrêmes 0.48V (T=294K) et 0.45V (T=84K), nous avons mesuré l'évolution des valeurs des résistances  $R_P$  et  $R_{AP}$  en fonction de la température comme cela est représenté à la figure V-13. A température ambiante,  $R_{AP}$  est supérieure à  $R_P$  et la TMR est positive. Lorsque la température diminue, les résistances augmentent comme cela est attendu dans le cas d'un transport d'électrons par effet tunnel mais l'augmentation de  $R_P$  est plus importante que celle de  $R_{AP}$ . Les deux résistances atteignent la même valeur pour la température de 228K. A cette température, la TMR est nulle et devient négative pour des températures inférieures.

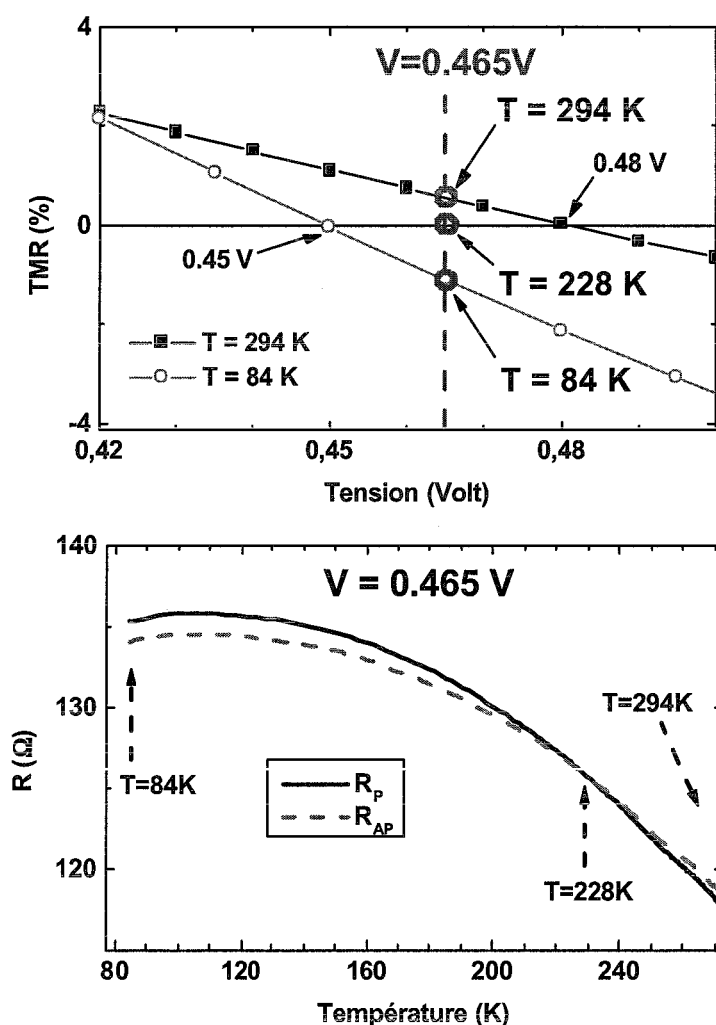


figure V-13

En haut : Agrandissement de la figure V-12 pour des tensions proches de l'inversion du signe de la TMR  
 En bas : Variation des résistances  $R_P$  et  $R_{AP}$  avec le température pour la tension  $V=0.465V$ . La TMR est positive à température ambiante puis inverse son signe à de plus basses températures, en accord avec le graphique en haut.

Nous avons vu au paragraphe V.1.3 que lorsque l'état de résonance n'est pas activé (i.e. à très faible tension) la variation avec la température est plus importante pour  $R_{AP}$  que pour  $R_P$  (30% de variation relative contre 10%). La figure V-13 nous montre le comportement inverse : la variation relative de  $R_P$  est plus importante que celle de  $R_{AP}$  à la tension particulière de 0.465V. Cette différence est d'autant plus forte que l'état de résonance est impliqué dans le transport tunnel, c'est-à-dire lorsque la tension dépasse 0.48V. Ceci est nettement visible à la figure V-14 où une tension appliquée de 0.5V conduit à des variations relatives de 16% pour  $R_P$  et de 10% pour  $R_{AP}$ . Un tel comportement montre bien que les mécanismes de transport impliqués sont différents suivant que l'état de résonance est activé ou non. En effet, d'une part on peut s'attendre à un comportement particulier lié à la nature même de l'IRS et d'autre part, pour de faibles tensions, le canal AP est constitué d'électrons  $\Delta_5$  alors qu'une fois l'IRS activé, le canal AP est dominé par des électrons du type  $\Delta_1$ . Les processus de *spin flip* participent ainsi moins au transport tunnel dans la configuration AP.

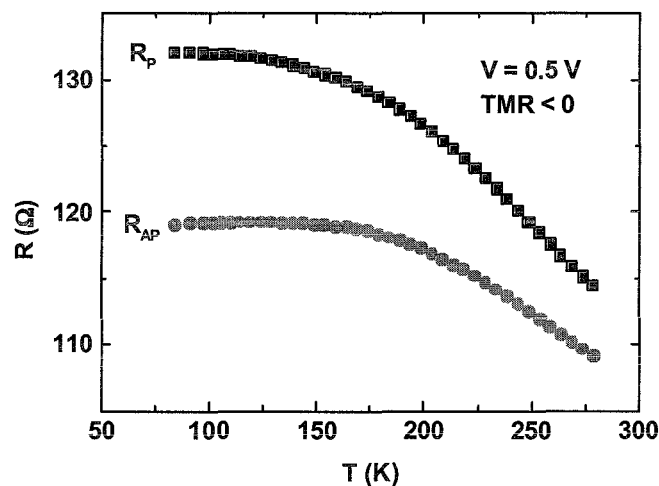


figure V-14  
Variation des résistances  $R_P$  et  $R_{AP}$  en fonction de la température pour une tension nettement supérieure à la tension d'inversion du signe de la TMR.

## V.2.7 Etat de résonance sondé par STM polarisée en spin

Le groupe de Kirschner a mis en évidence la présence d'un état de résonance interfaciale pour le Co(0001) hcp [Ding\_PRL90\_2003]. Pour cela, ils ont mesuré la TMR pour le système constitué d'une pointe magnétique amorphe (borne négative), du vide et d'un échantillon monocristallin de Co(0001) (borne positive) dont la figure V-15a représente la structure de bande en volume suivant la direction  $\Gamma$ - $\Delta$ -A qui correspond à  $k_{\parallel}=0$  dans une structure hcp. Entre le niveau de Fermi (0eV) et 1eV, la polarisation est proche de la valeur -1 puisque seules les bandes minoritaires sont présentes. Ainsi, lorsque les électrons sont injectés dans le Co, on s'attend à observer une TMR constante entre 0 et 1V. Lorsque la tension appliquée est négative, les électrons sont injectés dans la pointe

STM. Celle-ci étant amorphe, sa densité spectrale présente un profil adouci, c'est-à-dire sans pic abrupt, et la TMR doit être constante. C'est effectivement ce qui est observé à la figure V-16a.

Les calculs théoriques réalisés par cette équipe mettent en évidence la présence d'un état de surface majoritaire situé à 0.2eV au dessus du niveau de Fermi (flèche noire à la figure V-15b). En diminuant la distance pointe-échantillon, la probabilité de transport tunnel via cet état de surface est augmentée. Par conséquent, la TMR diminue et atteint son minimum pour une tension de 0.2V.

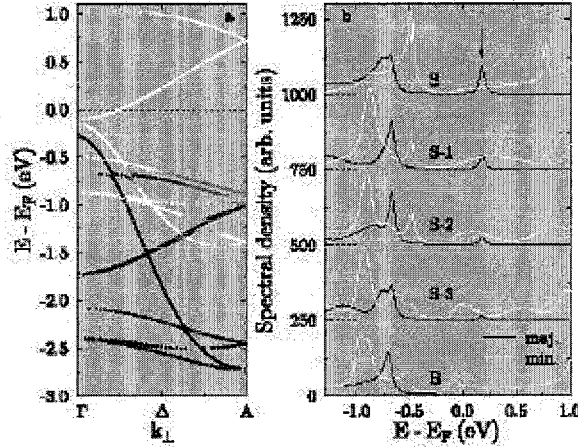


figure V-15

a) Structure de bande résolue en spin pour le Co hcp massif suivant la direction  $\Gamma$ - $\Delta$ - $A$  ( $k_{\parallel}=0$ )  
 b) Densité spectrale du Co(0001) résolue en spin et couche par couche à  $k_{\parallel}=0$  pour les 4 premières couches (S, ..., S-3) et le massif (B). La flèche marque l'état de surface. [Ding\_PRL90\_2003].

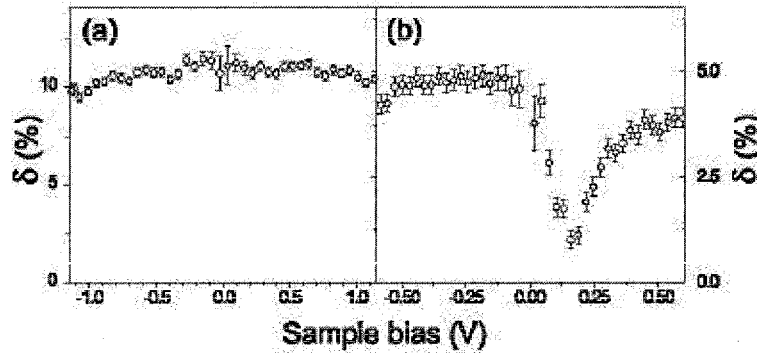


figure V-16

Variation de la TMR avec la tension pour une surface de Co(0001). La pointe magnétique a été stabilisée à 1V, 1nA (a) et 100mV, 1 nA (b). La courbe (a) correspond à ce que l'on peut rapprocher du régime asymptotique et la courbe (b) correspond au régime des faibles épaisseurs. [Ding\_PRL90\_2003].

L'impact de cet état de résonance interfaciale sur le transport tunnel est très similaire aux résultats obtenus sur notre système *tout solide*. De plus, ceci montre également qu'il est possible de jouer avec la sensibilité du système à l'état de surface comme cela a été fait en variant la distance pointe-échantillon dans le cas des mesures STM. Pour le système Fe/MgO/Fe, un résultat analogue devrait être obtenu en augmentant l'épaisseur de MgO de manière à diminuer l'impact de l'IRS sur



la variation de la TMR. Ainsi, dans un régime asymptotique, ceci devrait se traduire par une TMR globalement constante en tension positive. Dans le même esprit, la partie V.3.2 traite des phénomènes de transport sur des échantillons Pd/Fe/MgO/Fe et montre qu'il est possible de découpler l'IRS du volume en modifiant la structure électronique des couches inférieures ; le paragraphe V.4.2 montre le découplage « magnétique » de l'IRS.

### **V.3 Manipulation des propriétés magnétorésistives via la structure électronique**

La plupart des équipes de recherche intéressées par la magnétorésistance ont étudié des JTM constituées d'électrodes polycristallines et d'une barrière amorphe. Dans de telles multicouches, les effets de structure électronique sont moyennés par le grand nombre de grains de telle sorte que le modèle des électrons libres est globalement valable. Par exemple, les courbes  $I(V)$  suivent effectivement une loi en  $V^3$  dont l'allure est directement ajustée par les paramètres intrinsèques du système (masse effective, hauteur et largeur de la barrière). Dans les systèmes épitaxiés, les structures électroniques propres aux matériaux sont conservées. Cette propriété laisse entrevoir la possibilité de modifier et d'adapter le système afin d'atteindre des effets électroniques souhaités.

Nous en présentons ici deux illustrations. Tout d'abord, la rugosité de l'interface supérieure de Fe permet la destruction de l'état de résonance présent dans l'électrode inférieure. Ceci conduit à une TMR faiblement dépendante de la tension appliquée, phénomène amplifié par les effets de filtrage du MgO. Ensuite, l'utilisation d'une couche tampon de Pd dans l'élaboration de JTM Pd/Fe/MgO/Fe/Co a permis de découpler l'état de résonance du volume et d'annuler l'inversion de TMR constatée au paragraphe V.2.

#### **V.3.1 TMR faiblement dépendante de la tension**

Maintenant, nous nous intéressons au transport tunnel toujours sur le même type d'échantillon qui présente une inversion de TMR mais nous appliquons une tension négative, c'est-à-dire que les électrons sont extraits de l'électrode inférieure et injectés dans l'électrode supérieure. La figure V-17 montre que la TMR varie peu avec la tension : le  $V_{1/2}$  vaut -1.9V à 84K et -1.6V à la température ambiante. L'évolution en parallèle des conductances  $G_P$  et  $G_{AP}$  est représentée en insert sur cette même figure.

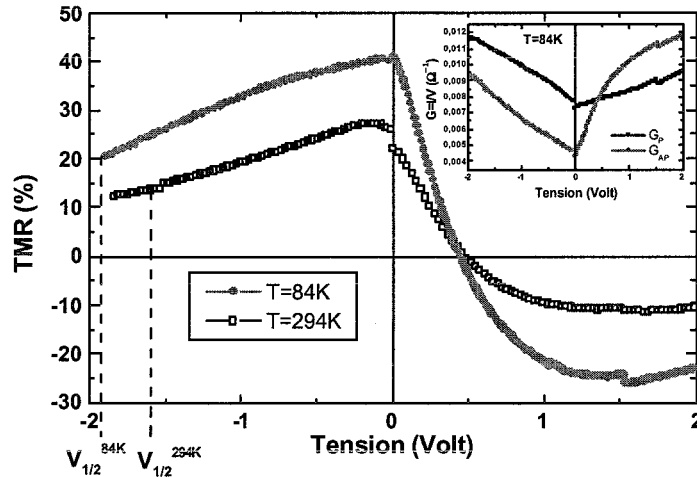


figure V-17

Courbes TMR(V) en tension positive et négative à basse température (84K) et à température ambiante pour un échantillon Fe/MgO(25Å)/Fe/Co. En insert : courbes  $G_p(V)$  et  $G_{AP}(V)$  pour  $T=84K$  ; notez l'évolution en parallèle des conductances en tension négative conduisant à une TMR quasi constante.

Les mécanismes responsables de la chute de la TMR avec la tension sont :

- la diffusion de spin liée à des défauts [Zhang\_JAP83\_1998] ou à des impuretés magnétiques [Jansen\_PRB61\_2000 ; Vedyayev\_PRB63\_2001] dans la barrière qui dépolarisent les électrons
- les interactions électron-magnon [Moodera\_PRL80\_1998] ou les excitations de spin aux interfaces [Zhang\_PRL79\_1997].

La qualité de notre barrière tunnel et de ses interfaces nous permet de supposer que le premier mécanisme est inexistant et que le deuxième est fortement réduit, d'autant plus que la symétrie cristalline impose des règles de sélection aux magnons si bien que tous ne sont pas permis. Cependant, nous ne pouvons pas exclure complètement leur participation à la diminution de la TMR avec la tension.

- Enfin, le dernier mécanisme invoqué pour expliquer la variation de la TMR avec la tension est le profil de la DOS. Malgré la croissance épitaxiale, nous avons signalé que l'interface MgO/Fe supérieure est de moins bonne qualité que l'interface inférieure. Nous pouvons donc supposer que la rugosité adoucit la DOS interfaciale de telle sorte qu'aucun pic et aucun état de résonance ne sont présents, un peu à l'image d'une bande  $s$ . De plus, cet effet de lissage est amplifié par deux facteurs. Le premier est la sélection des symétries électroniques qui s'opère dans l'électrode monocristalline inférieure et qui favorise les électrons de type  $\Delta_1 (s, p_z, d_{z^2})$ . Le deuxième est l'effet de filtrage de la barrière : les électrons  $\Delta_1$  sont moins atténués que toutes les autres symétries électroniques. Ainsi, ces deux filtres supplémentaires favorisent le passage des électrons appartenant à des bandes plutôt de type  $s$ . Le résultat est une variation relative similaire pour  $G_p$  et  $G_{AP}$  avec la tension se traduisant par une TMR quasi constante.

Nous incitons le lecteur à comparer nos résultats (système *tout solide*) avec ceux publiés par Ding et al. (spectroscopie STM) [Ding\_PRL90\_2003], en particulier la figure V-16b avec la figure V-17. Par analogie avec leurs résultats, nous avons l'intention d'augmenter l'épaisseur de MgO (ce qui a le même effet que d'éloigner la pointe STM dans l'expérience de Ding et al.) et ainsi diminuer la participation de l'IRS au transport tunnel. L'effet attendu est similaire à celui présenté à la figure V-16b : la TMR devrait être constante quelque soit le signe de la tension.

### V.3.2 Pd/Fe/MgO/Fe : inhibition/découplage électronique de l'IRS

Nous venons de voir au paragraphe V.2 l'influence d'un état de résonance interfaciale sur le transport tunnel. Afin de mieux mettre en évidence le rôle joué par la structure électronique dans un système épitaxié, nous avons réfléchi à un moyen pour découpler cet état de résonance interfaciale du volume de manière à minimiser son influence. Pour cela, il fallait imaginer une structure électronique telle que pour l'énergie correspondant à l'IRS (approximativement 0.2eV), aucun état du volume ne soit disponible. Nous avons alors étudié les structures électroniques de différents matériaux en nous limitant dans un premier temps aux métaux non magnétiques, dont l'analyse des résultats serait facilitée puisque les densités et symétries des spins *up* et *down* sont égales. De plus, le matériau retenu devait s'épitaxier dans le système Fe/MgO. Toutes ces considérations théoriques et nécessités expérimentales sont vérifiées par le Pd.

En effet, la réalisation d'une électrode inférieure de type MgO//Fe(15Å)/Pd(400Å)/Fe(25Å) répond aux exigences cristallographiques comme cela a été démontré au paragraphe II.3.3. Après la croissance couche par couche du film de 25Å de Fe (vérifiée par les oscillations d'intensité RHEED), l'analyse *ex situ* par AFM a permis de s'assurer que les échantillons réalisés avec du Pd ont des propriétés cristallographiques extrêmement proches des échantillons « standard » Fe/MgO/Fe, notamment au niveau de l'interface inférieure Fe/MgO.

De plus, la structure électronique du Pd (représentée à la figure V-18a) montre que sa densité d'états diminue rapidement au dessus du niveau de Fermi. Dans nos conditions expérimentales, le Pd adopte une structure cfc. Son groupe de symétrie et le groupe du vecteur d'onde sont identiques à ceux du Fe cc, par conséquent, suivant la direction [001], les états de Bloch sont également nommés  $\Delta_1$ . Bien que l'épitaxie conserve la symétrie  $\Delta_1$  entre le Fe cc et le Pd cfc, au delà de 0.2eV au dessus du niveau de Fermi, la seule bande présente est une bande dispersive, certes de symétrie  $\Delta_1$ , mais dont l'analyse révèle principalement des caractères orbitaux *s* et *p* (figure V-18b) ; de plus, peu d'états sont disponibles (figure V-18a). Ainsi, l'état de résonance interfaciale de type  $d_{z^2}$  dans

le Fe ne trouve pas de caractère orbital similaire dans le Pd. Ce « désaccord » de caractère orbital conduit à un effet de filtrage entre le Fe et le Pd et affecte fortement la propagation cohérente des ondes de Bloch venant de l'électrode de Fe supérieure pour les électrons dont la longueur de cohérence de spin est supérieure à la largeur de l'électrode inférieure de Fe. Ceci est schématiquement illustré à la figure V-19.

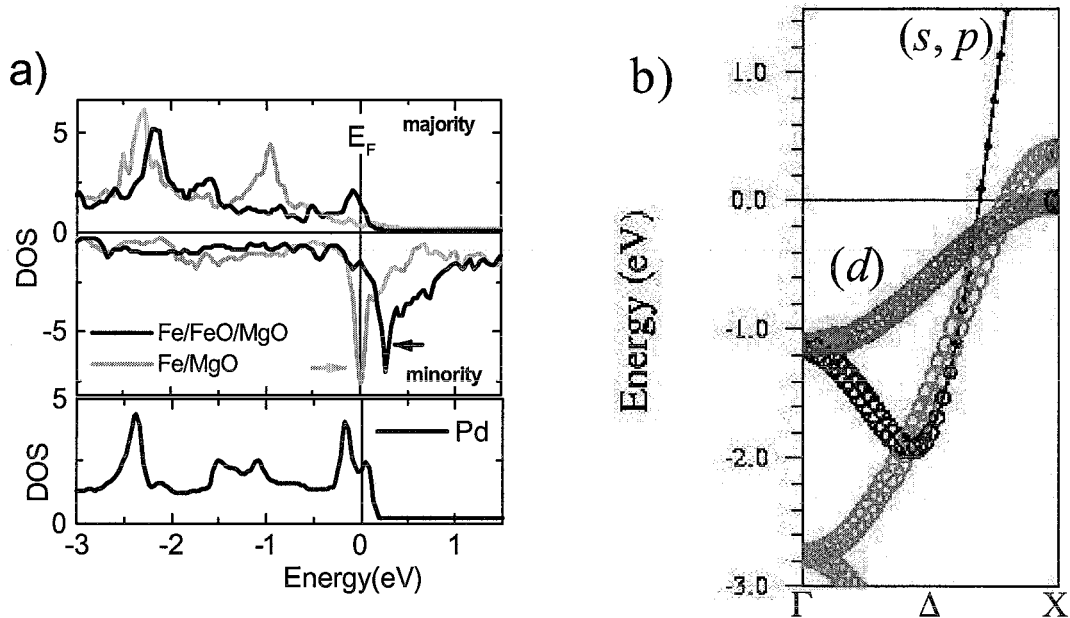


figure V-18

a) Densités spectrales calculées avec le code Wien2k.

b) Structure de bandes du Pd massif. Les bandes sont tracées en fonction du poids du caractère orbital d ce qui laisse ressortir le caractère majoritaire (s, p) des électrons nettement au dessus du niveau de Fermi.

