



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

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.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

Thèse

présentée pour obtenir le titre de

**Docteur de l'Université Henri Poincaré
Nancy-Université**

en Physique et Chimie de la Matière et des Matériaux

par Fanny Greullet

**Les jonctions tunnel magnétiques
épitaxiées à base de MgO(001) : de
l'étude statique et dynamique à
l'injection de spin dépendant des
symétries.**

Soutenue publiquement le 23 janvier 2009
Devant le jury composé de :

Rapporteurs :	Mr Frédéric Petroff	, directeur de recherche au CNRS
	Mr Mairbek Chshiev	, habilitation à diriger des recherches
Président :	Mr Alain Schuhl	, professeur
Directeurs de thèse :	Mr Michel Hehn	, professeur
	Mr Coriolan Tiusan	, chargé de recherches au CNRS
Invités :	Mr Etienne Snoeck	, directeur de recherches au CNRS
	Mr Wolfgang Weber	, professeur
	Mr Farkhad Aliev	, professeur

Thèse préparée au :
Laboratoire de Physique des Matériaux, CNRS, Nancy-Université, France

Mr Frédéric Petroff	directeur de recherches au CNRS habilitation à diriger des recherches Unité mixte de Physique CNRS/Thalès et Université Paris Sud 11, Palaiseau
Mr Mairbek Chshiev	habilitation à diriger des recherches SPINTEC, CEA, Grenoble
Mr Alain Schuhl	professeur habilitation à diriger des recherches SPINTEC, CEA, Grenoble
Mr Michel Hehn	professeur habilitation à diriger des recherches Laboratoire de Physique des Matériaux (LPM), Nancy
Mr Coriolan Tiusan	chargé de recherches au CNRS habilitation à diriger des recherches Laboratoire de Physique des Matériaux (LPM), Nancy
Mr Etienne Snoeck	directeur de recherches au CNRS Centre d'Elaboration de Matériaux et d'Etudes Structurales (CEMES), Toulouse
Mr Wolfgang Weber	professeur habilitation à diriger des recherches Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg (IPCMS)
Mr Farkhad Aliev	professeur Departamento Fisica Materia Condensada, C-III, Madrid

Table des matières

Prologue	1
Chapitre Premier – Le système Fe / MgO / Fe (001)	7
1. 1. MgO et Fe : Structures cristallographique et électronique	7
1. 1. 1. L'oxyde de magnésium MgO	7
1. 1. 2. Le fer cubique centré	8
1. 1. 3. L'empilement <i>bcc</i> Fe(001) / MgO(001)	9
1. 2. Formalisme et modèles théoriques	9
1. 2. 1. Modèle des liaisons fortes.....	10
1. 2. 2. Approche layer Korringa Kohn Rostoker (LKKR).....	10
1. 2. 3. Approximations	11
1. 3. Approche globale du transport tunnel	11
1. 3. 1. Surfaces de Fermi.....	11
1. 3. 2. Distribution des conductances	12
1. 4. Modélisation du transport tunnel en $k_{//} = 0$	14
1. 4. 1. Symétries des états de Bloch du <i>bcc</i> Fe(001)	14
1. 4. 2. Influence de la structure de bandes complexe du MgO.....	15
1. 5. Influence des interfaces	19
1. 6. Résumé	21
1. 7. Résultats expérimentaux.....	22
Chapitre Deuxième – Du filtrage en symétrie	27
2. 1. Le chrome Cr(001) : étude de fiabilité	28
2. 1. 1. Croissance	28
2. 1. 2. Magnétisme	29
2. 1. 3. Propriétés électroniques	29
2. 2. Recherche bibliographique.....	30
2. 2. 1. Effets d'interface	31
2. 2. 2. Effets d'interface intrinsèques.....	31
2. 3. Résultats expérimentaux.....	33
2. 3. 1. TMR et conductances à l'équilibre.....	33
2. 3. 2. Etude de l'évolution des conductances en tension	35
2. 3. 3. Calculs <i>ab-initio</i>	37
2. 3. 4. Interlude transitionnel.....	39
2. 4. Construction d'états de puits quantiques.....	40
2. 5. Conclusion du chapitre.....	44
Chapitre Troisième – « Noise is Signal »	47
3. 1. Les bruits électroniques basse fréquence dans les JTMs.....	47
3. 1. 1. Le bruit blanc	47
3. 1. 2. Le bruit en $1/f$	49
3. 2. Système d'étude.....	50