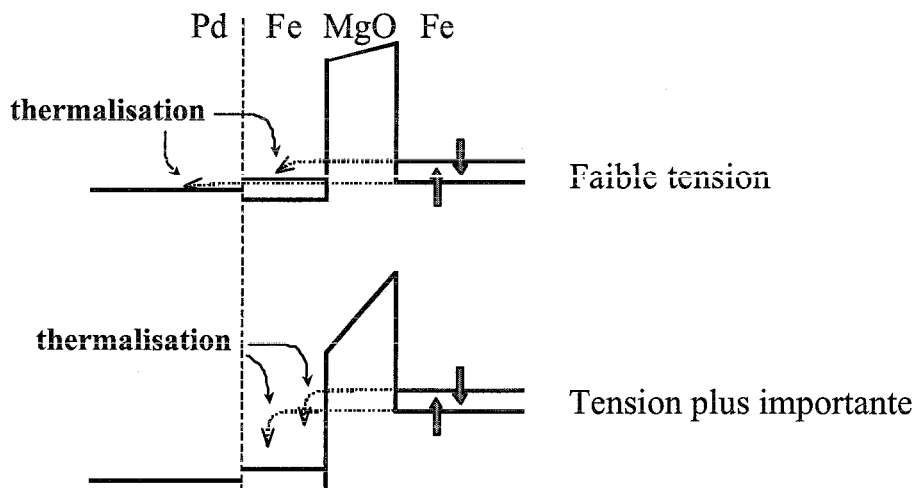


figure V-19

A faible tension, les ondes de Bloch incidentes de spin up se propagent de façon cohérente à travers tout l'empilement.

Pour une tension plus importante, la thermalisation a lieu dans l'électrode de Fe : le transport tunnel devient insensible à la couche de Pd.

Ainsi, contrairement au paragraphe V.2 dans lequel nous avons vu que lorsque l'énergie des électrons collectés égale l'énergie de l'IRS, une forte augmentation de la conductance AP se produit et inverse le signe de la TMR, la présence de la couche tampon de Pd n'autorise pas le processus résonant si bien que l'IRS est découplé du volume et aucune augmentation de la conductance AP liée à un processus résonant n'a lieu (figure V-20) [Tiusan\_PRL93\_2004].

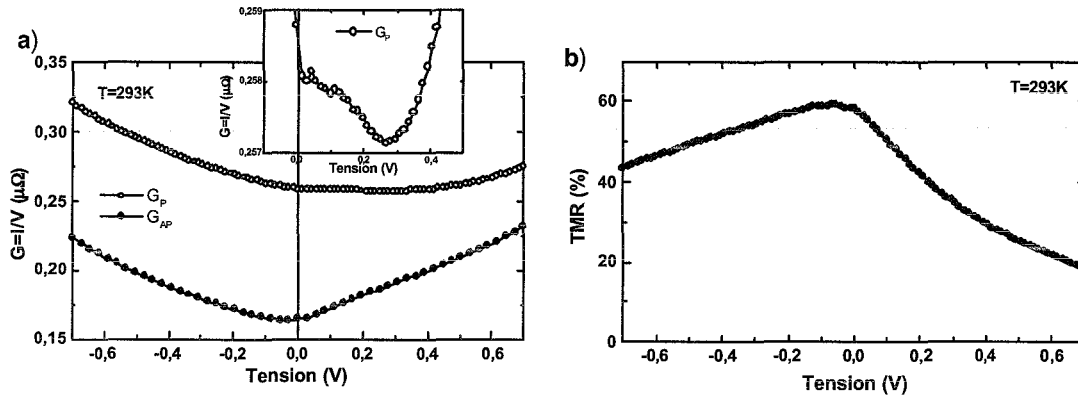


figure V-20

Courbes  $G(V)$  en configurations P et AP et courbe  $TMR(V)$  résultante. L'utilisation du Pd a détruit la résonance de l'état de surface et la TMR ne change pas de signe lorsque la tension varie.

De plus, l'insert de la figure V-20a montre que la conductance parallèle associée principalement au spin majoritaire décroît lorsque la tension augmente. Cet effet, contraire à ce que l'on attend intuitivement, reflète la structure électronique du Pd dont la DOS diminue rapidement au delà de  $E_F$ . Ceci influence directement le raccordement des ondes de Bloch au niveau de l'interface Pd/Fe pour les électrons dont la longueur de cohérence/diffusion de spin dépasse l'épaisseur de la couche inférieure de Fe<sup>34</sup>. Quand la tension appliquée augmente encore, l'énergie des électrons chauds augmente et leurs longueurs caractéristiques diminuent. Ces électrons sont alors rapidement thermalisés à l'énergie  $E_F$  dans l'électrode de Fe. La conductance devient alors insensible à la structure électronique du Pd et augmente à nouveau avec la tension.

En tension négative, on observe une TMR qui chute peu avec la tension. L'analyse de ce phénomène faite au paragraphe V.3.1 sur un système Fe/MgO/Fe est également valable dans ce cas.

<sup>34</sup> Dans un métal ferromagnétique, la longueur de cohérence du spin majoritaire est nettement supérieure à celle du spin minoritaire (respectivement de l'ordre de 10nm et 1nm).

## V.4 Le transport tunnel comme sonde du magnétisme

Le courant tunnel est extrêmement sensible à la configuration magnétique des électrodes. Cette propriété a déjà été mise à profit avec l'utilisation du système AAF comme sonde du magnétisme. Les mesures magnétiques effectuées par exemple par SQUID, VSM ou AGMF intègrent le signal magnétique sur l'ensemble des couches, puisque la mesure donne  $M(H) = \sum_i m_i \cos\theta_i(H)$  où  $m_i$  est le moment magnétique d'une couche atomique et  $\theta_i(H)$  l'angle qu'elle fait avec le champ.

A l'inverse, la mesure de la résistance tunnel  $R(\theta) \propto \sum_i m_i \cos\theta_i e^{-\frac{x}{\lambda}}$  où  $\lambda$  est la longueur de cohérence de spin des électrons dans les couches magnétiques ;  $\lambda$  est donc la profondeur de pénétration pour laquelle le transport tunnel sonde le magnétisme. Lorsque les électrons sont injectés dans une couche magnétique, la modification de la résistance nous informe sur les changements d'aimantation jusqu'à une profondeur de l'ordre de  $\lambda$ .

### V.4.1 Magnétisme des JTM standard

Nous considérons ici le cas de JTM Fe/MgO/Fe/Co pour lesquelles l'épaisseur de la couche de Fe supérieure est inférieure à  $\delta_{Fe}^{critique}$ , paramètre déterminant dans les propriétés magnétiques de l'empilement (voir paragraphe III.1.2). Dans ce cas, l'axe facile de la bicouche dure est confondu avec celui de la couche simple de Fe : les renversements d'aimantation sont abrupts et le cycle de magnétorésistance est bien défini comme cela est illustré à la figure V-21. Cette figure montre également que le champ coercitif de la bicouche dure est fortement augmenté lorsque la température diminue (400Oe à 293K et 600Oe à 80K), ce qui est normal compte tenu de la diminution de l'agitation magnétique.

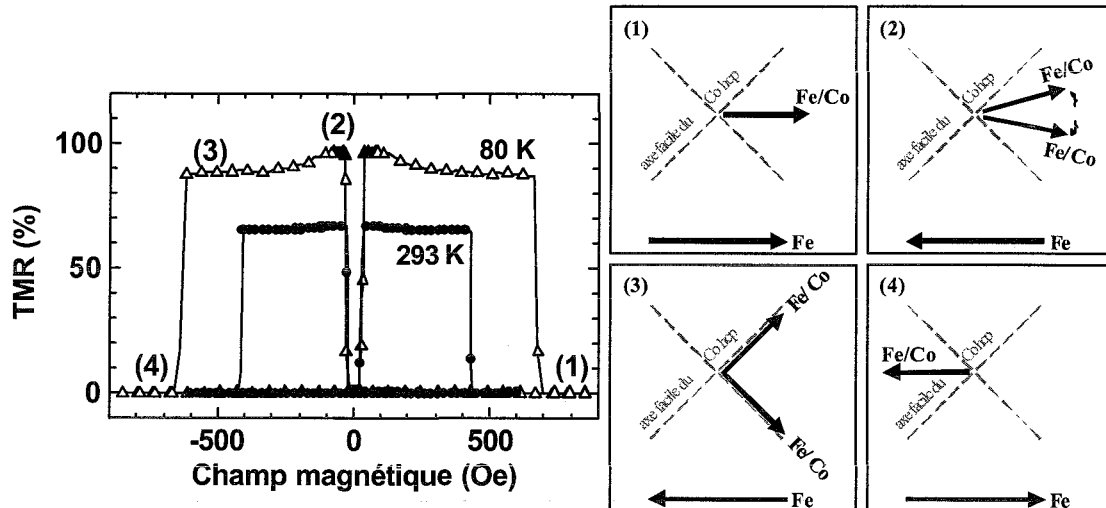


figure V-21

Courbe de magnétorésistance et configurations magnétiques (vue de dessus) en fonction du champ pour une JTM Fe(400Å)/MgO(25Å)/Fe(50Å)/Co(500Å). Les mesures sont effectuées suivant l'axe facile, sous une tension de 10mV et pour deux températures : 80K et 293K.

Cependant, nous observons que le plateau correspondant à la configuration AP n'est pas constant. Autrement dit, la configuration AP n'est pas parfaitement stabilisée. Cet effet est nettement visible à basse température puisqu'il correspond alors à une variation relative de 10% du signal magnétorésistif.

L'étude du cycle R(H) de la figure V-21 permet d'expliquer ce phénomène. Intéressons-nous à la structure en bidomaine du Co sur la couche de Fe. L'axe facile du Co est orienté à 45° par rapport à l'axe facile du Fe. Lorsque le champ magnétique diminue, la couche douce se renverse en premier. L'échantillon est alors en configuration AP comme cela est indiqué au schéma 2 de la figure V-21. Sachant que l'échantillon est orienté suivant l'axe difficile pour les deux variants de Co et que le champ magnétique appliqué est négatif à cet instant, il n'est pas impossible que les aimantations dans chaque domaine de Co s'écartent de la direction d'application du champ, ceci afin de minimiser l'énergie totale du système en satisfaisant à l'énergie d'anisotropie, d'autant plus que  $K_{Co}$  est environ 10 fois supérieure à  $K_{Fe}$ . Puis, lorsque le champ magnétique augmente en valeur négative, les aimantations des domaines de Co s'alignent progressivement suivant leurs axes faciles, configuration favorisée par l'énergie Zeeman et l'énergie d'anisotropie (schéma 3, figure V-21). Cet écartement progressif des aimantations dans les domaines de Co est responsable de la perte de la configuration AP « parfaite » ce qui se traduit par une légère diminution de la résistance et donne naissance à un « faux » plateau antiparallèle. Enfin, lorsque le champ magnétique devient trop intense, le système repasse en configuration P de résistance minimale.

Nous faisons remarquer que le phénomène décrit ici est également présent à température ambiante mais son amplitude est plus faible : seulement 5% de variation. En effet, du fait du gel des collisions inélastiques à basse température, la longueur de cohérence de spin des électrons à  $T=80\text{K}$ ,  $\lambda_{80\text{K}}$ , est supérieure à  $\lambda_{293\text{K}}$ . Autrement dit, à basse température, le transport tunnel est sensible à plus d'épaisseur magnétique qu'à température ambiante. En conséquence, à 293K, le signal tunnel sonde principalement les quelques couches interfaciales et donc de moins en moins le Co. Ceci explique que l'effet de la déflexion des couches se ressent moins.

## V.4.2 Découplage de l'IRS par exchange spring magnet

Lorsque l'épaisseur de la couche supérieure de Fe est supérieure à  $\delta_{\text{Fe}}^{\text{critique}}$ , nous avons vu que la bicouche présente un comportement de type *spring magnet* pour lequel les aimantations des plans de Fe en contact avec le Co sont magnétiquement couplées à ce dernier. Ainsi, lorsque le champ magnétique atteint le champ coercitif du Fe, les plans de Fe accolés à l'interface supérieure MgO/Fe, c'est-à-dire ceux qui sont loin de l'interface Fe/Co, se retournent. Ceci donne naissance à une configuration des aimantations en forme de ressort comme cela a été illustré à la figure III-4.

Le cycle de magnétorésistance d'un tel échantillon et ses diverses configurations magnétiques sont illustrés à la figure V-22. A fort champ, l'échantillon est saturé (schéma 1, figure V-22). Le champ diminue et le renversement de la couche inférieure de Fe (couche douce) place le système en configuration AP, ce qui se traduit par le brusque saut de résistance (schéma 2, figure V-22). Le renversement des plans de Fe interfaciaux de la couche supérieure Fe/Co se produit pour une valeur légèrement plus importante du champ. Il y a alors création d'un profil d'aimantation inhomogène qui s'apparente à une paroi de Bloch dans la couche supérieure de Fe dont une partie de l'aimantation s'est alignée avec l'aimantation de la couche inférieure. Ceci a pour conséquence la brusque diminution de la résistance (schéma 3, figure V-22). Au fur et à mesure que l'intensité du champ magnétique augmente (en valeur absolue), la paroi, de type Bloch, se déplace vers la couche de Co. De plus en plus de moments magnétiques de Fe sont en configuration parallèle et la résistance tunnel diminue progressivement (schéma 4, figure V-22). En effet, nous avons vu que le transport tunnel est globalement sensible à une épaisseur magnétique de l'ordre de la longueur de cohérence des électrons. Lorsque la paroi se déplace vers le Co, le transport tunnel « perçoit » de plus en plus de moments magnétiques alignés avec la couche douce. Enfin, la bicouche finit par se retourner complètement et le système retrouve sa configuration P (schéma 5, figure V-22).



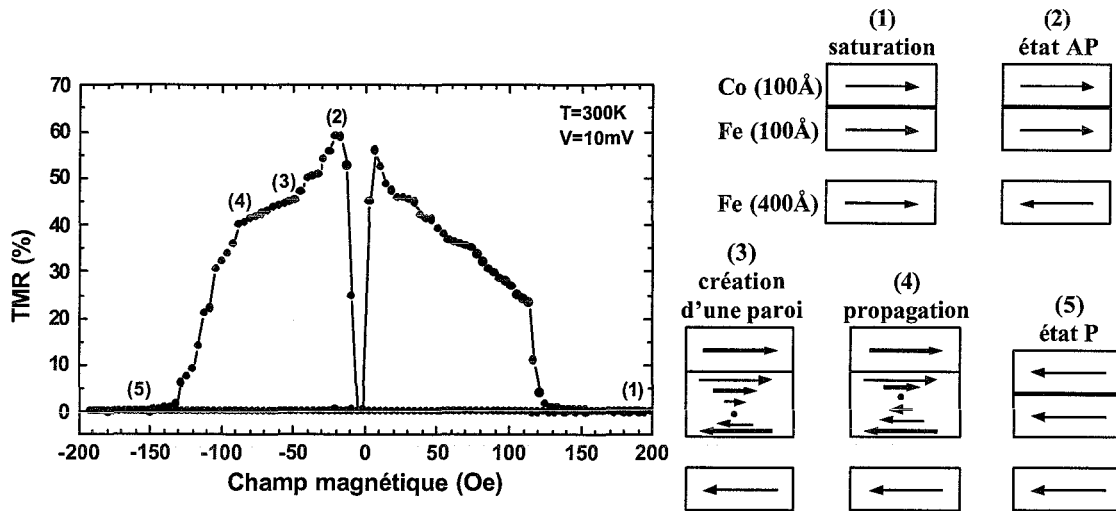


figure V-22

Cycle de magnétorésistance d'un échantillon Fe(400Å)/MgO(30Å)/Fe(100Å)/Co(100Å) de type spring magnet et les configurations magnétiques correspondantes (vue de côté).

Nous avons utilisé ce phénomène pour inhiber artificiellement l'état de résonance de l'électrode inférieure de Fe qui augmente fortement la conductance AP et induit une inversion du signe de la TMR.

Pour une valeur donnée de la tension appliquée, nous stabilisons le champ magnétique d'abord à une forte valeur qui correspond à une mesure du courant pour la configuration P puis nous appliquons un champ correspondant à une configuration AP avant d'effectuer à nouveau la mesure de courant. La répétition de ce protocole pour plusieurs tensions successives permet de tracer les courbes  $G_{P \text{ ou } AP}(V)$  et  $I_{P \text{ ou } AP}(V)$  qui ont été discutées au paragraphe V.1.2.

Cependant, pour l'échantillon dont il est question dans cette partie, nous avons choisi de faire les mesures de courant pour des configurations correspondant aux schémas 1 et 3 de la figure V-22. Si le schéma 1 correspond bien à une configuration P des aimantations, le schéma 3 ne correspond pas à une configuration AP. Comme cela a été décrit auparavant, sur une certaine épaisseur de la couche supérieure de Fe, les moments magnétiques interfaciaux sont alignés parallèlement. En conséquence, lorsque les électrons sont injectés dans l'électrode inférieure, seuls ceux loin de l'interface ont le bon spin pour aller sonder l'état de résonance (spin minoritaire) qui est toujours présent mais est moins activé. Il n'entraîne alors aucune inversion de TMR comme le montre la figure V-23. Ainsi, nous venons de découpler artificiellement l'état de résonance interfaciale en modulant les propriétés magnétiques de nos couches.

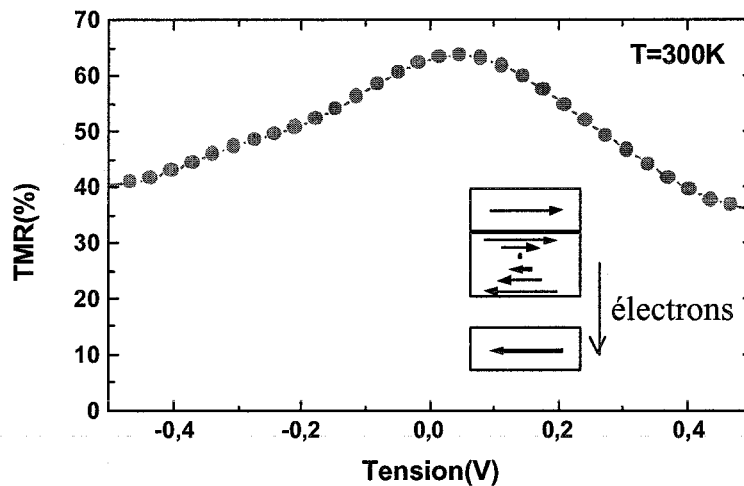


figure V-23

Courbe TMR(V) pour un échantillon Fe(400Å)/MgO(30Å)/Fe(100Å)/Co(100Å) de type spring magnet. Le jeu des configurations magnétiques nous a permis d'inhiber l'état de résonance si bien qu'il n'y a pas d'inversion de TMR.

## V.5 Conclusion

Les résultats magnétorésistifs ont montré la forte potentialité du système épitaxié Fe/MgO/Fe. Plusieurs aspects ont été mis en avant.

Le premier concerne la forte TMR qui atteint 100% à température ambiante pour une barrière de 30Å de MgO. Cette valeur encourageante est en accord avec les mécanismes de transport particuliers à ce système décrits au chapitre précédent, bien au delà du modèle des électrons libres. Bien que sommaires, les premières études en température ont montré que les mécanismes de conduction sont fortement différents d'une configuration magnétique à l'autre, phénomène amplifié par la nature demi-métallique du Fe au regard de la symétrie  $\Delta_1$ .

Ensuite, en accord avec les prédictions théoriques, nous avons démontré l'influence de la contamination chimique de l'interface Fe/MgO : pour une même épaisseur de barrière tunnel (30Å), lorsque la concentration de carbone diminue, la TMR passe de 32% à 57% et atteint 100% en l'absence de carbone. Ce résultat expérimental met l'accent sur la nécessité du contrôle de l'interface, d'ailleurs aussi bien chimique que structural (taille des terrasses, rugosité).

L'étude de l'état de résonance interfaciale situé à quelques centaines de meV au dessus de  $E_F$  dans la bande de spin minoritaire de l'électrode inférieure de Fe a constitué une partie importante de ce travail de thèse. L'analyse de sa symétrie révèle la création du canal AP  $\Delta_1$ , théoriquement interdit

à une si faible tension. De plus, notre étude sur le déplacement de cet IRS avec la température sera prochainement confrontée avec des mesures en STM basse température.

Dans les systèmes épitaxiés, les structures électroniques propres aux matériaux sont conservées. Cet aspect laisse entrevoir la possibilité d'adapter la multicouche afin d'obtenir les caractéristiques électriques souhaitées. Deux exemples en ont été donnés. Le premier est la destruction de l'état de résonance par la rugosité de l'interface supérieure MgO/Fe conduisant à une TMR diminuant peu avec la tension, phénomène amplifié par le filtrage de la barrière et la sélection en symétrie opérée dans l'électrode inférieure. Le deuxième est le découplage du volume de l'IRS à l'interface inférieure Fe/MgO grâce à l'utilisation d'une couche tampon de Pd. Ce métal permet de conserver la symétrie  $\Delta_1$  dans l'empilement complet, mais l'analyse de la structure électronique du Pd révèle un désaccord de caractère orbital qui détruit la propagation cohérente des ondes de Bloch via cet IRS. En conséquence, aucune inversion du signe de la TMR n'est observée.

Nous avons également inhibé cet IRS mais de façon « magnétique » grâce à l'utilisation de systèmes de type *spring magnet*. Le transport tunnel fut également utilisé comme sonde du magnétisme de nos JTM.

Enfin, au travers d'une discussion portant sur la valeur de la résistance tunnel dans les différents régimes des faibles / intermédiaires / fortes épaisseurs d'isolant (annexe F), nous justifions que nous nous soyons principalement intéressés à la gamme de 25-30Å de MgO.

## **Conclusion et perspectives**

Les propriétés de transport dans les structures épitaxiées ne peuvent pas être décrites correctement avec le modèle des électrons libres. Au travers de l'étude du système Fe/MgO/Fe, nous avons validé de nouveaux concepts pour une meilleure compréhension de la physique fondamentale sous-jacente du transport tunnel polarisé en spin.

La confrontation des prédictions théoriques avec l'expérience nécessite l'élaboration d'empilements aussi parfaits que possible. Une grande partie de ce travail a donc été consacrée à l'optimisation de la croissance de chacune des couches ainsi que des propriétés magnétiques des couches douce et dure. La technique d'Épitaxie par Jets Moléculaires a permis l'élaboration d'empilements monocristallins Fe/MgO/Fe dont la qualité cristallographique a été vérifiée aux échelles micro et nanoscopiques par RHEED, MET et AFM. La croissance épitaxiale bidimensionnelle du MgO constitue l'atout majeur de ce système modèle puisqu'elle lui assure le dépôt de couches de MgO fines et continues, une détermination précise de leur épaisseur, des interfaces planes et donc proches de la modélisation théorique ainsi que la conservation de la symétrie électronique à travers toute la multicouche. Si les résultats magnétorésistifs ont été encourageants, l'optimisation complète du système nécessite un contrôle de la taille des terrasses de la couche tampon de Fe de même que la maîtrise de la nature chimique des interfaces puisque l'influence néfaste de la présence de carbone à l'interface inférieure Fe/MgO a été démontrée, en accord avec les attentes théoriques.

La croissance bidimensionnelle du MgO a permis l'élaboration de fines couches de MgO pour lesquelles nous avons fourni la première mise en évidence expérimentale d'une interaction antiferromagnétique entre deux couches magnétiques par effet tunnel polarisé en spin. La forme de la variation du couplage expérimental avec l'épaisseur de l'isolant et sa valeur quantitative sont en accord avec les modèles théoriques. Ce nouveau type d'interactions magnétiques a été utilisé pour élaborer de nouveaux systèmes AAF et sonder leurs mécanismes de renversement ; il offre de nouvelles possibilités qui font partie des premières perspectives, telles que la réalisation de puits quantiques, l'étude dynamique du couplage par effet tunnel sous une tension appliquée ou encore son utilisation dans des systèmes de type GMR.

Le chapitre IV a détaillé les spécificités du transport tunnel dans le système Fe/MgO/Fe. Certaines conclusions sont d'ailleurs valables pour les structures épitaxiées en général. L'étude des représentations irréductibles du groupe d'espace permet de classer les électrons suivant leurs propriétés de symétrie à la différence des systèmes polycristallins avec des barrières amorphes dans lesquels seul le caractère orbital compte. Les électrodes monocristallines sélectionnent les symétries des électrons et la barrière tunnel filtre leur taux d'atténuation suivant la fonction d'onde associée. Ainsi, le Fe(001) apparaît comme un demi-métal au regard de la symétrie  $\Delta_1$  : cette nouvelle notion de polarisation en terme de symétrie électronique explique les formidables effets magnétorésistifs prédits dans le système Fe/MgO/Fe.

Les résultats expérimentaux ont montré une TMR atteignant 100% à température ambiante. Leur confrontation avec les modèles théoriques a permis de valider les aspects spécifiques du transport tunnel dans les systèmes épitaxiés. L'étude en température a mis en évidence une forte différence dans les mécanismes de conduction des configurations P et AP. L'étude approfondie sur l'impact des magnons et des phonons fait partie des premières perspectives de cette thèse de même que des approfondissements quantitatifs théoriques et expérimentaux sur le rôle joué par la contamination interfaciale en carbone (aspect abordé expérimentalement dans cette thèse mais uniquement de façon qualitative). De plus, les images MET ont montré qu'à partir de dix plans atomiques de MgO, des dislocations apparaissent dans la barrière. Toute rupture de la symétrie cristalline brise et mélange les symétries électroniques : cela devrait se traduire par des modifications notables de la transmission du courant tunnel mesurables en AFM Conducteur ou STM.

La rupture de la symétrie cristalline dans l'électrode inférieure de Fe donne naissance à un état de résonance interfaciale qui modifie les propriétés de transport lorsque la tension appliquée l'active. La symétrie de cet état de résonance implique la création d'un canal de conduction AP de type  $\Delta_1$ , inattendu à cette énergie. Ses caractéristiques (forte probabilité de raccordement et faible taux d'atténuation) justifient son importante participation au courant tunnel et la forte augmentation de la conductance AP, responsable de l'inversion du signe de la TMR. Cet état de résonance interfaciale a été découplé du volume en modifiant la structure électronique de la couche tampon (utilisation du Pd) et inhibé « artificiellement » (magnétiquement) grâce à l'utilisation de systèmes de type *exchange spring magnet*. Enfin, lorsque les électrons sont injectés dans l'électrode supérieure, la destruction de la résonance interfaciale par la rugosité et la transmission favorisée (par l'électrode inférieure et la barrière) des électrons  $\Delta_1$  induit une magnétorésistance variant peu avec la tension.

La forte potentialité du système Fe/MgO/Fe a été démontrée et incite évidemment à l'amélioration des propriétés magnétorésistives à court terme via une croissance structurale encore mieux maîtrisée et un contrôle de la nature chimique de l'interface. Une fois ces points réglés,

l'augmentation de la TMR avec l'épaisseur de MgO est un objectif envisageable qui viendrait conforter les prédictions théoriques. Nous avons également montré la faisabilité de structures à doubles barrières, aspects intéressants dans l'élaboration et l'étude de transistor à électrons chauds. Enfin, nous projetons de poursuivre l'étude sur l'obtention de caractéristiques magnétorésistives souhaitées grâce à la modulation de la structure électronique des électrodes en jouant sur la nature, la symétrie et la séquence d'empilement.

Cette thèse consacrée aux phénomènes électroniques dans les systèmes cristallins a mis en avant la notion de symétrie électronique. Ce degré de liberté supplémentaire offre d'impressionnantes potentialités. Prenons deux métaux ferromagnétiques cristallins séparés par une barrière. Si l'un des deux métaux a une symétrie plus importante que l'autre, alors toutes les symétries électroniques seront acceptées lorsque la tension sera appliquée dans un sens mais certaines seront rejetées pour la tension opposée. On peut ainsi imaginer un effet de type « diode ». Jusqu'à présent, de tels effets ne sont observables que dans des structures à doubles barrières mais ils seraient envisageables avec une barrière unique ! Une étude plus approfondie montre rapidement que les choses ne sont pas si simples, en particulier parce que l'épitaxie de tout l'empilement suppose la compatibilité des groupes d'espace des différents matériaux qui partagent donc nécessairement de nombreuses symétries électroniques. Une vision encore plus futuriste consisterait à considérer une barrière piézo-électrique pour laquelle l'application d'une tension la déformerait et changerait son groupe d'espace : certaines symétries ne passeront plus et le courant tunnel sera fortement modifié.

Jusqu'à présent, « l'électronique de spin *conventionnelle* a ignoré la symétrie des électrons » mais, de la même manière que la maîtrise du spin de l'électron a ouvert un nouveau champ de recherche fascinant, l'alliance de l'épitaxie et du transport par effet tunnel apportera autant de nouveaux développements dans l'électronique de spin qu'elle en a elle-même apporté à l'électronique conventionnelle.



## Annexe A

### Stoechiométrie du MgO

Le MgO est évaporé par canon à électrons. Le faisceau d'électrons frappe des morceaux de substrats de MgO placés dans le creuset. Durant le chauffage et le dépôt du MgO, le spectromètre de masse nous indique un pic d'oxygène. Il semble donc qu'au moins une partie du MgO se sublime en  $Mg^+$  et  $O^-$  à cause du bombardement électronique [Keavney\_JAP81\_1996]. Comment se recombinaient ces ions au moment du dépôt sur la couche de Fe ? Le MgO est-il stoechiométrique ? Cette question est cruciale car il se pourrait que l'oxygène préfère s'adsorber sur la paroi de l'enceinte ultravide entraînant alors une sous-stoechiométrie en O qui risquerait de détruire le caractère isolant de la barrière tunnel.

Les mesures de stoechiométrie ont été effectuées au Laboratoire de Physique des Milieux Ionisés et Applications (UMR 7040, Université H. Poincaré) avec l'aide de Damien Genève. Ce laboratoire dispose d'un spectromètre Auger à balayage couplé à un MEB (Microlab 310D, Thermo VG Scientific). L'imagerie MEB permet de cibler précisément la zone à analyser en Auger. Ceci sera très utile à l'annexe B qui concerne les défauts induits par le faisceau RHEED sur une couche isolante.

L'analyse portait sur l'échantillon suivant : MgO (100) // Fe (400Å) / MgO (100Å). L'épaisseur de MgO a été choisie suffisamment grande pour que le signal Auger provienne uniquement du MgO déposé et non de la couche de Fe sous-jacente. La méthode consiste à mesurer les hauteurs des pics Auger (mode  $dE/dN$ ) caractéristiques de chaque élément (voir figure A-1). Cela permet ensuite d'en déduire la stoechiométrie du composé selon les calculs exposés ci-après. Un substrat de MgO pur, nettoyé *in situ* par gravure ionique, sert de référence.



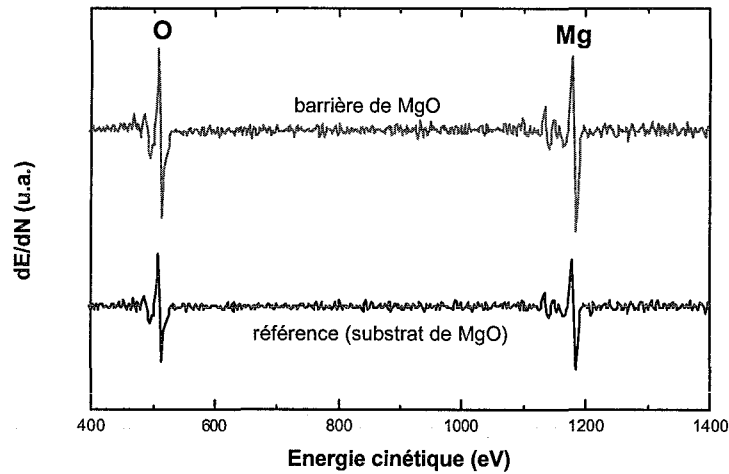


figure A-1  
Spectres Auger d'une barrière et d'un substrat de MgO qui sert de référence.

D'après [McGuire\_1979], en notant  $h_0^{Ech}$  et  $h_{Mg}^{Ech}$  les hauteurs des pics de l'oxygène et du magnésium des spectres Auger en mode dérivé pour l'échantillon,  $\lambda_O$  et  $\lambda_{Mg}$  les coefficients de sensibilité de l'oxygène et du magnésium (c'est-à-dire leur rendement d'électrons Auger), et  $\%at_0^{Ech}$  le pourcentage atomique en oxygène de l'échantillon, on a :

$$\frac{\lambda_O h_0^{Ech}}{\lambda_O h_0^{Ech} + \lambda_{Mg} h_{Mg}^{Ech}} = \%at_0^{Ech} \quad (A-1)$$

$$\text{soit } \lambda_O h_0^{Ech} \times (1 - \%at_0^{Ech}) = \%at_0^{Ech} \times \lambda_{Mg} h_{Mg}^{Ech} \quad (A-2)$$

Pour le substrat référence, on a de même :

$$\lambda_O h_0^{Ref} \times (1 - \%at_0^{Ref}) = \%at_0^{Ref} \times \lambda_{Mg} h_{Mg}^{Ref} \quad \text{soit } \frac{h_0^{Ech} \times (1 - \%at_0^{Ech})}{h_0^{Ref} \times (1 - \%at_0^{Ref})} = \frac{\%at_0^{Ech} \times h_{Mg}^{Ech}}{\%at_0^{Ref} \times h_{Mg}^{Ref}} \quad (A-3)$$

En supposant que  $\%at_0^{Ref}$  vaut 0.5 (MgO pur), on obtient alors

$$\frac{\%at_0^{Ech}}{(1 - \%at_0^{Ech})} = \frac{h_0^{Ech} \times h_{Mg}^{Ref}}{h_0^{Ref} \times h_{Mg}^{Ech}} = A \quad \text{soit } \%at_0^{Ech} = \frac{A}{1 + A} \quad (A-4)$$

En effectuant plusieurs analyses Auger à différents endroits de la surface de la couche de MgO et du substrat, la moyenne des différents  $\%at_0^{Ech}$  obtenus vaut 0.53. Cette valeur nous permet de conclure que, dans la limite des barres d'erreur, la stoechiométrie du MgO évaporé est très bonne.

## Annexe B

### Défauts induits par le faisceau RHEED

La technique de diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (RHEED) est très utilisée pour la caractérisation cristallographique des échantillons. Elle fournit de précieuses indications *in situ* sur la rugosité des couches, le mode de croissance, la structure cristallographique, la variation du paramètre de maille, la taille des îlots ou encore la vitesse de dépôt. L'appareillage utilisé ici est réglé à une tension de 30kV et délivre un courant d'électron de 50 $\mu$ A.

Cette thèse étant axée sur la confrontation des mesures expérimentales avec les prédictions théoriques, un point très important est le contrôle de la croissance 2D du MgO sur le Fe, effectué par RHEED en cours de croissance. Cependant, dans le cas d'épaisseurs couches isolantes, cette technique peut s'avérer destructive. En effet, les électrons apportés par le faisceau RHEED sur la surface de l'isolant ne peuvent plus s'évacuer lorsque ce dernier devient trop épais. Par suite, ils s'accumulent jusqu'à une densité de charge critique pour laquelle un claquage diélectrique se produit. Les défauts induits ont l'apparence de volcans larges de plusieurs micromètres avec une couronne de projection tout autour, preuve d'un phénomène violent. Les couches sont complètement détruites ce qui est néfaste à l'élaboration de JTM.

Considérons l'échantillon suivant : MgO (100) // Fe (400Å) / MgO (70Å) / Co (400Å) / Au (200Å) de taille 2x2cm<sup>2</sup>. Une fois la couche de Fe déposée et recuite, nous utilisons le RHEED pour vérifier la planéité de sa surface. Le faisceau RHEED toujours allumé, nous déposons le MgO par canon à électrons. Des oscillations d'intensité RHEED confirment la croissance 2D du MgO sur le Fe plat. Après le dépôt de plusieurs couches d'isolant, nous observons la déviation du faisceau d'électrons sur l'écran et soudainement un éclair se produit et le faisceau retrouve sa position originelle. Ce phénomène se produit plusieurs fois et avec différentes intensités durant le même dépôt de MgO. Par moments, le « flash » était si intense que la caméra CCD, utilisée pour enregistrer les images RHEED, disjonctait. La figure B-1 montre les oscillations d'intensité RHEED dans le cas du dépôt de MgO sur Fe. Au début du dépôt, nous obtenons les oscillations attendues mais au bout d'une certaine épaisseur, supérieure à une dizaine de couches atomiques de MgO, les oscillations de RHEED disparaissent et on voit apparaître d'autres « oscillations » d'une période plus grande. Ces « oscillations » ont été corrélées avec la déviation du faisceau d'électrons.

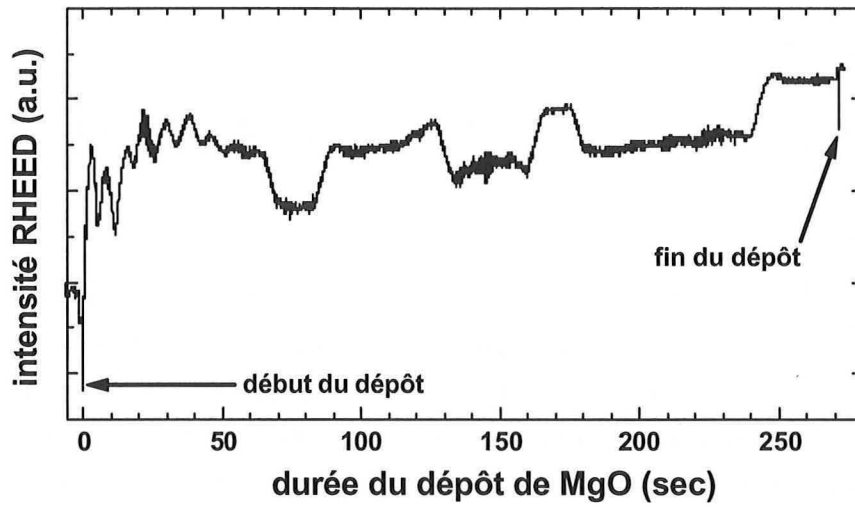


figure B-1  
Oscillations d'intensité RHEED obtenues dans le cas d'une croissance 2D et fluctuations de l'intensité RHEED liées à la déviation du spot. L'épaisseur totale de MgO est de 70Å.

L'observation de la surface à l'aide d'un microscope optique révèle la présence de plusieurs zones présentant des défauts (figure B-2a). L'agrandissement de l'un d'eux montre la forme d'un volcan (figure B-2b). Une couronne de projections est visible autour du défaut, comme dans le cas d'une « éruption volcanique ».

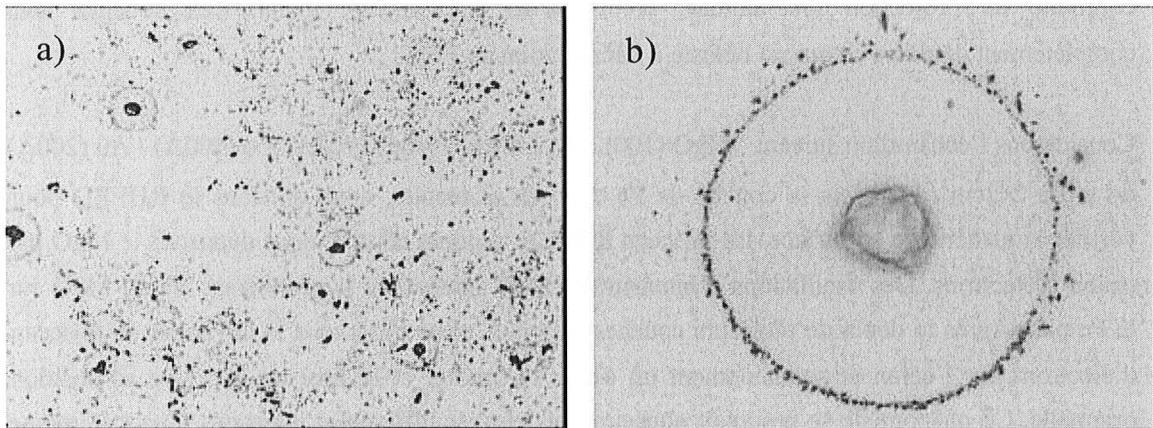


figure B-2  
Microscopie optique :  
a) zone à forte concentration de défauts. Chaque point en représente un mais les couronnes de projections sont nettement visibles pour les plus gros défauts.  
b) agrandissement d'un des défauts. On remarque la couronne de projections. La focalisation sur le centre du défaut lui-même n'est pas possible à cause de sa hauteur.

L'utilisation d'un microscope électronique à balayage (MEB) confirme l'existence de défauts dont le diamètre varie entre 1 et 100 $\mu\text{m}$  (figure B-3a). Le MEB utilisé permettait également la spectroscopie Auger (AES) avec une grande résolution latérale afin d'obtenir l'analyse chimique d'une zone précise. Bien évidemment, les spectres Auger n'ont révélé que la présence d'Au qui est la couche de protection utilisée pour cet échantillon. Nous avons alors effectué la même expérience de bombardement électronique mais sur un échantillon simplifié : MgO(100)//Fe(400Å)/MgO(100Å). Sur un défaut identique à celui de la figure B-3a, nous avons alors réalisé des analyses chimiques au centre du défaut et sur la surface libre de tout défaut qui sont respectivement numérotées zones 1 et 2 sur la figure B-3a. Il faut préciser que les analyses chimiques présentées par la suite ne correspondent pas aux vraies zones 1 et 2: la difficulté d'obtenir une image correcte sur une surface isolante nous empêche de fournir une image MEB correcte pour l'échantillon MgO(100)//Fe(400Å)/MgO(100Å). Par conséquent, les régions 1 et 2 indiquent seulement les positions relatives pour lesquelles les analyses chimiques ont été réalisées. Les spectres Auger ont été réalisés sur des zones d'environ 500nm de diamètre et sont présentés sur la figure B-3b. Ils révèlent sans ambiguïté la présence de Fe à la surface du défaut (zone 1) alors que seul du MgO est détecté sur la zone 2. Si nous considérons l'épaisseur de la couche de MgO (100Å dans notre cas) et la profondeur d'analyse du faisceau Auger (quelques dizaines d'Angströms), il ne fait aucun doute que la présence de Fe dans le défaut signifie que la couche de MgO est détruite localement et est constituée d'un mélange de Fe et de MgO. Il est important de préciser que ces défauts n'ont pas été induits par le faisceau d'électrons du MEB puisque nous les avons préalablement observés en microscopie optique, technique « inoffensive » pour l'échantillon.

La figure B-4 montre l'image tridimensionnelle d'un tel défaut en Microscopie à Force Atomique (AFM). La hauteur du défaut est 1.6 $\mu\text{m}$ , bien au dessus de l'épaisseur totale de l'empilement (1000Å dans notre cas). Une telle hauteur pourrait être due à l'accumulation de matière provenant du voisinage du défaut. Cependant, nous n'avons observé aucune dépression autour du défaut : la surface est plane. Par conséquent, une telle hauteur ne peut s'expliquer que par l'apport de matière provenant du substrat. Pour valider cette hypothèse, nous avons alors gravé l'échantillon pendant longtemps. Une fois toutes les couches métalliques gravées, l'impact de la décharge électrique était visible sur le substrat. Cela signifie que la décharge électrique est si intense qu'elle détruit non seulement les couches mais également une partie du substrat.