3. 2. 1. Qu'entend-on par « interface dopée-carbone » ?	50
3. 2. 2. Caractéristiques tunnel des JTMs dopées-carbone.....	52
3. 3. Mesures de bruit basse fréquence	56
3. 3. 1. Spectres de bruit de JTMs dopées-carbone	57
3. 3. 2. Bruit d'origine électronique ?.....	58
3. 3. 3. Bruit d'origine magnétique ?	60
3. 3. 4. Discussion.....	64
3. 4. Conclusion et perspectives.....	66
Chapitre Dernier – Premier pas vers les demi-métaux	69
4. 1. Propriétés de la magnétite Fe ₃ O ₄	69
4. 1. 1. Structure cristalline	69
4. 1. 2. Structure électronique et demi-métallicité	70
4. 1. 3. Magnétisme	71
4. 1. 4. Transition de Verwey	72
4. 1. 5. Particularité des couches minces.....	74
4. 1. 5. 1. Parois d'antiphase.....	74
4. 1. 5. 2. Transition de Verwey.....	75
4. 2. Croissance et étude structurale des empilements.....	76
4. 2. 1. Echantillons Fe / MgO / Co	76
4. 2. 1. 1. Croissance	76
4. 2. 1. 2. Caractérisation structurale	77
4. 2. 2. Echantillons à base de magnétite : Fe / Fe ₃ O ₄ / MgO / Co	77
4. 2. 2. 1. Choix de l'électrode inférieure.....	77
4. 2. 2. 2. Croissance	78
4. 2. 2. 3. Caractérisation par microscopie électronique en transmission	78
4. 2. 2. 4. Caractérisation par réflectivité X	79
4. 3. Mesure de magnéto-transport : résultats et discussion.....	80
4. 3. 1. Spécificités des films minces de magnétite réalisés	81
4. 3. 1. 1. Transition de Verwey.....	81
4. 3. 1. 2. Parois d'antiphase.....	81
4. 3. 1. 3. Valeur de magnétorésistance tunnel des JTMs avec magnétite.....	83
4. 3. 2. Magnétorésistance tunnel dans les échantillons sans magnétite	85
4. 3. 3. Structure électronique du Co <i>hcp</i> en $k_{//} = 0$	85
4. 3. 4. Comportement en tension : comparaison et discussion	86
4. 3. 4. 1. Discussion 1 : système Fe / MgO / Co	89
4. 3. 4. 2. Discussion 2 : système Fe / Fe ₃ O ₄ / MgO / Co	90
4. 3. 4. 3. Discussion globale	90
4. 4. Conclusions et perspectives.....	92
Epilogue	95
Annexe – de l'élaboration des jonctions Fe / MgO / Fe (001)	99
Bibliographie	105

Prologue

L'année précédant la rédaction de ce manuscrit, Albert Fert et Peter Grünberg se sont vu décerner le prix Nobel de Physique pour leur découverte simultanée de la magnétorésistance géante (GMR) en 1988 [1,2]. Un empilement alterné de couches magnétiques et de couches métalliques non-magnétiques d'épaisseurs nanométriques montre une forte dépendance de sa conductivité électrique sous l'action d'un champ magnétique extérieur. Le terme *magnétorésistance* provient de la variation relative de la résistance sous champ magnétique, l'adjectif *géante* venant contraster avec le faible effet magnétorésistif (5 %) de variation relative de résistance mis en évidence par Lord Kelvin en 1857 dans certains matériaux magnétiques. La trouvaille des Nobels de Physique 2007 annonça le début d'un nouveau champ de recherche en physique du solide, celle de l'électronique de spin où non seulement la charge mais également le « spin » de l'électron allaient être pris en compte.

Sous l'influence d'un champ électrique, les électrons se mettent en mouvement suite à l'interaction de ce champ avec leur charge électrique négative et créent le courant électrique. Cette manipulation de l'électron est utilisée dans tous les dispositifs électroniques classiques. L'électronique de spin intègre un degré de liberté supplémentaire de l'électron, le spin, qui est une propriété purement quantique. De façon imagée, le spin peut se voir comme le moment magnétique interne de l'électron ; l'électron se comporte alors comme un petit aimant et interagit avec l'environnement magnétique dans lequel il se trouve. Le spin de l'électron n'a que deux états possibles : « up » (\uparrow) ou « down » (\downarrow). Le courant électrique est d'ordinaire non polarisé, c'est-à-dire qu'on y trouve en moyenne autant d'électrons de spin \uparrow que d'électrons de spin \downarrow . La polarisation (P) quantifie l'asymétrie qu'il peut exister, dans certains cas et notamment dans certains matériaux, entre populations de spins :

$$P = \frac{n^{\uparrow} - n^{\downarrow}}{n^{\uparrow} + n^{\downarrow}} \quad \text{avec } n^{\uparrow(\downarrow)} \text{ la densité d'états de spins } \uparrow(\downarrow).$$

Par exemple, si on fait passer un courant électrique initialement non polarisé en spin à travers un matériau magnétique, les interactions entre le courant et l'aimantation du matériau engendrent une polarisation en spin du courant ; une population de spins aura été préférentiellement sélectionnée. On parlera alors de filtrage en spin.

Cet effet de filtrage en spin est mis à profit dans des structures utilisant l'effet GMR, composées de deux couches magnétiques séparées par une fine couche métallique non magnétique d'épaisseur nanométrique. Lorsque les aimantations des couches magnétiques passent d'une configuration parallèle (P) à une configuration antiparallèle (AP), les canaux de conduction des électrons de spin \uparrow et \downarrow sont modifiés entraînant une forte variation de résistance. La manipulation d'une propriété quantique des électrons est donc au cœur de l'électronique de spin. Les applications pratiques suivirent rapidement la découverte de la GMR notamment dans les technologies de l'information et la lecture magnétique d'informations sur disques durs. La sensibilité accrue des têtes de lecture utilisant l'effet GMR a permis d'augmenter considérablement les densités de stockage en autorisant la lecture de bits d'information plus petits qu'avec les technologies antérieures.

Dans ce contexte, quelques années après la découverte de la GMR, on a vu l'émergence de systèmes similaires où la couche métallique non-magnétique fut remplacée par une couche isolante non-magnétique. De telles tricouches ont reçu le nom de jonctions tunnel magnétiques (JTMs) et ont rapidement montré des effets magnétorésistifs d'amplitudes comparables à température ambiante. Dans les JTMs, les électrons polarisés en spin passent d'une couche magnétique à l'autre par *effet tunnel dépendant du spin* dans l'isolant. L'effet magnétorésistif fut alors appelé magnétorésistance tunnel (TMR) et se définit comme suit :

$$\text{TMR} = \frac{G_P - G_{AP}}{G_{AP}} = \frac{(G_P^\uparrow + G_P^\downarrow) - (G_{AP}^\uparrow + G_{AP}^\downarrow)}{(G_{AP}^\uparrow + G_{AP}^\downarrow)}$$

où $G_{P(AP)}^{\uparrow(\downarrow)}$ désigne la conductance en configuration P (AP) des aimantations pour les spins \uparrow (\downarrow).

L'effet tunnel est un exemple bien connu où la nature quantique des électrons est démontrée : les fonctions d'onde associées aux électrons (dualité onde – corpuscule) peuvent pénétrer dans des régions où le potentiel U_0 , est plus haut que l'énergie totale (E) de l'électron incident. En conséquence, une haute barrière de potentielle peut être franchie par une particule d'énergie faible. Le problème de la barrière de potentiel rectangulaire ayant une épaisseur d en est un exemple typique, utile pour poser les bases de l'effet tunnel.

Séparons l'espace en trois régions où le potentiel est nul pour $z < 0$ et $z > d$ et égal à U_0 pour $0 < z < d$ (fig. P.1). On considère une onde plane associée à la particule se propageant de la gauche vers la droite selon l'axe z . En $z < 0$, la fonction d'onde va être décrite par la superposition de l'onde plane incidente et sa fraction réfléchie à l'interface avec la barrière ($z=0$). Au sein de la barrière, pour $0 < z < d$, la fonction d'onde sera évanescente. Enfin, en $z > d$, l'onde plane correspondra à la fraction transmise. On décrit donc la fonction d'onde comme suit :

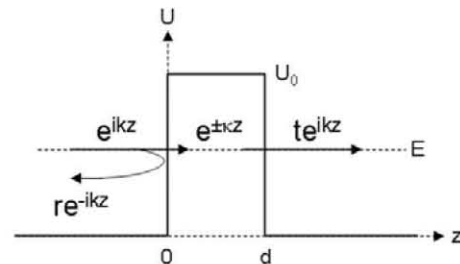


Figure P.1 : L'effet tunnel : les électrons d'énergie E peuvent être transmis à travers une barrière de potentiel de hauteur $U_0 > E$.

$$\Phi(z) = \begin{cases} e^{ikz} + re^{-ikz} & , z < 0 \\ ae^{-\kappa z} + be^{\kappa z} & , 0 < z < d \\ te^{ikz} & , z > d \end{cases}$$

avec $k = 2mE/\hbar^2$, $\kappa = 2m(U_0 - E)/\hbar^2$, r et t , respectivement, les coefficients de réflexion et de transmission.