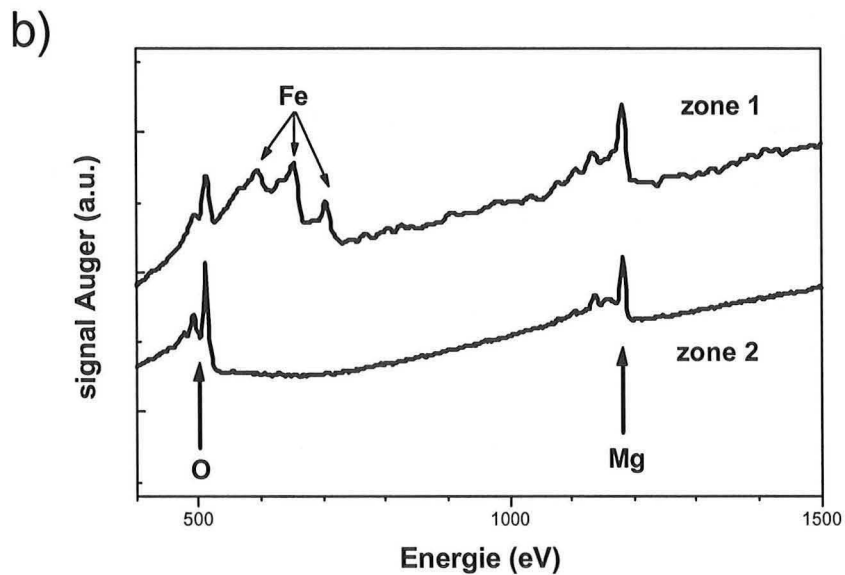
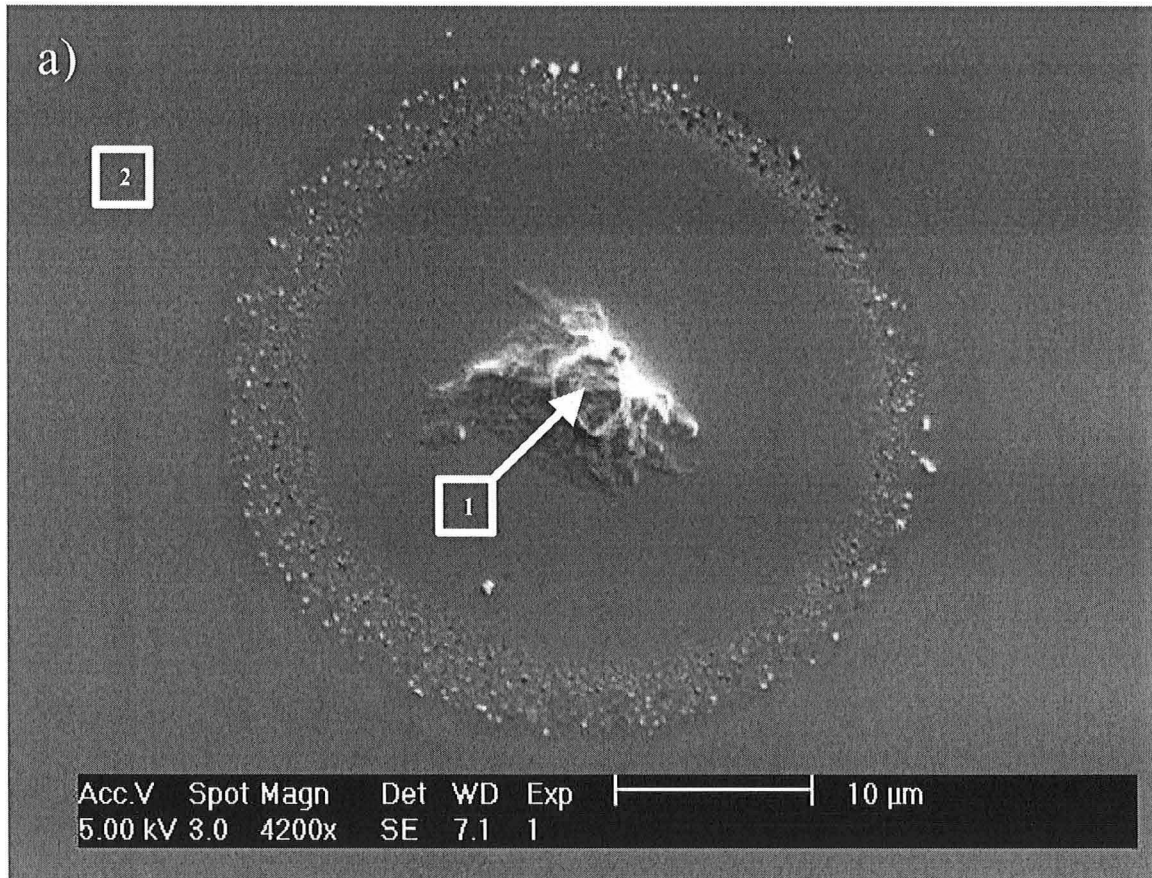


Figure B-3

a) Image MEB d'un défaut pour un échantillon du type  $\text{MgO}(100)/\text{Fe}(400\text{\AA})/\text{MgO}(70\text{\AA})/\text{Co}(400\text{\AA})/\text{Au}(200\text{\AA})$ . La ressemblance avec un volcan est évidente. Les zones 1 et 2 correspondent au centre du "volcan" et une surface intacte, respectivement.

b) Spectres Auger présentant les transitions KLL du Mg et de l'O et LMM du Fe. La présence de Fe au centre du défaut est clairement mise en évidence alors qu'aucune trace de Fe n'est détectée dans la zone 2. Précisons que ces signaux Auger ne correspondent pas « réellement » aux zones 1 et 2 de la figure B-3a (voir le texte).

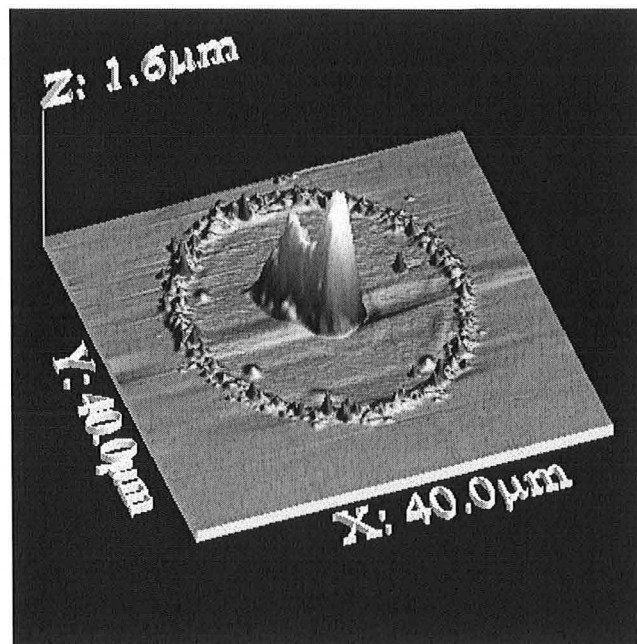


Figure B-4 :  
Image AFM d'un défaut. Le point central a un diamètre d'environ  $8\mu\text{m}$  pour une hauteur de  $1.6\mu\text{m}$ , c'est-à-dire nettement plus que l'épaisseur totale de l'échantillon. La couronne a un diamètre d'environ  $25\mu\text{m}$ .

Quelques modèles théoriques ont été développés pour décrire la distribution spatiale des charges dans des matériaux diélectriques soumis à une irradiation d'électrons. Dans le cas d'électrons incidents, la longueur de pénétration n'est que de quelques Angströms par conséquent on peut imaginer une région irradiée et une région non irradiée comme le modèle développé dans la référence [Berkopec\_ER68\_2001]. Ce modèle prend en compte la dynamique des porteurs de charge dans les deux régions différentes. Il montre un déplacement des électrons de la région irradiée vers la zone non irradiée jusqu'à une position d'équilibre où les charges négatives s'accumulent. A cause de la répulsion électrostatique, le faisceau RHEED est dévié jusqu'à ce que la densité de charge atteigne la valeur critique et soit évacuée par claquage de l'isolant.

Bien évidemment, ce modèle est un modèle statique alors que dans notre cas, nous bombardons l'isolant en cours de dépôt. Cependant, il corrobore le fait expérimental qu'aucun défaut n'est observé pour les faibles épaisseurs d'isolant. En effet, la position d'équilibre est alors située très proche de l'électrode métallique voire même dedans. Ainsi les électrons sont évacués soit directement soit par effet tunnel et collectés par l'électrode métallique. Dans tous les cas, il n'y a pas d'accumulation de charge.

Je remercie Sylvie Migot-Choux du LPM et Damien Genève du Laboratoire de Physique des Milieux Ionisés et Applications pour l'aide apportée lors des expériences MEB et AES ainsi que pour les discussions scientifiques.







## Annexe C

### Couplage de Néel

Le couplage de Néel entre deux couches métalliques est un couplage magnétostatique induit par la rugosité des couches magnétiques. Considérons le cas simple d'un profil de type sinusoïdal de la rugosité comme illustré à la figure C-1.

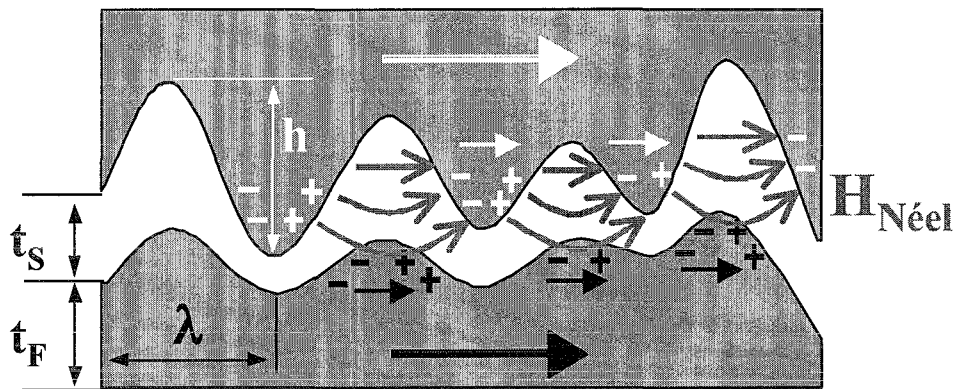


figure C-1  
Schéma illustrant le couplage peau d'orange. La rugosité topologique des interfaces {métal ferromagnétique-isolant} induit l'apparition de charges magnétiques ce qui crée un champ dipolaire  $H_{Néel}$  qui couple ferromagnétiquement les deux couches magnétiques.

A cause de l'irrégularité de ce profil, il y a accumulation de charges magnétiques pour chacune des couches magnétiques aux endroits pour lesquels le produit scalaire entre le vecteur normal à la surface et le vecteur aimantation n'est pas nul. Si les rugosités des interfaces inférieure et supérieure sont en phase, cette accumulation conduit à la création de dipôles magnétiques et d'un champ dipolaire magnétique entre les couches favorisant ainsi une orientation parallèle des aimantations [Néel\_CRAS255\_1962 ; Schrag\_APL77\_2000]. Ce champ, dit de Néel ou «peau d'orange», s'exprime en fonction des paramètres que sont la période ( $\lambda$ ) et l'amplitude ( $h$ ) des oscillations de rugosité, l'épaisseur de la couche magnétique la plus douce ( $t_s$ ) et de son aimantation ( $M_s$ ) et enfin la distance moyenne séparant les deux couches magnétiques :

$$H = \frac{\pi^2}{\sqrt{2}} \left( \frac{h^2}{\lambda t_F} \right) M_s e^{\left( -2\pi\sqrt{2} \frac{t_s}{\lambda} \right)}. \quad (C-1)$$

A partir des images de Microscopie Electronique à Transmission (MET), nous avons estimé les différents paramètres entrant en jeu dans cette expression. Voici l'exemple du calcul correspondant à l'image MET illustrée à la figure C-2. Les paramètres estimés de la rugosité sont alors  $\lambda=80\text{\AA}$  et  $h\approx 4\text{\AA}$  ;  $t_S (=8.9\text{\AA})$  est connu d'après les oscillations d'intensité RHEED,  $t_F (=70\text{\AA})$  d'après les calibrations des flux d'évaporation. Sachant que  $M_S=1714\text{emu/cm}^3$ , nous obtenons  $H_N\approx 13\text{Oe}$  soit, puisque  $J_N=H_N\times\mu_{Fe}\times t_F$ ,  $J_N\approx 0.015\text{erg/cm}^2$ . Compte tenu des erreurs possibles sur la détermination des paramètres à partir des images MET, cette valeur est en bon accord avec celle obtenue par les mesures magnétiques.

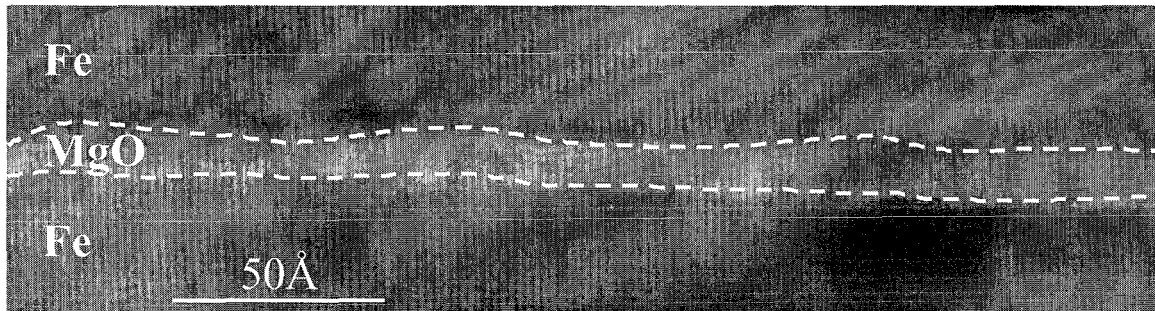


figure C-2  
Image MET d'une jonction  $Fe(t_F=70\text{\AA})/MgO(t_S=8.9\text{\AA})/Fe$ . Le profil de rugosité est symbolisé par les pointillés. La période des « oscillations » a été estimée à  $80\text{\AA}$ .

## Annexe D

# Expressions analytiques des champs de plateau et de saturation suivant les axes facile et difficile dans les systèmes AAF

Soit le système AAF considéré suivant :

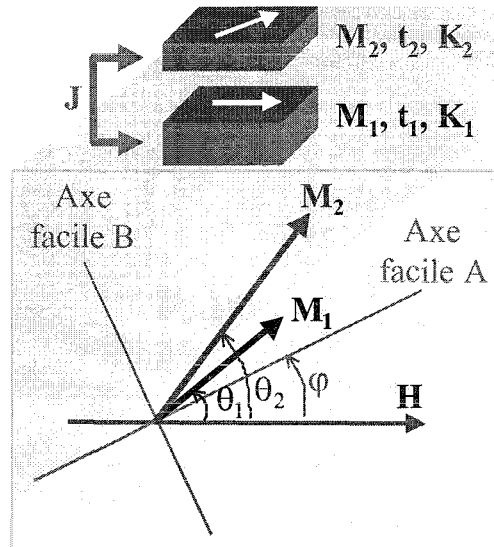


figure D-1

Schéma illustrant la signification des angles  $\theta_1$ ,  $\theta_2$  et  $\varphi$  repérés par rapport à la direction d'application du champ.  $K_1$  et  $K_2$  sont les anisotropies,  $t_1$  et  $t_2$  sont les épaisseurs et  $M_1$  et  $M_2$  les aimantations des couches.  $J$  est le couplage bilinéaire.

Son énergie totale s'écrit alors :

$$E_{\text{totale}} = -H \times (M_1 t_1 \cos \theta_1 + M_2 t_2 \cos \theta_2) - J \cos(\theta_1 - \theta_2) + \frac{K_1 t_1}{4} \sin^2 2(\theta_1 - \varphi) + \frac{K_2 t_2}{4} \sin^2 2(\theta_2 - \varphi) \quad (\text{D-1})$$

La minimisation de l'énergie ( $\frac{\partial E}{\partial \theta_1} = 0$  et  $\frac{\partial E}{\partial \theta_2} = 0$ ) conduit aux équations suivantes :

$$\begin{cases} \sin(\theta_2 - \theta_1) = \frac{1}{J} [M H t_1 \sin \theta_1 + K_1 t_1 \sin 2(\theta_1 - \varphi) \cos 2(\theta_1 - \varphi)] \\ -\sin(\theta_2 - \theta_1) = \frac{1}{J} [M H t_2 \sin \theta_2 + K_2 t_2 \sin 2(\theta_2 - \varphi) \cos 2(\theta_2 - \varphi)] \end{cases} \quad (\text{D-2})$$

## Résolution suivant l'axe facile ( $\varphi=0$ )

La détermination des expressions des champs de saturation ( $H_S$ ) et de plateau ( $H_P$ ) ne peut pas s'obtenir directement en passant à la limite, c'est-à-dire en posant directement  $\{\theta_1 \rightarrow 0^+ ; \theta_2 \rightarrow 0^+\}$  (pour  $H_S$ ) et  $\{\theta_1 \rightarrow 0^+ ; \theta_2 \rightarrow \pi^-\}$  (pour  $H_P$ ). En effet, cela ne nous apporte aucune information puisque tous les termes s'annulent. L'une des manières d'extraire de ces équations les valeurs analytiques des champs de plateau et de saturation est la suivante :

$$\begin{cases} \frac{\sin \theta_1}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{J}{t_1} \frac{1}{[MH + 2K_1 \cos \theta_1 \cos 2\theta_1]} & (D-3a) \\ -\frac{\sin \theta_2}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{J}{t_2} \frac{1}{[MH + 2K_2 \cos \theta_2 \cos 2\theta_2]} & (D-3b) \end{cases}$$

soit, en ajoutant les équations (D-3a) et (D-3b) :

$$\frac{\sin \theta_1 - \sin \theta_2}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{J}{t_1} \frac{1}{[MH + 2K_1 \cos \theta_1 \cos 2\theta_1]} + \frac{J}{t_2} \frac{1}{[MH + 2K_2 \cos \theta_2 \cos 2\theta_2]}. \quad (D-4)$$

Le champ de saturation suivant l'axe facile, noté  $H_S^F$ , correspond à la saturation des couches magnétiques, c'est-à-dire pour  $\theta_1 \rightarrow 0^+$  et  $\theta_2 \rightarrow 0^+$ .

$$\text{De plus, on a } \frac{\sin \theta_1 - \sin \theta_2}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{2 \cos(\frac{\theta_1 + \theta_2}{2}) \sin(\frac{\theta_1 - \theta_2}{2})}{2 \cos(\frac{\theta_2 - \theta_1}{2}) \sin(\frac{\theta_2 - \theta_1}{2})} = -\frac{\cos(\frac{\theta_1 + \theta_2}{2})}{\cos(\frac{\theta_2 - \theta_1}{2})}. \quad (D-5)$$

En passant à la limite dans les équations (D-4) et (D-5) ( $\theta_1 \rightarrow 0^+$  et  $\theta_2 \rightarrow 0^+$ ), on obtient alors

$$-1 = \frac{J}{t_1} \frac{1}{[MH_S^F + 2K_1]} + \frac{J}{t_2} \frac{1}{[MH_S^F + 2K_2]}. \quad (D-6)$$

ce qui conduit à une équation du second degré en  $H_S^F$  dont la résolution donne :

$$H_S^F + \frac{K_1 + K_2}{M} = -\frac{J}{2M} \left( \frac{1}{t_1} + \frac{1}{t_2} \right) \left[ 1 \pm \sqrt{1 + \frac{4t_1 t_2 (t_1 - t_2) (K_2 - K_1)}{(t_1 + t_2)^2 J} + \frac{4t_1^2 t_2^2 (K_2 - K_1)^2}{(t_1 + t_2)^2 J^2}} \right]. \quad (D-7)$$

Pour le calcul de  $H_P$ , le passage à la limite  $\{\theta_1 \rightarrow 0^+ ; \theta_2 \rightarrow \pi^-\}$  est également impossible (indétermination du signe). On peut cependant écrire :

$$\frac{\sin \theta_1 + \sin \theta_2}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{J}{t_1} \frac{1}{[MH + 2K_1 \cos \theta_1 \cos 2\theta_1]} - \frac{J}{t_2} \frac{1}{[MH + 2K_2 \cos \theta_2 \cos 2\theta_2]}. \quad (D-8)$$

$$\text{Avec cette fois : } \frac{\sin \theta_1 + \sin \theta_2}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{2 \cos(\frac{\theta_1 - \theta_2}{2}) \sin(\frac{\theta_1 + \theta_2}{2})}{2 \cos(\frac{\theta_2 - \theta_1}{2}) \sin(\frac{\theta_2 - \theta_1}{2})} = -\frac{\sin(\frac{\theta_1 + \theta_2}{2})}{\sin(\frac{\theta_2 - \theta_1}{2})}. \quad (D-9)$$

Maintenant on peut passer à la limite  $\{\theta_1 \rightarrow 0^+ ; \theta_2 \rightarrow \pi^-\}$  dans (D-8) et (D-9), ce qui donne :

$$1 = \frac{J}{t_1} \frac{1}{[MH_p^F + 2K_1]} - \frac{J}{t_2} \frac{1}{[MH_p^F - 2K_2]} \quad (D-10)$$

et conduit à une équation du second degré en  $H_p^F$  dont la résolution amène à :

$$H_p^F - \frac{K_2 - K_1}{M} = -\frac{J(t_1 - t_2)}{2t_1 t_2 M} \left[ 1 \pm \sqrt{1 - \frac{4t_1 t_2 (t_1 + t_2) (K_1 + K_2)}{(t_1 - t_2)^2 J} + \frac{4t_1^2 t_2^2 (K_1 + K_2)^2}{(t_1 - t_2)^2 J^2}} \right] \quad (D-11)$$

Dans ces expressions, le signe +/- devant la racine carrée implique deux solutions possibles pour chacun des champs  $H_s^F$ ,  $H_p^F$ . A ce stade purement analytique des calculs, il est impossible de lever cette indétermination. Cependant, en utilisant les cas limites qui sont analysés à la fin de cette annexe ( $K_1=K_2=0$ ), on parvient à ne garder que la solution physique acceptable, à savoir :

$$H_s^F + \frac{K_1 + K_2}{M} = -\frac{J}{2M} \left( \frac{1}{t_1} + \frac{1}{t_2} \right) \left[ 1 + \sqrt{1 + \frac{4t_1 t_2 (t_1 - t_2) (K_2 - K_1)}{(t_1 + t_2)^2 J} + \frac{4t_1^2 t_2^2 (K_2 - K_1)^2}{(t_1 + t_2)^2 J^2}} \right] \quad (D-12)$$

et

$$H_p^F - \frac{K_2 - K_1}{M} = -\frac{J(t_1 - t_2)}{2t_1 t_2 M} \left[ 1 + \sqrt{1 - \frac{4t_1 t_2 (t_1 + t_2) (K_1 + K_2)}{(t_1 - t_2)^2 J} + \frac{4t_1^2 t_2^2 (K_1 + K_2)^2}{(t_1 - t_2)^2 J^2}} \right] \quad (D-13)$$