Les coefficients se calculent en utilisant la condition de continuité de la fonction d'onde et de sa dérivée première aux interfaces ($z = 0$ et $z = d$). On peut en déduire la probabilité de transmission :

$$T = |t|^2 = \frac{4\kappa^2 k^2}{4\kappa^2 k^2 + (\kappa^2 + k^2)^2 \sinh^2(\kappa d)}$$

Dans la limite d'une barrière de potentiel épaisse, c'est-à-dire pour $\kappa d \gg 1$, cette expression peut s'approximer simplement par :

$$T \approx e^{-2\kappa d}$$

La probabilité de transmission décroît de façon exponentielle avec l'épaisseur d de la barrière tunnel. Le paramètre κ caractérisant cette décroissance est appelé *taux d'atténuation*. En trois dimensions, le résultat est similaire. On suppose toujours que la barrière se situe dans la direction z ; de plus, le mouvement est supposé libre dans les autres directions x et y . Les mouvements en x et y peuvent être découplés du mouvement en z . La fonction d'onde s'écrit, dans ce cas :

$$\Psi(x, y, z) = e^{i(k_x x + k_y y)} \Phi(z)$$

$\Phi(z)$ a la même forme que précédemment mais, ici, k est remplacé par k_z et κ et k_z dépendent de $k_{//}$ où $k_{//} = (k_x, k_y)$. On obtient :

$$k_z = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} E - k_{//}^2} \quad \text{et} \quad \kappa(k_{//}) = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} (U_0 - E) + k_{//}^2}$$

En conséquence, la probabilité de transmission devient elle aussi dépendante de $k_{//}$, $T(k_{//})$. Les électrons ayant le taux d'atténuation κ le plus faible, correspondront alors à ceux arrivant perpendiculairement à la surface, c'est-à-dire les électrons avec $k_{//} = 0$. Les électrons de $k_{//} \neq 0$ seront, en effet, fortement atténués dans la barrière de par la variation exponentielle de κ .

Ces notions sont généralisables au cas des JTMs. Un isolant est un composé ne possédant pas d'états électroniques au niveau de Fermi ^(*) (E_F). Ce dernier est situé dans l'intervalle séparant énergétiquement la bande de valence de la bande de conduction, appelé gap. Le niveau de Fermi d'un métal se situe, quant à lui, directement dans la bande de conduction. Classiquement, la propagation des états électroniques du métal est interdite dans l'isolant. Mais, de la même manière que précédemment, la mécanique quantique autorise aux états électroniques du métal à pénétrer dans le gap de l'isolant. La probabilité de présence des états métalliques va alors subir une décroissance exponentielle avant de s'évanouir après quelques couches atomiques. Ces états sont appelés MIGS, abréviation anglo-saxonne pour *metal-induced gap states*. Ce sont des états d'interface représentés par une fonction d'onde ayant un vecteur d'onde k complexe et pouvant de la sorte trouver une correspondance avec un état « complexe » de l'isolant. Ainsi, les états électroniques d'un métal peuvent passer par effet tunnel dans l'isolant en dépit du gap de ce dernier.

^(*) Le niveau de Fermi (E_F) représente la ligne énergétique au-dessous de laquelle les niveaux d'énergie sont occupés et au-dessus de laquelle les niveaux d'énergie sont vides.

Dans cette description de l'effet tunnel, le spin de l'électron a été passé sous silence. Mais, dans un métal ferromagnétique, les interactions coulombiennes et le principe d'exclusion de Pauli entraînent une asymétrie des populations de spins au niveau de Fermi : les densités d'états des électrons de spin \downarrow et de spin \uparrow ne sont pas égales. On parle de spins majoritaires et minoritaires, le terme « majoritaires » faisant référence aux électrons de spins \uparrow . Les ferromagnétiques sont donc polarisés en spin et cela se traduit par une aimantation spontanée du matériau.