## Résolution suivant l'axe difficile ( $\varphi=\pi/4$ )

On procède de manière analogue :

$$\begin{cases} \frac{\sin \theta_1}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{J}{t_1} \frac{1}{[MH - 2K_1 \cos \theta_1 \cos 2\theta_1]} \\ -\frac{\sin \theta_2}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{J}{t_2} \frac{1}{[MH - 2K_2 \cos \theta_2 \cos 2\theta_2]} \end{cases} \quad (D-14)$$

Les passages aux limites  $\{\theta_1 \rightarrow 0^+ ; \theta_2 \rightarrow 0^+\}$  (pour  $H_s^D$ ) et  $\{\theta_1 \rightarrow 0^+ ; \theta_2 \rightarrow \pi^-\}$  (pour  $H_p^D$ ) mènent aux expressions suivantes :

$$-1 = \frac{J}{t_1} \frac{1}{[MH_s^D - 2K_1]} + \frac{J}{t_2} \frac{1}{[MH_s^D - 2K_2]} \quad \text{pour le champ de saturation} \quad (D-15)$$

et

$$1 = \frac{J}{t_1} \frac{1}{[MH_p^D - 2K_1]} - \frac{J}{t_2} \frac{1}{[MH_p^D + 2K_2]} \quad \text{pour le champ de plateau} \quad (D-16)$$

soit

$$H_S^D - \frac{K_1 + K_2}{M} = -\frac{J}{2M} \left( \frac{1}{t_1} + \frac{1}{t_2} \right) \left[ 1 \pm \sqrt{1 + \frac{4t_1 t_2 (t_1 - t_2) (K_2 - K_1)}{(t_1 + t_2)^2 J} + \frac{4t_1^2 t_2^2 (K_2 - K_1)^2}{(t_1 + t_2)^2 J^2}} \right] \quad (D-17)$$

et

$$H_P^D + \frac{K_2 - K_1}{M} = -\frac{J(t_1 - t_2)}{2t_1 t_2 M} \left[ 1 \pm \sqrt{1 + \frac{4t_1 t_2 (t_1 + t_2) (K_1 + K_2)}{(t_1 - t_2)^2 J} + \frac{4t_1^2 t_2^2 (K_1 + K_2)^2}{(t_1 - t_2)^2 J^2}} \right]. \quad (D-18)$$

De la même manière que précédemment, l'analyse des cas limites permet de lever l'indétermination sur le signe +/- situé devant la racine carrée. Les solutions physiques acceptables sont :

$$H_S^D - \frac{K_1 + K_2}{M} = -\frac{J}{2M} \left( \frac{1}{t_1} + \frac{1}{t_2} \right) \left[ 1 + \sqrt{1 + \frac{4t_1 t_2 (t_1 - t_2) (K_2 - K_1)}{(t_1 + t_2)^2 J} + \frac{4t_1^2 t_2^2 (K_2 - K_1)^2}{(t_1 + t_2)^2 J^2}} \right] \quad (D-19)$$

et

$$H_P^D + \frac{K_2 - K_1}{M} = -\frac{J(t_1 - t_2)}{2t_1 t_2 M} \left[ 1 + \sqrt{1 + \frac{4t_1 t_2 (t_1 + t_2) (K_1 + K_2)}{(t_1 - t_2)^2 J} + \frac{4t_1^2 t_2^2 (K_1 + K_2)^2}{(t_1 - t_2)^2 J^2}} \right]. \quad (D-20)$$

## Cas limites

- Considérons des couches magnétiques isotropes, c'est-à-dire telles que  $K_1 = K_2 = 0$ . Dans ce cas, on obtient :

$$H_S = -\frac{J}{M} \left( \frac{1}{t_1} + \frac{1}{t_2} \right) \quad \text{et} \quad H_P = -\frac{J}{M} \frac{(t_1 - t_2)}{t_1 t_2} \quad (D-21)$$

*Remarque : dans le cas de couches magnétiques parfaitement isotropes, les notions d'axes facile et difficile n'existent plus, ce qui se traduit dans nos équations par  $H_S^F = H_S^D = H_S$  et  $H_P^F = H_P^D = H_P$ .*

Ce qui nous conduit à l'égalité  $\frac{H_S}{H_P} = \frac{t_1 + t_2}{t_1 - t_2} = Q$ , Q étant le facteur d'amplification du champ

coercitif de l'AAF.

- Supposons cette fois que les couches présentent des constantes d'anisotropie identiques ( $K_1 = K_2 = K$ ). Alors on obtient :

$$H_S^F + \frac{2K}{M} = -\frac{J}{M} \left( \frac{1}{t_1} + \frac{1}{t_2} \right) \quad \text{et} \quad H_S^D - \frac{2K}{M} = -\frac{J}{M} \left( \frac{1}{t_1} + \frac{1}{t_2} \right) \quad (D-22)$$

soit

$$H_P^F = -\frac{J(t_1 - t_2)}{2t_1 t_2 M} \left[ 1 \pm \sqrt{1 - \frac{8t_1 t_2 (t_1 + t_2) K}{(t_1 - t_2)^2 J} + \frac{16t_1^2 t_2^2 K^2}{(t_1 - t_2)^2 J^2}} \right] \quad (D-23)$$

et

$$H_P^D = -\frac{J(t_1 - t_2)}{2t_1 t_2 M} \left[ 1 \pm \sqrt{1 + \frac{8t_1 t_2 (t_1 + t_2) K}{(t_1 - t_2)^2 J} + \frac{16t_1^2 t_2^2 K^2}{(t_1 - t_2)^2 J^2}} \right]. \quad (D-24)$$

*Remarque : on peut faire un développement limité en  $(tK/J)$  dans les expressions de  $H_P^F$  et  $H_P^D$  pourvu que  $(tK/J) \ll 1$ .*

- Si on suppose en plus que l'AAF est compensé (i.e.  $t_1 = t_2 = t$ ) alors :

$$H_S^F + \frac{2K}{M} = -\frac{2J}{Mt} \quad \text{et} \quad H_S^D - \frac{2K}{M} = -\frac{2J}{Mt} \quad (D-25)$$

et  $H_p = 0$  suivant les axes facile ou difficile.

## Ajout d'un terme d'anisotropie d'ordre 2

On suppose maintenant que les deux axes faciles ne sont plus équivalents. Cela revient à ajouter un terme d'anisotropie d'ordre 2 pour chaque axe facile ( $\varphi$  et  $\varphi + \pi/2$ ) que l'on notera  $k_{12}$  et  $k_{22}$ . L'énergie totale du système s'écrit alors :

$$E_{\text{totale}} = -H \times (M_1 t_1 \cos \theta_1 + M_2 t_2 \cos \theta_2) - J \cos(\theta_1 - \theta_2) + \frac{K_1 t_1}{4} \sin^2 2(\theta_1 - \varphi) \\ + \frac{K_2 t_2}{4} \sin^2 2(\theta_2 - \varphi) + k_{12} t_1 \sin^2(\theta_1 - \varphi) + k_{22} t_2 \sin^2(\theta_2 - \varphi) \quad (D-26)$$

Suivant l'axe le plus facile A ( $\varphi=0$ ), la minimisation de l'énergie conduit à :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\sin \theta_1}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{J}{t_1} \frac{1}{[MH + 2K_1 \cos \theta_1 \cos 2\theta_1 + 2k_{12} \cos \theta_1]} \\ -\frac{\sin \theta_2}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{J}{t_2} \frac{1}{[MH + 2K_2 \cos \theta_2 \cos 2\theta_2 + 2k_{22} \cos \theta_2]} \end{array} \right. \quad (D-27)$$

et, suivant l'autre axe facile B ( $\varphi=\pi/2$ ) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\sin \theta_1}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{J}{t_1} \frac{1}{[MH + 2K_1 \cos \theta_1 \cos 2\theta_1 - 2k_{12} \cos \theta_1]} \\ -\frac{\sin \theta_2}{\sin(\theta_2 - \theta_1)} = \frac{J}{t_2} \frac{1}{[MH + 2K_2 \cos \theta_2 \cos 2\theta_2 - 2k_{22} \cos \theta_2]} \end{array} \right. \quad (D-28)$$

Les passages à la limite donnent alors les résultats suivants :

- pour l'axe le plus facile (A) :

$$H_S^A + \frac{K_1 + k_{12} + K_2 + k_{22}}{M} = -\frac{J}{2M} \left( \frac{1}{t_1} + \frac{1}{t_2} \right) \left[ 1 + \sqrt{1 + \frac{4t_1 t_2 (t_1 - t_2) (K_2 + k_{22} - K_1 - k_{12})}{(t_1 + t_2)^2 J} + \frac{4t_1^2 t_2^2 (K_2 + k_{22} - K_1 - k_{12})^2}{(t_1 + t_2)^2 J^2}} \right] \quad (D-29)$$

et

$$H_P^A - \frac{K_2 + k_{22} - K_1 - k_{12}}{M} = -\frac{J(t_1 - t_2)}{2t_1 t_2 M} \left[ 1 + \sqrt{1 - \frac{4t_1 t_2 (t_1 + t_2) (K_1 + k_{12} + K_2 + k_{22})}{(t_1 - t_2)^2 J} + \frac{4t_1^2 t_2^2 (K_1 + k_{12} + K_2 + k_{22})^2}{(t_1 - t_2)^2 J^2}} \right] \quad (D-30)$$

- pour l'autre axe facile (B) :

$$H_S^B + \frac{K_1 - k_{12} + K_2 - k_{22}}{M} = -\frac{J}{2M} \left( \frac{1}{t_1} + \frac{1}{t_2} \right) \left[ 1 + \sqrt{1 + \frac{4t_1 t_2 (t_1 - t_2) (K_2 - k_{22} - K_1 + k_{12})}{(t_1 + t_2)^2 J} + \frac{4t_1^2 t_2^2 (K_2 - k_{22} - K_1 + k_{12})^2}{(t_1 + t_2)^2 J^2}} \right] \quad (D-31)$$

et

$$H_P^B - \frac{K_2 - k_{22} - K_1 + k_{12}}{M} = -\frac{J(t_1 - t_2)}{2t_1 t_2 M} \left[ 1 + \sqrt{1 - \frac{4t_1 t_2 (t_1 + t_2) (K_1 - k_{12} + K_2 - k_{22})}{(t_1 - t_2)^2 J} + \frac{4t_1^2 t_2^2 (K_1 - k_{12} + K_2 - k_{22})^2}{(t_1 - t_2)^2 J^2}} \right] \quad (D-32)$$

En supposant  $K_1 = K_2 = K$  et  $k_{12} = k_{22} = k$ , on obtient les équations suivantes :

$$H_S^A + \frac{2(K + k)}{M} = -\frac{J}{M} \left( \frac{1}{t_1} + \frac{1}{t_2} \right) \quad \text{et} \quad H_S^B + \frac{2(K - k)}{M} = -\frac{J}{M} \left( \frac{1}{t_1} + \frac{1}{t_2} \right) \quad (D-33)$$

$$\text{dont la résolution donne} \quad k = \frac{M}{4} (H_{S_1} - H_{S_2}). \quad (D-34)$$

Ainsi, la mesure de la différence des champs de saturation suivant chaque axe facile nous renseigne approximativement sur la valeur de l'anisotropie d'ordre 2.



## Annexe E

# Transport tunnel polarisé en spin dans le système Fe/MgO/Fe : l'approche de Mathon et Umerski

Nous allons présenter le travail théorique réalisé par Mathon et Umerski [Mathon\_PRB63\_2001]. Ils ont calculé la conductance tunnel à partir de la formule de Kubo [Mathon\_PRB\_56\_1997], valable uniquement pour de faibles tensions appliquées (théorie de la réponse linéaire) et strictement équivalente à la formule de Landauer utilisée par Butler et ses collaborateurs et dont les résultats sont fortement similaires. Les figures E-1a, b et c présentent la conductance correspondant aux canaux majoritaire, minoritaire et antiparallèle respectivement, pour quatre plans atomiques de MgO. On retrouve le fait que la conductance parallèle soit concentrée autour du point  $\bar{\Gamma}$  et qu'elle soit dominée par le canal majoritaire, mais avec en plus quatre pics secondaires de conductance situés le long des lignes  $k_x=k_y$ . La conductance parallèle du canal minoritaire,  $G_{Pmin}$ , prend la forme d'un anneau autour du centre de zone et la conductance AP possède elle aussi les caractéristiques cumulées des deux canaux de la configuration P mais avec l'absence totale de conduction au point  $\bar{\Gamma}$ .

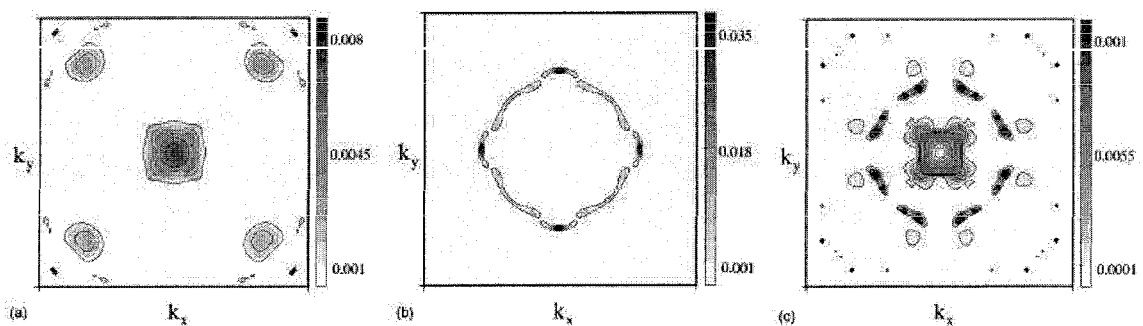


figure E-1

Distribution des conductances partielles dans la zone de Brillouin 2D pour une jonction avec quatre plans atomiques de MgO [Mathon\_PRB63\_2001] :

- a)  $G_{Pmaj}(k_{//})$
- b)  $G_{Pmin}(k_{//})$
- c)  $G_{AP}(k_{//})$ .

Lorsque l'épaisseur de MgO atteint dix plans atomiques (figure E-2), on a atteint le régime asymptotique :  $G_p$  est dominée par le canal majoritaire qui se concentre uniquement autour de  $\bar{\Gamma}$  et les conductances minoritaire et antiparallèle sont caractérisées par des anneaux très proches du point  $\bar{\Gamma}$  mais toujours avec un trou au centre de la zone de Brillouin. On peut comprendre ces particularités en comparant les densités spectrales des électrodes de Fe au niveau de Fermi avec la surface de Fermi complexe du MgO.

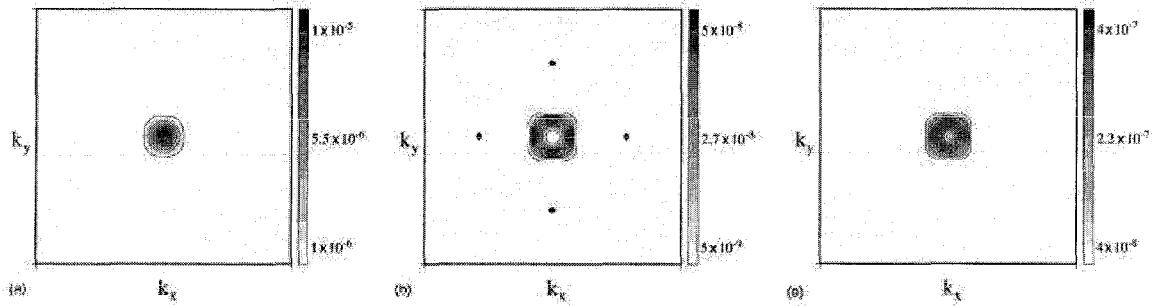


figure E-2

Distribution des conductances partielles dans la zone de Brillouin 2D pour une jonction avec dix plans atomiques de MgO [Mathon\_PRB63\_2001] :

- a)  $G_{Pmaj}(k_{||})$
- b)  $G_{Pmin}(k_{||})$
- c)  $G_{AP}(k_{||})$ .

La figure E-3a représente la distribution des  $\kappa_{min}$  vus au paragraphe IV.2. A chaque point  $(k_x, k_y)$  de la zone de Brillouin, Mathon et Umerski ont calculé  $\kappa_{min}$ . Les zones les plus claires correspondent ainsi à des endroits de transmission maximale. Les figures E-3b et c représentent les densités résolues en  $k_{||}$  des spins majoritaire et minoritaire pour la surface (001) de Fe. On remarque que la densité résolue en  $k_{||}$  du Fe majoritaire est globalement homogène, de sorte que la conductance associée (figure E-1a) présente strictement les mêmes caractéristiques que la surface de Fermi complexe : une conductance maximale concentrée en  $\bar{\Gamma}$  et quatre pics secondaires. En revanche, les maxima de la densité spectrale du Fe minoritaire se situent sur un anneau. Ni la forme de la surface de Fermi complexe ni la densité résolue en  $k_{||}$  ne peuvent expliquer la présence de ce « trou » dans la conductance au point  $\bar{\Gamma}$ . Pour cela, il faut s'appuyer sur l'étude de Butler et al. qui montre clairement que la conductance minoritaire (gouvernée par des états  $\Delta_5$ ) est extrêmement faible au point  $\bar{\Gamma}$ , pour des raisons liées à la symétrie cristalline [Butler\_PRB63\_2001a]. Lorsque l'épaisseur de MgO augmente, les différentes contributions situées loin du centre de la zone de Brillouin diminuent au profit du point central. Ceci permet de comprendre qualitativement les figures E-1 et E-2 ainsi que le passage du régime préasymptotique au régime asymptotique.

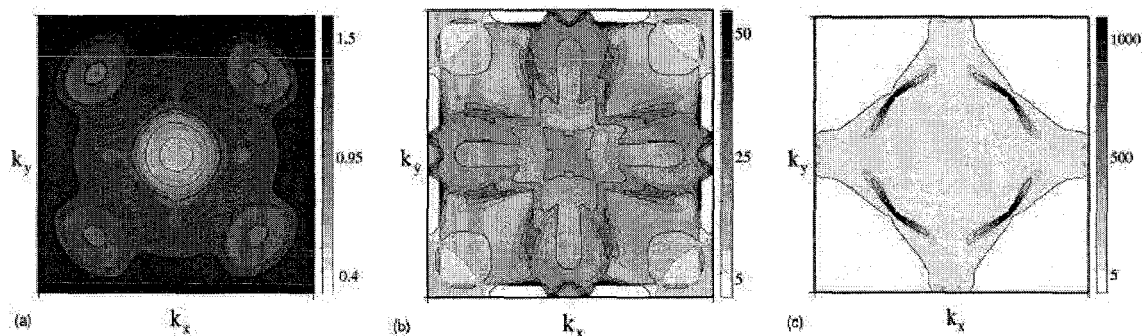


figure E-3

- a) Carte des  $\kappa_{\min}(k_{//})$  des électrons dans la barrière de MgO  
 b) Densité résolue en  $k_{//}$  du Fe majoritaire au niveau de Fermi  
 c) Densité résolue en  $k_{//}$  du Fe minoritaire au niveau de Fermi. [Mathon\_PRB63\_2001].

Le calcul de la magnétorésistance et les conductances surfaciques sont illustrés aux figures E-4a et b. La conductance majoritaire domine clairement le transport dans la configuration parallèle et diminue moins vite que les deux autres conductances ( $G_{\min}$  et  $G_{AP}$ ) lorsque l'épaisseur de MgO augmente. Mathon et Umerski associent ces taux de décroissance différents au fait que les trois conductances ne sont sans doute pas contrôlées par les mêmes mécanismes, comme cela a été montré par Butler et son équipe. La transition régime préasymptotique - régime asymptotique s'effectue pour environ sept plans de MgO (huit pour Butler et al.). Alors que dans la limite des grandes épaisseurs on observe bien l'augmentation de la TMR également prédite par Butler, le calcul effectué par Mathon et Umerski montre que cette dernière oscille étrangement en dessous de la limite asymptotique. Aucune explication qualitative n'est donnée. Les auteurs précisent seulement que pour les faibles épaisseurs d'isolant, le transport tunnel est gouverné par des états de résonance interfaciale comme cela est expliqué au paragraphe IV.5.

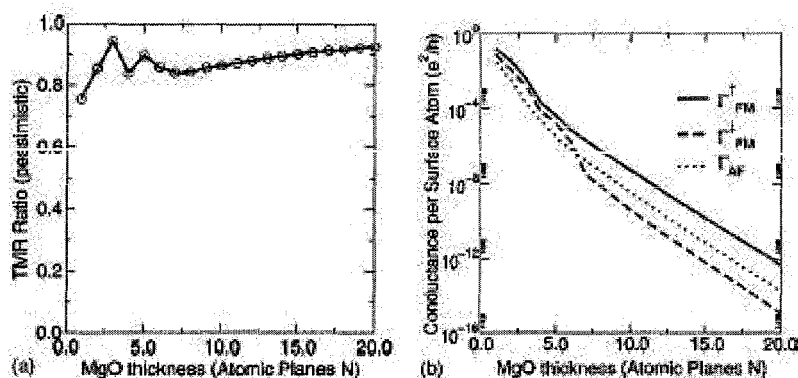


figure E-4

- a) Variation de la TMR en fonction de l'épaisseur de MgO  
 b) Variations des conductances  $G_{\text{pmaj}}$ ,  $G_{\text{pmin}}$  et  $G_{\text{AP}}$  en fonction de l'épaisseur de MgO. [Mathon\_PRB63\_2001].



## ANNEXE F

### Valeur de la résistance tunnel

Tous nos résultats magnétorésistifs ont été obtenus dans la gamme des épaisseurs intermédiaires c'est-à-dire lorsque la barrière tunnel a une épaisseur de l'ordre de la dizaine de plans atomiques (entre 20 et 30Å).

L'étude des effets de l'état de résonance nécessite sans aucun doute d'élaborer des JTM avec des barrières plus fines, notamment pour l'analyse du couplage par effet tunnel sous tension. Malheureusement, la résistance des jonctions devient alors très faible et des effets géométriques apparaissent ; les calculs montrent que cela nécessite une structuration des JTM par lithographie électronique, procédé autorisant la réalisation de structures d'une centaine de nanomètres contre 1µm au mieux pour la lithographie optique.

A l'inverse, lorsque la barrière a une épaisseur supérieure à 35Å, sa résistance est telle que nos appareils de mesures électriques ne sont pas assez sensibles pour détecter les courants (inférieurs au nA), ou alors nous mesurons des courbes I(V) fortement non linéaires mais aucune magnétorésistance.

#### Faibles épaisseurs de barrières

Les magnétorésistances mesurées peuvent être gravement modifiées par les distributions inhomogènes de courant. Ces phénomènes apparaissent quand la résistance des électrodes n'est pas négligeable devant celle de la jonction : ceci se produit pour de faibles épaisseurs de barrière et/ou de grandes tailles de jonction. Ils sont connus depuis longtemps [Pederson\_APL10\_1967] et ont été remis à l'ordre du jour par l'observation de fortes magnétorésistances tunnel [Miyazaki\_JMMM139\_1994] et de résistances négatives [Moodera\_APL69\_1996]. L'une des plus belles illustrations est donnée par Kamugai et ses collaborateurs [Kumagai\_JMMM166\_1997 ; Miyazaki\_JAP81\_1997] qui ont observé que la TMR mesurée sur des systèmes microscopiques était inférieure à celle de jonctions macroscopiques similaires.

Après l'étude analytique basée sur un modèle unidimensionnel faite par Pederson [Pederson\_APL10\_1967], van de Veerdonk et al ont résolu numériquement l'impact de tels effets en géométrie croix sur la TMR mesurée [Veerdonk\_APL71\_1997]. Leurs résultats montrent que les mesures électriques en mode quatre points ne sont fiables que lorsque le rapport

{résistance de la jonction / résistance de l'électrode} est typiquement supérieur à 10. Le lecteur pourra également se référer à la thèse de François Montaigne qui a pris en compte l'influence de la largeur de l'électrode et de la non-linéarité en tension du courant tunnel [Montaigne\_thèse\_1999 ; Montaigne\_JMMM217\_2000]. A titre d'exemple, la figure F-1 montre la distribution planaire du potentiel électrique pour une jonction de taille  $45 \times 65 \mu\text{m}^2$  et une électrode inférieure de taille  $200 \times 300 \mu\text{m}^2$ . Le calcul montre que plus la résistance de la jonction tunnel est faible, plus la résistance mesurée par une mesure à 4 points est grande. Par exemple, pour une résistance tunnel  $R_{\text{jonction}} = 0.1 \Omega$ , par l'effet de la distribution de la tension nous allons mesurer une résistance 25 fois plus importante ( $R_{\text{mesurée}} \approx 2.5 \Omega$ ). Ceci s'explique par la chute de tension dans l'électrode (figure F-1 : le courant effectue de larges boucles dans l'électrode inférieure qui contournent la jonction). En revanche, si la résistance réelle de la jonction devient plus importante, i.e.  $R_{\text{jonction}} \sim 100 \Omega$ , les effets de la distribution de courant seront négligeables et  $R_{\text{mesurée}}/R_{\text{jonction}} \approx 1$ .

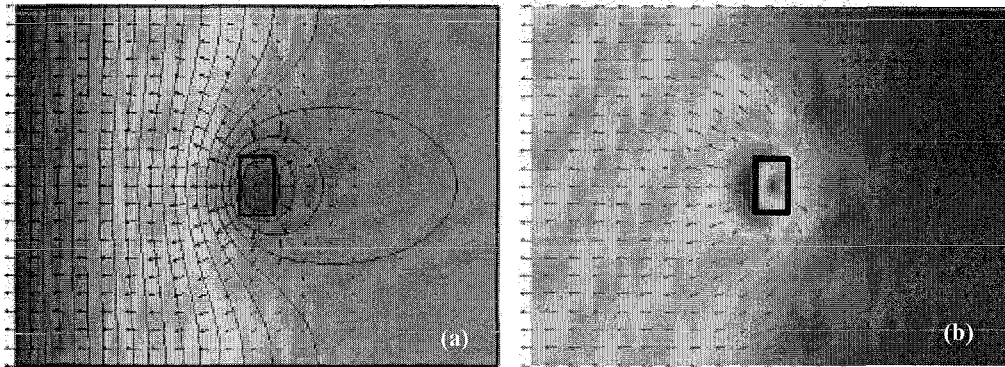


figure F-1  
a) Distribution de tension, superposée sur la vue de dessous de l'ensemble électrode-jonction tunnel. La couleur représentée sur une échelle rouge ( $V=1V$ )-bleu ( $V=0V$ ) est proportionnelle à l'amplitude du potentiel  $V(x,y)$ . Les courbes équipotentielles sont représentées en noir et les vecteurs point représentent la densité de courant  $j = -\text{grad}(V)$ .  
b) Distribution spatiale de la densité de courant, représentée sur une échelle rouge =  $j_{\text{max}}$  bleu =  $j_{\text{min}}$ .

L'intégration des JTM dans l'électronique de demain nécessite des résistances faibles, ce qui revient à utiliser des barrières de faibles épaisseurs. Mais, dans ce cas, les éventuels effets géométriques sont contrebalancés par la réduction de la taille des éléments (technologie  $0.13 \mu\text{m}$  actuellement et  $0.065 \mu\text{m}$  en 2005). En revanche, les jonctions élaborées dans notre laboratoire sont de grandes tailles latérales (typiquement  $20-100 \mu\text{m}$ ) et par conséquent, ces distributions de courant se font cruellement sentir. La résistance tunnel de jonctions Fe/MgO/Fe avec de faibles épaisseurs de barrière étant inférieure à la résistance des électrodes, les mesures en mode deux points noient le signal magnétorésistif de sorte que nous observons une très faible TMR. Ceci nous oblige à effectuer les mesures en mode quatre points, technique de mesure connue pour la manifestation d'effets géométriques. La figure F-2 montre l'inversion de magnétorésistance suivant le mode de mesure (deux ou quatre points) ainsi que l'influence de la taille de la jonction sur les résistances mesurées en mode quatre points.

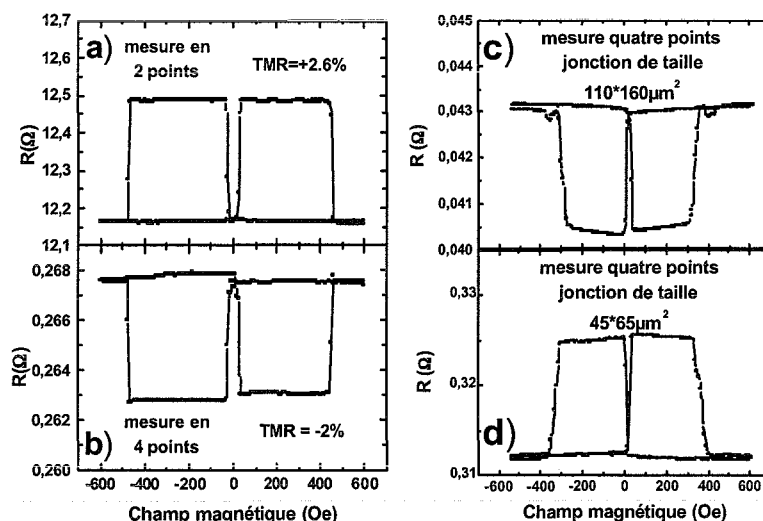


figure F-2

Effets géométriques pour une jonction avec 15Å de MgO sur une jonction de taille  $65 \times 95 \mu\text{m}^2$  ( $T = 293\text{K}$ ) :

a) mesure en mode quatre points.

b) mesure en mode deux points.

Effets géométriques pour une même jonction avec 15Å de MgO (mesures en mode quatre points,  $T = 293\text{K}$ ) :

c) jonction de taille  $110 \times 160 \mu\text{m}^2$ .

d) jonction de taille  $45 \times 65 \mu\text{m}^2$ .

L'acquisition récente de masques permettant la définition de jonctions de taille micrométrique, l'optimisation du procédé par l'utilisation d'une birésine (LOR3A + S1813) et l'amélioration des étapes critiques de lithographie devraient permettre la structuration et la mesure de JTM ayant de faibles épaisseurs de barrière. Bien que les effets magnétorésistifs impressionnants ne soient prévus que dans le cas de barrières épaisses, le transport au travers d'une tricouche Fe/MgO(fin)/Fe recèle sans aucun doute des trésors de résultats magnétorésistifs, notamment par la présence démontrée d'états de résonance interfaciale.

## Fortes épaisseurs

Nous avons signalé les problèmes de court-circuit, ou tout au moins de résistance parasite, au niveau des bords de l'électrode inférieure suite au dépôt de  $\text{SiO}_2$  par plasma réactif. La valeur de cette résistance parasite est impossible à estimer, cependant il est clair que lorsque la résistance de MgO devient supérieure à cette résistance, les électrons préfèrent emprunter le chemin le moins résistif et ignorent donc pour la plupart la barrière tunnel, ce qui détruit fortement tout effet magnétorésistif. Le  $\text{SiO}_2$  étant un isolant, nous obtenons des courbes  $I(V)$  fortement non linéaires (figure F-3) mais ce canal de conduction étant non magnétique (les électrodes de contact sont en aluminium), ces jonctions présentent une très faible TMR (inférieure au pour-cent). A l'heure actuelle, bien que les solutions envisagées aient permis de résoudre bon nombre de problèmes de court-circuit augmentant ainsi la reproductibilité des résultats, elles ne sont pas efficaces à 100% ce qui explique le manque d'échantillons avec de fortes épaisseurs de MgO.

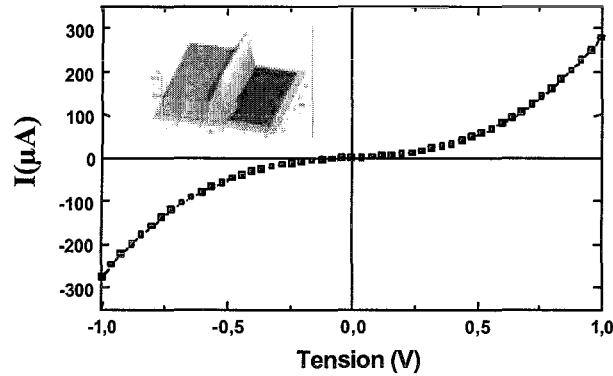


figure F-3  
Courbe  $I(V)$  pour une jonction  $\text{Fe}/\text{MgO}(40\text{\AA})/\text{Fe}$ . La courbe est fortement non-linéaire mais aucune magnétorésistance n'est observée, preuve d'un transport tunnel non dépendant du spin.  
En insert : image AFM d'un défaut en bord d'électrode (voir partie II.4) fragilisant le dépôt isolant en  $\text{SiO}_2$ .

## Épaisseurs intermédiaires

Le régime des épaisseurs intermédiaires est le régime que nous avons le plus étudié. D'une part les résistances dans ce régime sont suffisamment grandes pour éviter tout effet géométrique pour les tailles de nos jonctions lithographiées et d'autre part, elles sont inférieures aux éventuelles résistances parasites (quand elles existent) de sorte que les électrons préfèrent passer par la barrière tunnel. La deuxième raison concerne l'étude minutieuse que nous avons réalisée dans cette gamme d'épaisseur après la mise en évidence d'un état de résonance interfaciale. La figure F-4 représente les produits « Résistance parallèle  $\times$  Aire de la jonction » ( $R \times A$ ) pour ce régime qui s'étend de  $25\text{\AA}$  à  $35\text{\AA}$ . Les points qui sont tracés correspondent uniquement aux jonctions pour lesquelles la résistance suit la loi attendue en  $1/A$  : c'est le critère nous assurant qu'aucun effet parasite n'intervient dans les mesures. Ainsi, pour de telles jonctions, à une même épaisseur de  $\text{MgO}$  devrait correspondre une même valeur  $R \times A$ , ce qui n'est pas le cas. Nous avons attribué cette dispersion de résultats à une contamination plus ou moins importante en carbone au niveau de l'interface inférieure, en accord avec les analyses chimiques (chapitre II) et les calculs théoriques (chapitre IV).

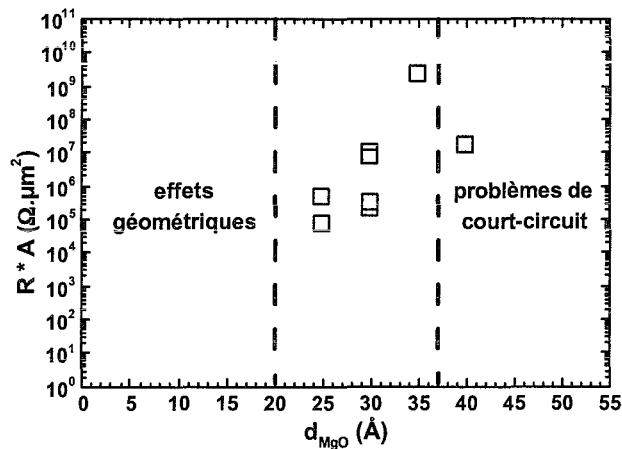


figure F-4  
Evolution du produit « Résistance  $\times$  Aire » des jonctions pour lesquelles la résistance suit la loi attendue en  $1/A$ .



# Références

- [Åkerman\_APL79\_2001] *Tunneling criteria for magnetic-insulator-magnetic structures*  
J. J. Åkerman, J. M. Slaughter, R. W. Dave et I. K. Schuller  
Appl. Phys. Lett. **79**, 3104 (2001)
- [Bardeen\_PRL6\_1961] *Tunnelling from a many-particle point of view*  
J. Bardeen  
Phys. Rev. Lett. **6**, 57 (1961)
- [Bardou\_EPL39\_1997] *Rare events in quantum tunneling*  
F. Bardou  
Europhys. Lett. **39**, 239 (1997)
- [Berkopec\_ER68\_2001] *Dielectric breakdown model in homogenous media using adaptable computational mesh*  
A. Berkopec, V. Valencic  
Electrotechnical Rev. **68**, 260 (2001)
- [Binning\_PRL56\_1986] *Atomic Force Microscope*  
G. Binning, C. F. Quate, et Ch. Gerber  
Phys. Rev. Lett. **56**, 930 (1986)
- [Bischoff\_PRB68\_2003] *Local electronic structure of Fe(001) surfaces studied by scanning tunneling spectroscopy*  
M. M. J. Bischoff, T. K. Yamada, C. M. Fang, R. A. de Groot, et H. van Kempen  
Phys. Rev. B **68**, 045422 (2003)
- [Bischoff\_PRL86\_2001] *Influence of Impurities on Localized Transition Metal Surface States: Scanning Tunneling Spectroscopy on V(001)*  
M. M. J. Bischoff, C. Konvicka, A. J. Quinn, M. Schmid, J. Redinger, R. Podloucky, P. Varga, et H. van Kempen  
Phys. Rev. Lett. **86**, 2396 (2001)
- [Boubeta\_JPCM15\_2003] *Epitaxy, magnetic and tunnel properties of transition metal/MgO(001) heterostructures*  
C. Martínez Boubeta, J L Costa-Krämer et A Cebollada  
J. Phys. Condens. Matter **15**, R1123 (2003)
- [Bowen\_APL79\_2001] *Large magnetoresistance in Fe/MgO/FeCo(001) epitaxial tunnel junctions on GaAs(001)*  
M. Bowen, V. Cros, F. Petroff, A. Fert, C. Martínez Boubeta, J. L. Costa-Krämer, J. V. Anguita, A. Cebollada, F. Briones, J. M. de Teresa, L. Morellón, M. R. Ibarra, F. Güell, F. Peiró, et A. Cornet  
Appl. Phys. Lett. **79**, 1655 (2001)
- [Bowen\_thèse\_2003] *Experimental Insights into Spin-Polarized Solid State Tunneling*  
M. Bowen  
Thèse de l'Université Paris XI, Orsay (2003)
- [Braun\_1999] *Applied RHEED, Reflection High Energy Electron Diffraction during Crystal Growth*  
W. Braun  
Springer Verlag (1999)
- [Brinkman\_JAP41\_1970] *Tunneling Conductance of Asymmetrical Barriers*  
W. F. Brinkman, R. C. Dynes, et J. M. Rowell  
J. Appl. Phys. **41**, 1915 (1970)
- [Bruce\_PMA40\_1979] *Interlayer exchange coupling*  
L. A. Bruce et H. Jaeger  
Philos. Mag. A **40**, 97 (1979)
- [Bruno\_JMMM121\_1993] *Interlayer exchange coupling : a unified physical picture*  
P. Bruno  
J. Magn. Magn. Matter. **121**, 248 (1993)
- [Bruno\_PRB49\_1994] *Theory of intrinsic and thermally induced interlayer magnetic coupling between ferromagnetic films separated by an insulating layer*  
P. Bruno  
Phys. Rev. B **49**, 13231 (1994)

- [Bruno\_PRB52\_1995] *Theory of interlayer magnetic coupling*  
P. Bruno  
Phys. Rev. B **52**, 411 (1995)
- [Bürgler\_PRB56\_1997] *Optimized epitaxial growth of Fe on Ag(001)*  
D. E. Bürgler, C. M. Schmidt, D. M. Schaller, F. Meisinger, R. Hofer, et H.-J. Güntherodt  
Phys. Rev. B **56**, 4149 (1997)
- [Butler\_JAP81\_1997] *Electronic structure of FM/semiconductor/FM spin tunneling structures*  
W. H. Butler, X.-G. Zhang, and Xindong Wang, Jan van Ek et J. M. MacLaren  
J. Appl. Phys. **81**, 5518 (1997)
- [Butler\_PRB63\_2001a] *Spin-dependent tunneling conductance of Fe/MgO/Fe sandwiches*  
W. H. Butler, X.-G. Zhang, T. C. Schulthess, et J. M. MacLaren  
Phys. Rev. B **63**, 054416 (2001)
- [Butler\_PRB63\_2001b] *Reduction of electron tunneling current due to lateral variation of the wave function*  
W. H. Butler, X.-G. Zhang, T. C. Schulthess, et J. M. MacLaren  
Phys. Rev. B **63**, 092402 (2001)
- [Callaway\_PRB16\_1977] *Energy bands in ferromagnetic iron*  
J. Callaway et C. S. Wang  
Phys. Rev. B **16**, 2095 (1977)
- [Caroli\_JPC4\_1971] C. Caroli, R. Combescot, P. Nozières, et D. Saint-James  
J. Phys. C : Solid State Phys. **4**, 916 (1971)
- [Childress\_JMMM130\_1994] *Magnetic properties and domain structure of epitaxial (001) Fe/Pd superlattices*  
J. R. Childress, R. Kergoat, O. Durand, J. -M. George, P. Galtier, J. Miltat et A. Schuhl  
J. Magn. Magn. Matter. **130**, 13 (1994)
- [Coerhoon\_1999] *Novel magnetoelectronic Materials and Devices*  
R. Coerhoon  
Lecture Notes (1999-2000)
- [Costa-Krämer\_JMMM210\_2000] *Magnetization reversal asymmetry in Fe/MgO(001) thin films*  
J.L. Costa-Krämer, J.L. Menendez, A. Cebollada, F. Briones, D. Garcia et A. Hernando  
J. Magn. Magn. Matter. **210**, 341 (2000)
- [Cowache\_IEEE34\_1998] *Spin-valve structures with NiO pinning layers*  
C. Cowache, B. Dieny, S. Auffret, M. Cartier, R. H. Taylor, R. O'Barr, et S. Y. Yamamoto  
IEEE-Trans. Magn. **34**, 843 (1998)
- [Cracknell\_1975] *Group Theory in Solid-State Physics*  
A.P. Cracknell  
Taylor & Francis Ltd (1975)
- [Daughton\_IEEE30\_1994] *Magnetic Field Sensors Using GMR Multilayer*  
J. Daughton, J. Brown, E. Chen, R. Beech, A. Pohm et W. Kude  
IEEE-Trans. Magn. **30**, 4608 (1994)
- [Davis\_JAP87\_2000] *Spin dependent tunneling at finite bias*  
A. H. Davis et J. M. MacLaren  
J. Appl. Phys. **87**, 5224 (2000)
- [Dederichs\_JMMM240\_2002] *Importance of complex band structure and resonant states for tunneling*  
P.H. Dederichs, Ph. Mavropoulos, O. Wunnicke, N. Papanikolaou, V. Bellini, R. Zeller, V. Drchal, et J. Kudrnovský  
J. Magn. Magn. Matter. **240**, 108 (2002)
- [Demokritov\_PRB49\_1994] *Magnetic-dipole mechanism for biquadratic interlayer coupling*  
S. Demokritov, E. Tsymbal, P. Grünberg, W. Zinn, et I. K. Schuller  
Phys. Rev. B **49**, 720 (1994)
- [DeTeresa\_PRL82\_1999] *Inverse Tunnel Magnetoresistance in  $\text{Co}_y\text{SrTiO}_3\text{yLa}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  : New Ideas on Spin-Polarized Tunneling*  
J. M. De Teresa, A. Barthélémy, A. Fert, J. P. Contour, R. Lyonnet, F. Montaigne, P. Seneor, et A. Vaurès  
Phys. Rev. Lett. **82**, 4288 (1999)
- [Desjonquères\_1995] *Concepts in Surface Physics*  
M.-C. Desjonquères et D. Spanjaard, Springer Verlag (1995)

- [Ding\_PRL90\_2003] *Absence of Zero-Bias Anomaly in Spin-Polarized Vacuum Tunneling in Co(0001)*  
H. F. Ding, W. Wulfhekkel, J. Henk, P. Bruno, et J. Kirschner  
Phys. Rev. Lett. **90**, 116603 (2003)
- [Dulot\_SS473\_2001] *(001) V surface structures analysed by RHEED and STM*  
F. Dulot, P. Turban, B. Kieren, J. Eugène, M. Alnot et S. Andrieu  
Surf. Sci. **473**, 172 (2001)
- [Duke\_1969] *Tunneling in Solids*  
C. B. Duke  
Academic New-York (1969)
- [duTrémolet-deLacheisserie\_1999] *Magnétisme (2 tomes)*  
M. Cyrot, M. Décorps, B. Dieny, O. Geoffroy, D. Gignoux, C. Lacroix, J. Laforest, P. Lethuillier, P. Molho, J.-C. Peuzin, J. Pierre, J.-L. Porteseil, P. Rochette, M.-F. Rossignol, M. Schlenker, C. Segebarth, Y. Souche, E. du Trémolet de Lacheisserie, J.-P. Yonnet  
Presses Universitaires de Grenoble (1999)
- [Dynna\_JAP80\_1996] *A low-energy electron diffraction investigation of the surface deformation induced by misfit dislocations in thin MgO films grown on Fe(001)*  
M. Dynna, J. L. Vassent, A. Marty, et B. Gilles  
J. Appl. Phys. **80**, 2650 (1996)
- [Ehrlich\_JCP44\_1966] G. Ehrlich et F. G. Hudda  
J. Chem. Phys. **44** 1039 (1966)
- [Etienne\_JCG111\_1991] *Molecular beam epitaxial growth of Cr/Fe, Ag/Fe, Ag/Cr and Ag/Co superlattices on MgO (001) substrates*  
P. Etienne, J. Massies, S. Lequien, R. Cabanel, et F. Petroff  
J. Crystal Growth **111**, 1003 (1991)
- [Faure-Vincent\_DEA\_2001] *Elaboration et caractérisation structurale des jonctions Fe/MgO/Fe*  
J. Faure-Vincent  
DEA de l'Institut National Polytechnique de Lorraine (2001)
- [Faure-Vincent\_APL82\_2003] *High tunnel magnetoresistance in epitaxial Fe/MgO/Fe tunnel junctions*  
J. Faure-Vincent, C. Tiusan, E. Jouguelet, F. Canet, M. Sajieddine, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, et A. Schuhl  
Appl. Phys. Lett. **82**, 4507 (2003)
- [Faure-Vincent\_PRL89\_2002] *Interlayer Magnetic Coupling Interactions of Two Ferromagnetic Layers by Spin Polarized Tunneling*  
J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, et A. Schuhl  
Phys. Rev. Lett. **89**, 107206 (2002)
- [Fischer\_thèse\_1995] *Elaboration et propriétés physiques de superréseaux à base de manganèse*  
H. Fischer  
Thèse de l'Université H. Poincaré, Nancy I (1995)
- [Fischer\_PRB57\_1998] *Fundamental magnetization processes in nanoscaled composite permanent magnets*  
R. Fischer, T. Leineweber, et H. Kronmüller  
Phys. Rev. B **57**, 10723 (1998)
- [Freyss\_PRB66\_2002] *Electronic structure of Fe/semiconductor/Fe(001) tunnel junctions*  
M. Freyss, N. Papanikolaou, V. Bellini, R. Zeller, et P. H. Dederichs  
Phys. Rev. B **66**, 014445 (2002)
- [Fruchart\_thèse\_1998] *Elaboration, étude et modélisation d'un système magnétique modèle : réseaux de plots sub-microniques ultraminces de Fe (110) epitaxié à anisotropie planaire*  
O. Fruchart  
Thèse de l'Université J. Fourier, Grenoble (1998)
- [Fullerton\_JMMM117\_1992] *Non-oscillatory antiferromagnetic coupling in sputtered Fe/Si superlattices*  
E. Fullerton, J. E. Mattson, S. R. Lee, C. H. Sowers, Y. Y. Huang, G. Felcher, S. D. Bader et F. T. Parker  
J. Magn. Magn. Matter. **117**, L301 (1992)
- [Fullerton\_JMMM200\_1999] *Hard/soft magnetic heterostructures : model exchange-spring magnets*  
E. Fullerton, J. S. Jiang et S. D. Bader  
J. Magn. Magn. Matter. **200**, 392 (1999)

- [Gareev\_JMMM240\_2002] *Very strong interlayer exchange coupling in epitaxial Fe/Fe<sub>1-x</sub>Si<sub>x</sub>/Fe trilayers (x=0.4–1.0)*  
R. R. Gareev, D. E. Bürgler, M. Buchmeier, R. Schreiber et P. Grünberg  
J. Magn. Magn. Matter. **240**, 235 (2002)
- [Gehanno\_JMMM188\_1998] *Structural and magnetic properties of epitaxial Fe<sub>0.5</sub>Pd<sub>0.5</sub> thin films studied by Mössbauer spectroscopy*  
V. Gehanno, P. Auric, A. Marty et B. Gilles  
J. Magn. Magn. Matter. **188**, 310-318 (1998)
- [Gewinner\_PRL43\_1979] *Evidence for a Clean ( $\sqrt{2}\times\sqrt{2}$ )R 45° Surface Structure on Cr(100)*  
G. Gewinner, J. C. Peruchetti, A. Jaegle, et R. Riedinger  
Phys. Rev. Lett. **43**, 935 (1979)
- [Goto\_JAP36\_1965] *Magnetization and Switching Characteristics of Composite Thin Magnetic Films*  
E. Goto, N. Hayashi, T. Miyashita, et K. Nakagawa  
J. Appl. Phys. **36**, 2951 (1965)
- [Graat\_ASS100\_1996] *Simultaneous determination of composition and thickness of thin iron-oxide films from XPS Fe 2p spectra*  
P. C. J. Graat et M. A. J. Somers  
Appl. Surf. Sci. **100**, 36 (1996)
- [Grünberg\_JMMM107\_1992] *Interlayer exchange, magnetotransport and magnetic domains in Fe/Cr layered structures*  
P. Grünberg, S. Demokritov, A. Fuss, R. Schreiber, J. A. Wolf et S. T. Purcell  
J. Magn. Magn. Matter. **104**, 1734 (1992)
- [Grünberg\_PRL57\_1986] *Layered Magnetic Structures : Evidence for Antiferromagnetic Coupling of Fe Layers across Cr Interlayers*  
P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky, et H. Sowers  
Phys. Rev. Lett. **57**, 2442 (1986)
- [Gustavsson\_PRB64\_2001] *Structural and transport properties of epitaxial Fe/ZnSe/FeCo magnetic tunnel junctions*  
F. Gustavsson, J.-M. George, V. H. Etgens, et M. Eddrief  
Phys. Rev. B. **64**, 184422 (2001)
- [Guzdar\_APL71\_1997] *Charging of substrates irradiated by particle beams*  
P. N. Guzdar, A. S. Sharma, et S. K. Guharay  
Appl. Phys. Lett. **71**, 3302 (1997)
- [Harris\_SSL108\_1981] *Comments on « red intensity oscillations during MBE of GaAs »*  
J. J. Harris et B. A. Joyce, et P. J. Dobson  
Surf. Sci. Lett. **108**, L444 (1981)
- [Heide\_PRB59\_1999] *Spin-polarized tunnel current in magnetic-layer systems and its relation to the interlayer exchange interaction*  
C. Heide, R. J. Elliott, et N. S. Wingreen  
Phys. Rev. B **59**, 4287 (1999)
- [Heine\_SS2\_1964] *Some theory about surface states*  
V. Heine  
Surf. Sci. **2**, 1 (1964)
- [Heinrich\_JAP70\_1991] *Magnetic anisotropies in single and multilayered structures*  
B. Heinrich, Z. Celinski, J. F. Cochran, A. S. Arrott, et K. Myrtle  
J. Appl. Phys. **70**, 5769 (1991)
- [Heinrich\_PRL59\_1987] *Ferromagnetic-resonance study of ultrathin bcc Fe(100) films grown epitaxially on fcc Ag(100) substrates*  
B. Heinrich, K. B. Urquhart, A. S. Arrott, J. F. Cochran, K. Myrtle, et S. T. Purcell  
Phys. Rev. Lett. **59**, 1756 (1987)
- [Herman\_2004] *Epitaxy : Physical Principles and Technical Implementation*  
M.A. Herman, W. Richter, et H. Sitter  
Springer Verlag (2004)
- [Hicken\_PRB55\_1997] *Magnetic anisotropy in ultrathin epitaxial Fe/Ag(100) films with overlayers*  
R. J. Hicken, S. J. Gray, A. Ercole, C. Daboo, D. J. Freeland, E. Gu, E. Ahmad, et J. A. C. Bland  
Phys. Rev. B **55**, 5898 (1997)

- [Itoh\_JPSJ68\_1999] H. Itoh, A. Shibata, T. Kumazaki, J. Inoue, et S. Maekawa  
J. Phys. Soc. Jap. **68**, 5 (1999)
- [Jansen\_PRB61\_2000] *Magnetoresistance in doped magnetic tunnel junctions : Effect of spin scattering and impurity-assisted transport*  
R. Jansen et J. S. Moodera  
Phys. Rev. B **61**, 9047-9050 (2000)
- [Jiang\_APL83\_2003] *Magnetic tunnel junctions with ZnSe barriers*  
X. Jiang, A. F. Panchula, et S. S. P. Parkin  
Appl. Phys. Lett. **83**, 5244 (2003)
- [Jullière\_PL54\_1975] *Tunneling between ferromagnetic films*  
M. Jullière  
Phys. Lett. **A54**, 225 (1975)
- [Kanaji\_TSF32\_1976] *Auger and loss spectroscopy study of surface ace contamination effect on the growth mode of iron epitaxial films on MgO(001)*  
T. Kanaji, T. Kagotani, et S. Nagata  
Thin Solid Films **32**, 217 (1976)
- [Kanaji\_V23\_1973] *Behaviour of impurity atoms and adsorbed oxygen atoms on (001) face of iron epitaxial film*  
T. Kanaji, K. Asano, et S. Nagata  
Vacuum **23**, 55 (1973)
- [Kasuya\_PTP16\_1956] T. Kasuya  
Prog. Theor. Phys. **16**, 45 (1956)
- [Keavney\_JAP81\_1996] *Perpendicular conductance and magnetic coupling in epitaxial Fe/MgO/Fe(100) trilayers*  
D. J. Keavney, E. E. Fullerton, et S. D. Bader  
J. Appl. Phys. **81**, 795 (1996)
- [Keldysh\_SPJETP20\_1965] L. V. Keldysh  
Sov. Phys. JETP **20**, 1307 (1965)
- [Kim\_PRB54\_1996] *Ultrathin films of cobalt on Fe(001) and the effect of oxygen*  
S. K. Kim, C. Petersen, F. Jona, et P. M. Marcus  
Phys. Rev. B **54**, 2184 (1996)
- [Kittel\_1985] *Physique de l'état solide*  
C. Kittel  
Dunod Université, 5<sup>e</sup> édition (1985)
- [Klaua\_PRB64\_2001] *Growth, structure, electronic, and magnetic properties of MgO/Fe(001) bilayers and Fe/MgO/Fe(001) trilayers*  
M. Klaua, D. Ullmann, J. Barthel, W. Wulfhekkel, and J. Kirschner, R. Urban, T. L. Monchesky, A. Enders, J. F. Cochran, et B. Heinrich  
Phys. Rev. B. **64**, 134411 (2001)
- [Lang\_PRB52\_1995] *Resistance of atomic wires*  
N. D. Lang  
Phys. Rev. B **52**, 5335 (1995)
- [Kumagai\_JMMM166\_1997] *Spin tunneling magnetoresistance in NiFe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co junctions with reduced dimensions formed using photolithography*  
S. Kumagai, T. Yaoi et T. Miyazaki  
J. Magn. Magn. Mat. **166**, 71 (1997)
- [LeClair\_PRL84\_2000] *Apparent Spin Polarization Decay in Cu-Dusted Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co Tunnel Junctions*  
P. LeClair, H. J. M. Swagten, J. T. Kohlhepp, R. J. M. van de Veerdonk, et W. J. M. de Jonge  
Phys. Rev. Lett. **84**, 2933 (2000)
- [LeClair\_PRL86\_2001] *Interfacial Density of States in Magnetic Tunnel Junctions*  
P. LeClair, J. T. Kohlhepp, H. J. M. Swagten, et W. J. M. de Jonge  
Phys. Rev. Lett. **86**, 1066 (2001)
- [LeClair\_PRL88\_2002] *Band Structure and Density of States Effects in Co-Based Magnetic Tunnel Junctions*  
P. LeClair, J. T. Kohlhepp, C. H. van de Vin, H. Wieldraaijer, H. J. M. Swagten, W. J. M. de Jonge, A. H. Davis, J. M. MacLaren, J. S. Moodera, et R. Jansen  
Phys. Rev. Lett. **88**, 107201 (2002)

- [MacLaren\_PRB56\_1997] *Validity of the Julliere model of spin-dependent tunneling*  
J. M. MacLaren, X.-G. Zhang, et W. H. Butler  
Phys. Rev. B. **56**, 11827 (1997)
- [MacLaren\_PRB59\_1999] *Layer KKR approach to Bloch-wave transmission and reflection : Application to spin-dependent tunneling*  
J. M. MacLaren, X.-G. Zhang, W. H. Butler, et X. Wang  
Phys. Rev. B **59**, 5470 (1999)
- [Mathon\_PRB56\_1997] *Tight-binding theory of tunneling giant magnetoresistance*  
J. Mathon  
Phys. Rev. B **56**, 11810 (1997)
- [Mathon\_PRB63\_2001] *Theory of tunneling magnetoresistance of an epitaxial Fe/MgO/Fe(001) junction*  
J. Mathon et A. Umerski  
Phys. Rev. B **63**, 220403 (2001)
- [Mavropoulos\_PRL85\_2000] *Complex Band Structure and Tunneling through Ferromagnet /Insulator /Ferromagnet Junctions*  
Ph. Mavropoulos, N. Papanikolaou, et P. H. Dederichs  
Phys. Rev. Lett. **85**, 1088 (2000)
- [McGuire\_1979] *Auger Electron Spectroscopy Reference Manual*  
G.E. McGuire  
Plenum Press, New York (1979)
- [Meyerheim\_PRL87\_2001] *Geometrical and Compositional Structure at Metal-Oxide Interfaces : MgO on Fe(001)*  
H. L. Meyerheim, R. Popescu, J. Kirschner, N. Jedrecy, M. Sauvage-Simkin, B. Heinrich, et R. Pinchaux  
Phys. Rev. Lett. **87**, 076102 (2001)
- [Mitani\_JAP91\_2002] *Structure and tunnel magnetoresistance in Fe/MgF<sub>2</sub>/Co junctions with an oxide seed layer on an Fe bottom electrode*  
S. Mitani, T. Moriyama, et K. Takanashi  
J. Appl. Phys. **91**, 7200 (2002)
- [Mitani\_JAP93\_2003] *Fe/MgO/FeCo(100) epitaxial magnetic tunnel junctions prepared by using in situ plasma oxidation*  
S. Mitani, T. Moriyama, et K. Takanashi  
J. Appl. Phys. **93**, 8041 (2003)
- [Miyazaki\_JAP81\_1997] *Spin tunneling in Ni--Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co junction devices*  
T. Miyazaki, S. Kumagai, et T. Yaoi  
J. Appl. Phys. **81**, 3753 (1997)
- [Miyazaki\_JMMM139\_1995] *Giant magnetic tunneling effect in Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Fe junction*  
T. Miyazaki et N. Tezuka  
J. Magn. Magn. Mat. **139**, L231 (1995)
- [Moodera\_APL69\_1996] *Geometrically enhanced magnetoresistance in ferromagnet-insulator-ferromagnet tunnel junctions*  
J. S. Moodera, L. R. Kinder, J. Nowak, P. LeClair, et R. Meservey  
Appl. Phys. Lett. **69**, 708 (1996)
- [Moodera\_PRL80\_1998] *Interface Magnetism and Spin Wave Scattering in Ferromagnet-Insulator-Ferromagnet Tunnel Junctions*  
J. S. Moodera, J. Nowak, et R. J. M. van de Veerdonk  
Phys. Rev. Lett. **80**, 2941 (1998)
- [Montaigne\_JMMM217\_2000] *Current distribution effects in patterned non-linear magnetoresistive tunnel junctions*  
F. Montaigne, F. Nguyen Van Dau et A. Schuhl  
J. Magn. Magn. Mat. **217**, 231 (2000)
- [Montaigne\_PRB64\_2001] *Tunnel barrier parameters and magnetoresistance in the parabolic band model*  
F. Montaigne, M. Héhn, et A. Schuhl  
Phys. Rev. B **64**, 144402 (2001)
- [Montaigne\_thèse\_1999] *Effet tunnel dépendant du spin : des simples aux doubles jonctions*  
F. Montaigne  
Thèse de l'Université de Paris VII (1999)
- [Moruzzi\_1978] *Calculated Electronic Properties of Metals*  
V. L. Moruzzi, J. F. Janak, et A. R. Williams  
Pergamon, New York (1978)

- [Mougin\_thèse\_1999] *Nanosystèmes magnétostrictifs de type TRFe<sub>2</sub>(110) (TR=Terre Rare) : croissance, morphologie et propriétés magnétiques*  
A. Mougin  
Thèse de l'Université H. Poincaré, Nancy I (1999)
- [Nagahama\_APL79\_2001] *Quantum-well effect in magnetic tunnel junctions with ultrathin single-crystal Fe(100) electrodes*  
T. Nagahama, S. Yuasa, Y. Suzuki, et E. Tamura  
Appl. Phys. Lett. **79**, 4381 (2001)
- [Néel\_CRAS255\_1962] *Sur un nouveau mode de couplage entre les aimantations de deux couches minces ferromagnétiques*  
L. Néel  
C. R. Hebd. Séances Acad. Sci. **255**, 1676 (1962)
- [Oleinik\_PRB62\_2000] *Structural and electronic properties of Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co magnetic tunnel junction from first principles*  
I. I. Oleinik, E. Yu. Tsybal, et D. G. Pettifor  
Phys. Rev. B **62**, 3952 (2000)
- [Oleinik\_PRB65\_2001] *Atomic and electronic structure of Co/SrTiO<sub>3</sub>/Co magnetic tunnel junctions*  
I. I. Oleinik, E. Y. Tsybal, et D. G. Pettifor  
Phys. Rev. B **65**, 020401 (2002)
- [Oka\_JJAP\_2002] *Atomic Scale Observation of Domain Boundaries on c(2 x 2) Fe(001) Thin Film Surfaces*  
H. Oka, A. Subagyo, M. Sawamura, K. Sueoka, et K. Mukasa  
Jpn. J. Appl. Phys. **41**, 4969 (2002)
- [Papanikolaou\_PRB62\_2000] *Scanning tunneling spectra of impurities in the Fe(001) surface*  
N. Papanikolaou, B. Nonas, S. Heinze, R. Zeller, et P. H. Dederichs  
Phys. Rev. B **62**, 11118 (2000)
- [Park\_APL66\_1995] *Growth-induced uniaxial in-plane magnetic anisotropy for ultrathin Fe deposited on MgO(001) by oblique-incidence molecular beam epitaxy*  
Yongsup Park, Eric E. Fullerton, et S. D. Bader  
Appl. Phys. Lett. **66**, 2140 (1995)
- [Parkin\_PRB44\_1991] *Spin engineering : Direct determination of the Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida far-field range function in ruthenium*  
S. S. P. Parkin et D. Mauri  
Phys. Rev. B **44**, 7131 (1991)
- [Parkin\_PRL64\_1990] *Oscillations in exchange coupling and magnetoresistance in metallic superlattice structures : Co/Ru, Co/Cr, and Fe/Cr*  
S. S. P. Parkin, N. More, et K. P. Roche  
Phys. Rev. Lett. **64**, 2304 (1990)
- [Parkin\_PRL67\_1991] *Systematic variation of the strength and oscillation period of indirect magnetic exchange coupling through the 3d, 4d, and 5d transition metals*  
S. S. P. Parkin  
Phys. Rev. Lett. **67**, 3598 (1991)
- [Pederson\_APL10\_1967] *Effect of film resistance on low-impedance tunneling measurements*  
R. Pederson, et F. Vernon  
Appl. Phys. Lett. **10** (1), 29 (1967)
- [Persat\_JMMM165\_1997] *Domain-phase transformations in antiferromagnetically coupled Co/Cu sandwiches*  
N. Persat, H. A. M. van den Berg et A. Dinia  
J. Magn. Magn. Mat. **165**, 446 (1997)
- [Popova\_APL81\_2002] *Epitaxial MgO layer for low-resistance and coupling-free magnetic tunnel junctions*  
E. Popova J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, H. Fischer, M. Hehn, F. Montaigne, M. Alnot, S. Andrieu, et A. Schuhl  
Appl. Phys. Lett. **81**, 1035 (2002)
- [Prinz\_JMMM200\_1999] *Magneto-electronics applications*  
G. A. Prinz  
J. Magn. Magn. Mat. **200**, 57 (1999)

- [Rickart\_SS495\_2001] *Morphology of epitaxial metallic layers on MgO substrates: influence of submonolayer carbon contamination*  
M. Rickart, B. F. P. Roos, T. Mewes, J. Jorzick, S. O. Demokritov et B. Hillebrands  
Surf. Sci. **495**, 68 (2001)
- [Ruderman\_PR96\_1954] *Indirect Exchange Coupling of Nuclear Magnetic Moments by Conduction Electrons*  
M. A. Ruderman et C. Kittel  
Phys. Rev. **96**, 99 (1954)
- [Schrag\_APL77\_2000] *Néel "orange-peel" coupling in magnetic tunneling junction devices*  
B. D. Schrag, A. Anguelouch, S. Ingvarsson, Gang Xiao, Yu Lu, P. L. Trouilloud, A. Gupta, R. A. Wanner, W. J. Gallagher, P. M. Rice et S. S. P. Parkin  
Appl. Phys. Lett. **77**, 2373 (2000)
- [Sabiryanov\_PRB58\_1998] *Magnetic properties of hard/soft composites:  $SmCo_5/Co_{1-x}Fe_x$*   
R. F. Sabiryanov et S. S. Jaswal  
Phys. Rev. B **58**, 12071 (1998)
- [Schurer\_PRB51\_1995] *Mössbauer investigation of the growth of the Fe multilayer in Fe(100)/Ag(100) structures*  
P. J. Schurer, Z. Celinski, et B. Heinrich  
Phys. Rev. B **51**, 2506 (1995)
- [Schwabe\_PRB54\_1996] *Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida interaction across a tunneling junction out of equilibrium*  
N. F. Schwabe, R. J. Elliott, et N. S. Wingreen  
Phys. Rev. B **54**, 12953 (1996)
- [Schwoebel\_JAP40\_1969] *Step Motion on Crystal Surfaces. II*  
R. L. Schwoebel  
J. Appl. Phys. **40**, 614 (1969)
- [Sharma\_PRL82\_1999] *Inversion of Spin Polarization and Tunneling Magnetoresistance in Spin-Dependent Tunneling Junctions*  
M. Sharma, S. X. Wang, et J. H. Nickel  
Phys. Rev. Lett. **82**, 616 (1999)
- [Sicot\_PRB68\_2003] *Polarization of Fe(001) covered by MgO analyzed by spin-resolved x-ray photoemission spectroscopy*  
M. Sicot, S. Andrieu, P. Turban, Y. Fagot-Revurat, and H. Cercellier, A. Tagliaferri, C. De Nadai, and N. B. Brookes, F. Bertran et F. Fortuna  
Phys. Rev. B **68**, 184406 (2003)
- [Siegert\_PRL73\_1994] *Slope Selection and Coarsening in Molecular Beam Epitaxy*  
M. Siegert et M. Plischke  
Phys. Rev. Lett. **73**, 1517 (1994)
- [Simmons\_JAP34\_1963] *Generalized Formula for the Electric Tunnel Effect between Similar Electrodes Separated by a Thin Insulating Film*  
J. G. Simmons  
J. Appl. Phys. **34**, 1793 (1963)
- [Skomski\_PRB48\_1993] *Giant energy product in nanostructured two-phase magnets*  
R. Skomski et J. M. D. Coey  
Phys. Rev. B **48**, 15812 (1993)
- [Slonczewski\_PRB39\_1989] *Conductance and exchange coupling of two ferromagnets separated by a tunneling barrier*  
J. C. Slonczewski  
Phys. Rev. B **39**, 6995 (1989)
- [Stearns\_JMMM5\_1977] *Simple explanation of tunneling spin polarization of Fe, Co and Ni and its alloys*  
M.B. Stearns  
J. Magn. Magn. Mat. **5**, 167 (1977)
- [Stoner\_PTRS248A\_1948] *Simple explanation of tunneling spin polarization of Fe, Co and Ni and its alloys*  
E. C. Stoner et E. P. Wohlfarth  
Phil. Trans. Roy. Soc. London **A248**, 599 (1948)
- [Stroscio\_PRL75\_1995] *Tunneling Spectroscopy of bcc (001) Surface States*  
J. A. Stroscio, D. T. Pierce, A. Davies, R. J. Celotta, et M. Weinert  
Phys. Rev. Lett. **75**, 2960 (1995)



- [Tasker\_SS137\_1984] *The structure and properties of the stepped surfaces of MgO and NiO*  
P. W. Tasker et D. M. Duffy  
Surf. Sci. **137**, 91 (1984)
- [Thomas\_PRL84\_2000] *Domain-Wall Induced Coupling between Ferromagnetic Layers*  
L. Thomas, M. G. Samant, et S. S. P. Parkin  
Phys. Rev. Lett. **84**, 1816 (2000)
- [Thürmer\_PRL75\_1995] *Dynamic Evolution of Pyramid Structures during Growth of Epitaxial Fe (001) Films*  
K. Thürmer, R. Koch, M. Weber, et K. H. Rieder  
Phys. Rev. Lett. **75**, 1767 (1995)
- [Tiusan\_EPJB26\_2002] *Magnetic-roughness-induced magnetostatic interactions in magnetic tunnel junctions*  
C. Tiusan, M. Hehn, K. Ounadjela  
Eur. Phys. J. B **26**, 431 (2002)
- [Tiusan\_PRB61\_2000] *Correlation between micromagnetism and tunnel magnetoresistance in magnetic tunnel junctions using artificial ferrimagnets*  
C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, H. van den Berg, V. da Costa, Y. Henry  
Phys. Rev. B **61**, 580 (2000)
- [Tiusan\_PRB64\_2001] *Field-dependent domain structure evolution in artificial ferrimagnets analyzed by spin-polarized tunnel transport in magnetic tunnel junctions*  
C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn  
Phys. Rev. B **64**, 104423 (2001)
- [Tiusan\_PRL93\_2004] *Interfacial Resonance State Probed by Spin-Polarized Tunnelling in Epitaxial Fe/MgO/Fe Tunnel Junctions*  
C. Tiusan, J. Faure-Vincent, C. Bellouard, M. Hehn, E. Jouguelet, et A. Schuhl  
Phys. Rev. Lett. **93**, 106602 (2004)
- [Tiusan\_thèse\_2000] *Magnétisme et transport polarisé en spin dans des jonctions tunnel magnétiques. Utilisation du transport tunnel comme une sonde micromagnétique*  
C. Tiusan  
Thèse de l'Université L. Pasteur, Strasbourg (2000)
- [Toscano\_JMMM114\_1992] *Exchange-coupling between ferromagnets through a non-metallic amorphous spacer-layer*  
S. Toscano, B. Briner, H. Hopster et M. Landolt  
J. Magn. Magn. Mat. **114**, L6 (1992)
- [Tsymbal\_JPCM9\_1997] *Modelling of spin-polarized electron tunneling from 3d ferromagnets*  
E. Tsymbal et D. Pettifor  
J. Phys. : Condens. Matter **9**, L411 (1997)
- [Tsymbal\_JPCM15\_2003] *Spin-dependent tunnelling in magnetic tunnel junctions*  
E. Y. Tsymbal, O. N. Mryasov et P. R. LeClair  
J. Phys. : Condens. Matter **15**, R109 (2003)
- [Turban\_thèse\_2001] *Epitaxie de films minces métalliques :  
(i) Relaxation élastique pendant la croissance pseudomorphe  
(ii) Epitaxie d'hétérostructures NiMnSb/MgO/NiMnSb pour l'électronique de spin*  
P. Turban  
Thèse de l'université H. Poincaré, Nancy I (2001)
- [Turner\_PRB30\_1984] *Surface electronic properties of Fe(100)*  
A. M. Turner et J. L. Erskine  
Phys. Rev. B **30**, 6675 (1984)
- [Uiberacker\_PRB64\_2001] *Role of symmetry on interface states in magnetic tunnel junctions*  
C. Uiberacker et P. M. Levy  
Phys. Rev. B **64**, 193404 (2001)
- [Urano\_JPSJ57\_1988] *Atomic and electronic structure of ultrathin iron film on MgO(001) surface*  
T. Urano et T. Kanaji  
J. Phys. Soc. Japan **57**, 3403 (1988)
- [vandenBerg\_IEEE32\_1996] *GMR sensor scheme with artificial antiferromagnetic subsystem*  
H. A. M. van den Berg, W. Clemens, G. Gieres, G. Rupp, W. Schelter, et M. Vieth  
IEEE Trans. Magn. **32**, 4624 (1996)

- [vandenBerg\_JMMM165\_1997] *GMR angle detector with an artificial antiferromagnetic subsystem (AAF)*  
H. A. M. van den Berg, W. Clemens, G. Gieres, G. Rupp, M. Vieth, J. Wecker et S. Zoll  
J. Magn. Magn. Mat. **165**, 524 (1997)
- [Vassent\_JAP80\_1996] *A study of growth and the relaxation of elastic strain in MgO on Fe(001)*  
J. L. Vassent, M. Dynna, A. Marty, B. Gilles, et G. Patrat  
J. Appl. Phys. **80**, 5727 (1996)
- [Vassent\_JCG219\_2000] *Thermodynamic analysis of molecular beam epitaxy of MgO(s) I. MgO vaporization by electron bombardment*  
J.L. Vassent, A. Marty, B. Gilles, et C. Chatillon  
J. Crystal Growth **219**, 434 (2000)
- [Vedyayev\_PRB63\_2001] *Magnetoresistance of magnetic tunnel junctions in the presence of a nonmagnetic layer*  
A. Vedyayev, M. Chshiev, N. Ryzhanova, et B. Dieny  
Phys. Rev. B **61**, 1366 (2000)
- [Veerdonk\_APL71\_1997] *Current distribution effects in magnetoresistive tunnel junctions*  
R. J. M. van de Veerdonk, J. Nowak, R. Meservey, J. S. Moodera, et W. J. M. de Jonge  
Appl. Phys. Lett. **71**, 2839 (1997)
- [Vossen\_1991] *Thin Film Processes II*  
J. Vossen et W. Kern  
Academic Press, Inc (1991)
- [Wang\_PRL70\_1993] *Adatom motion to lattice steps : A direct view*  
S. C. Wang et G. Ehrlich  
Phys. Rev. Lett. **70**, 41 (1993)
- [Wormeester\_PRL77\_1996] *hcp and bcc Cu and Pd Films*  
H. Wormeester, E. Hüger, et E. Bauer  
Phys. Rev. Lett. **77**, 1540 (1996)
- [Wulfhekel\_APL78\_2001] *Single-crystal magnetotunnel junctions*  
W. Wulfhekel, M. Klaua, D. Ullmann, F. Zavaliche, J. Kirschner, R. Urban, T. Monchesky, et B. Heinrich  
Appl. Phys. Lett. **78**, 509 (2001)
- [Wunnicke\_PRB65\_2002] *Effects of resonant interface states on tunneling magnetoresistance*  
O. Wunnicke, N. Papanikolaou, R. Zeller, P. H. Dederichs, V. Drchal, et J. Kudrnovský  
Phys. Rev. B **65**, 064425 (2002)
- [Xu\_PRB52\_1995] *Directed inelastic hopping of electrons through metal-insulator-metal tunnel junctions*  
Y. Xu, D. Ephron, et M. R. Beasley  
Phys. Rev. B **52**, 2843 (1995)
- [Yosida\_PR106\_1957] *Magnetic Properties of Cu-Mn Alloys*  
K. Yosida  
Phys. Rev. **106**, 893 (1957)
- [Yuasa\_EPL52\_2000] *Magnetic tunnel junctions with single-crystal electrodes : A crystal anisotropy of tunnel magneto-resistance*  
S. Yuasa, T. Sato, E. Tamura, Y. Suzuki, H. Yamamori, K. Ando, et T. Katayama  
Europhys. Lett. **52** (3), 344 (2000)
- [Yuasa\_JJAP43\_2004] *High Tunnel Magnetoresistance at Room Temperature in Fully Epitaxial Fe/MgO/Fe Tunnel Junctions due to Coherent Spin-Polarized Tunneling*  
S. Yuasa, A. Fukushima, T. Nagahama, K. Ando, et Y. Suzuki  
Jpn. J. Appl. Phys. **43**, No. 4B (2004)
- [Yuasa\_Science297\_2002] *Spin polarized resonant tunneling in magnetic tunnel junctions*  
S. Yuasa, T. Nagahama, et Y. Suzuki  
Science **297**, 234 (2002)
- [Zhang\_EPJB10\_1999] *Models for magnetoresistance in tunnel junctions*  
S. Zhang et P. M. Levy  
Eur. Phys. J. B **10**, 599 (1999)
- [Zhang\_JAP83\_1998] *Voltage dependence of magnetoresistance in spin dependent tunneling junctions*  
J. Zhang et R. M. White  
J. Appl. Phys. **83**, 6512 (1998)

- [Zhang\_PRB57\_1998] *Magnetoresistance and exchange coupling in a ferromagnetic tunnel junction with ferromagnetic layers of finite thickness*  
X. Zhang, B.-Z. Li, W. Zhang, et F.-C. Pu  
Phys. Rev. B **57**, 1090 (1998)
- [Zhang\_PRB68\_2003] *Effects of the iron-oxide layer in Fe-FeO-MgO-Fe tunneling junctions*  
X.-G. Zhang, W. H. Butler, et A. Bandyopadhyay  
Phys. Rev. B **68**, 092402 (2003)
- [Zhang\_PRB69\_2004] *Electronic structure and spin-dependent tunneling conductance under a finite bias*  
C. Zhang, X.-G. Zhang, P. S. Krstic, Hai-ping Cheng, W. H. Butler, et J. M. MacLaren  
Phys. Rev. B **69**, 134406 (2004)
- [Zhang\_PRL79\_1997] *Quenching of Magnetoresistance by Hot Electrons in Magnetic Tunnel Junctions*  
S. Zhang, P. M. Levy, A. C. Marley et S. S. P. Parkin  
Phys. Rev. Lett. **79**, 3744 (1997)
- [Zhang\_SS298\_1993] *Epitaxy of fcc and bcc Co, Ni, and Cu studied by X-ray photoelectron diffraction*  
J. Zhang, Z. -L. Han, S. Varma, et B. P. Tonner  
Surf. Sci. **298**, 351 (1993)
- [Ziese\_2000] *Spin electronics*  
M. Ziese et M. J. Thornton  
Springer Verlag (2000)



## *Résumé*

Les jonctions tunnel magnétiques monocristallines Fe(100)/MgO(100)/Fe(100) élaborées par Epitaxie par Jet Moléculaire sont des systèmes modèles pour la validation de concepts spécifiques au transport polarisé en spin dans les multicouches cristallines. L'analyse de la structure de bande montre que le Fe(100) apparaît comme un demi-métal au regard de la symétrie  $\Delta_1$  : cette nouvelle notion de polarisation en terme de symétrie électronique explique les formidables effets magnétorésistifs prédits dans ce système.

Nos résultats magnétorésistifs valident les effets de filtrage en symétrie et montrent l'influence de la structure électronique sur le transport dont les mécanismes dépassent le modèle des électrons libres.

Parallèlement, la croissance bidimensionnelle du MgO a permis l'élaboration de fines couches de MgO pour lesquelles nous avons fourni la première mise en évidence expérimentale d'une interaction antiferromagnétique entre deux couches magnétiques par effet tunnel polarisé en spin.

**Mots clés** : transport tunnel polarisé en spin, jonctions tunnel magnétiques, épitaxie par jet moléculaire, croissance de films minces, symétrie électronique, interaction magnétique, couplage magnétique par effet tunnel.

## *Abstract*

Monocrystalline Fe(100)/MgO(100)/Fe(100) magnetic tunnel junctions (MTJ), elaborated by Molecular Beam Epitaxy constitute ideal systems for validation of specific concepts related to the spin polarized transport in crystalline multilayers. The analysis of the band structure shows that the Fe(100) behaves as a half-metal with respect to the  $\Delta_1$  electronic symmetry; this new concept of spin polarization/filtering in terms of symmetry being at the origin of huge magnetoresistive effects theoretically predicted in these systems.

Our magnetotransport results validate the effects of electronic symmetry filtering. Moreover, they illustrate the influence of the electronic structure on tunnel transport, whose complex mechanisms go well beyond the free-electron framework.

The precise control of the bidimensional epitaxial growth of MgO allowed us the elaboration of extremely thin insulating barriers for which we provide a first experimental proof of magnetic coupling by spin polarized tunneling.

**Keywords** : spin polarized tunnel transport, magnetic tunnel junctions, molecular beam epitaxy, thin film growth, electronic symmetry, magnetic interaction, magnetic coupling by spin polarized tunnel effect.



AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE  
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL  
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

Monsieur Hugues DREYSSE, Professeur, Institut de Physique et Chimie des Matériaux, Strasbourg

Monsieur Etienne SNOECK, Chargé de Recherche, Centre d'Elaboration de Matériaux et d'Etudes Structurales, Toulouse

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur FAURE-VINCENT Jérôme

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,  
une thèse intitulée :

"Transport polarisé en spin dans le système épitaxié Fe/MgO/Fe : Interactions magnétiques et Symétries électroniques"

en vue de l'obtention du titre de :

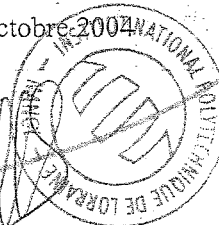
DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : « Physique et chimie de la matière et des matériaux »

Fait à Vandoeuvre, le 15 octobre 2004

Le Président de l'I.N.P.L.,

L. SCHUFFENECKER



NANCY BRABOIS  
2, AVENUE DE LA  
FORET-DE-HAYE  
BOITE POSTALE 3  
F - 54501  
VANCEUVRE CEDEX





**AVIS DU JURY**  
SUR  
**la DIFFUSION DE LA THESE**

Thèse de l'INPL soutenue le 29 octobre 2004 par M.

Jérôme FAURE - VINCENT

Je soussigné, M Amand GEORGE, Président du jury,

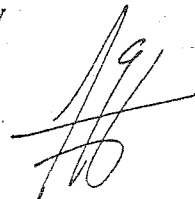
certifie que lors de sa délibération, le jury a donné l'avis suivant :

- favorable à la reproduction de la thèse sans modifications majeures.
- favorable à la reproduction à terme, moyennant les corrections ou ajouts mentionnés au verso.

Fait à Nancy

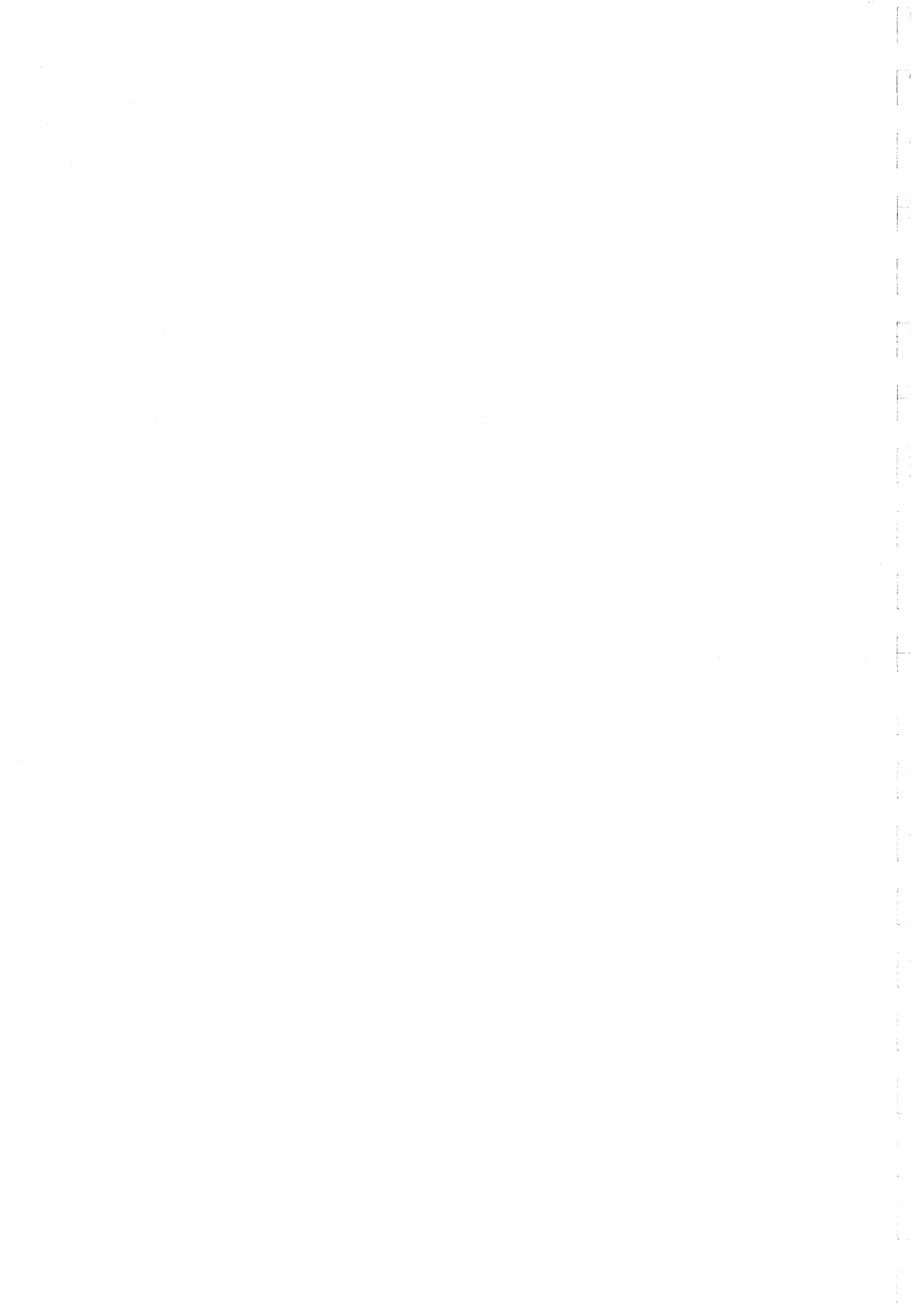
le 29 octobre 2004

Le Président du jury



Destinataires :

- service des études de l'INPL (original recto verso)
- candidat (copie)



## *Résumé*

Les jonctions tunnel magnétiques monocristallines Fe(100)/MgO(100)/Fe(100) élaborées par Epitaxie par Jet Moléculaire sont des systèmes modèles pour la validation de concepts spécifiques au transport polarisé en spin dans les multicouches cristallines. L'analyse de la structure de bande montre que Fe(100) apparaît comme un demi-métal au regard de la symétrie  $\Delta_1$  : cette nouvelle notion de polarisation en terme de symétrie électronique explique les formidables effets magnétorésistifs prédits dans ce système.

Nos résultats magnétorésistifs valident les effets de filtrage en symétrie et montrent l'influence de la structure électronique sur le transport dont les mécanismes dépassent le modèle des électrons libres.

Parallèlement, la croissance bidimensionnelle du MgO a permis l'élaboration de fines couches de MgO pour lesquelles nous avons fourni la première mise en évidence expérimentale d'une interaction antiferromagnétique entre deux couches magnétiques par effet tunnel polarisé en spin.

**Mots clés** : transport tunnel polarisé en spin, jonctions tunnel magnétiques, épitaxie par jet moléculaire, croissance de films minces, symétrie électronique, interaction magnétique, couplage magnétique par effet tunnel.

## *Abstract*

Monocrystalline Fe(100)/MgO(100)/Fe(100) magnetic tunnel junctions (MTJ), elaborated by Molecular Beam Epitaxy constitute ideal systems for validation of specific concepts related to the spin polarized transport in crystalline multilayers. The analysis of the band structure shows that the Fe(100) behaves as a half-metal with respect to the  $\Delta_1$  electronic symmetry; this new concept of spin polarization/filtering in terms of symmetry being at the origin of huge magnetoresistive effects theoretically predicted in these systems.

Our magnetotransport results validate the effects of electronic symmetry filtering. Moreover, they illustrate the influence of the electronic structure on tunnel transport, whose complex mechanisms go well beyond the free-electron framework.

The precise control of the bidimensional epitaxial growth of MgO allowed us the elaboration of extremely thin insulating barriers for which we provide a first experimental proof of magnetic coupling by spin polarized tunneling.

**Keywords** : spin polarized tunnel transport, magnetic tunnel junctions, molecular beam epitaxy, thin film growth, electronic symmetry, magnetic interaction, magnetic coupling by spin polarized tunnel effect.