Pour décrire un matériau magnétique, on utilise fréquemment un modèle de demi-bandes rigides décalées en énergie par l'interaction d'échange : le déséquilibre de population des deux directions de spin conduit à l'apparition d'un « champ moléculaire » dans le matériau. On admet que l'unique effet de ce champ moléculaire sur la structure de bandes du ferromagnétique est de décaler les énergies des électrons des deux directions de spin.

Un électron incident sur une barrière de potentiel aura une énergie $E \pm \Delta E/2$ suivant l'état de son spin. En combinant cela aux expressions des vecteurs d'ondes et du taux d'atténuation, on obtient :

$$k_z^\sigma = \sqrt{\frac{2m^\sigma}{\hbar^2} \left(E \pm \frac{\Delta E}{2} \right) - k_{//}^{\sigma 2}} \quad \text{et} \quad \kappa^\sigma(k_{//}^\sigma) = \sqrt{\frac{2m^\sigma}{\hbar^2} \left(U_0 - \left(E \pm \frac{\Delta E}{2} \right) \right) + k_{//}^{\sigma 2}}$$

La probabilité de transmission est dépendante du spin : $T^\sigma(k_{//}^\sigma) \approx e^{-2\kappa^\sigma d}$ où σ fait référence à un état de spin particulier, \uparrow ou \downarrow . C'est pourquoi on parle d'*effet tunnel dépendant du spin*. En conséquence, les électrons de spins minoritaires souffriront d'un taux d'atténuation plus important dans la barrière par rapport aux électrons de spins majoritaires. On voit se dessiner un mode de transport en canaux, chaque canal étant, ici, associé à un spin.

Par ailleurs, la dépendance en spin de la probabilité de transmission s'accompagne d'un effet magnétorésistif renforcé puisque la conductivité d'un canal est directement reliée à la probabilité de transmission via le quantum de conductance e^2/h selon la formule de Landauer :

$$G^\sigma = \frac{e^2}{h} \sum_{k_{//}} T^\sigma(k_{//}) , \quad \text{où la sommation s'effectue sur tous les } k_{//} .$$

Les premières réalisations expérimentales de dispositifs JTMs ne montraient que de timides valeurs de TMR et ne restaient visibles qu'à des températures de l'ordre de 4.2 K [3]. C'est en 1995, suite à l'amélioration des techniques de croissance, que cet effet a été mesuré à température ambiante [4,122] ; des empilements $\text{CoFe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ manifestaient 20 % de TMR. Les expériences se sont alors multipliées et la plus haute valeur de TMR pour des JTMs utilisant des barrières d'alumine se limite à 80 % à température ambiante dans des structures $\text{CoFeB}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{CoFeB}$ [5].

Cependant, un tournant a été pris à l'aube du XXI^{ème} siècle avec l'émergence de calculs théoriques sur les processus tunnel dépendant du spin. On citera notamment la publication de J.M. MacLaren *et al.* qui se sont penchés en 1999 sur la modélisation du transport dans l'architecture $\text{Fe}/\text{ZnSe}/\text{Fe}$ [6] où ZnSe est un semi-conducteur. Déjà dans cet article, les auteurs prédisaient un effet magnétorésistif d'autant plus important que la barrière

serait épaisse pour des JTMs utilisant du fer cubique centré (*bcc* Fe) comme électrodes ferromagnétiques et pour la direction cristallographique [100].

Parallèlement à cela, nombre d'études de croissance et de caractérisation avaient vu le jour sur le système alliant du *bcc* Fe et de l'oxyde de magnésium MgO dans la direction de croissance (001). Toutes s'accordaient à en démontrer la haute qualité cristallographique et firent entrevoir la potentialité de ce système pour des dispositifs JTMs. Ces résultats expérimentaux ont encouragé un effort théorique et la modélisation du transport tunnel dans ces architectures fût publiée en 2001 par W.H. Butler *et al.* [7] et J. Mathon *et al.* [8] ; l'effet de magnétorésistance tunnel y serait géant avec des valeurs pouvant atteindre le millier de pourcents. Il fallu attendre les années 2004-2005 pour en avoir la confirmation expérimentale avec l'obtention d'un effet TMR approchant les 200 % à température ambiante [9,10,11,123].

De nos jours, la « course à la TMR » (fig. P.2) continue et les études expérimentales foisonnent sur, entre autres, l'utilisation de demi-métaux (métaux totalement polarisés :

$P = \pm 1$) comme électrodes ou sur des JTMs CoFeB/MgO/CoFeB réalisées par pulvérisation cathodique. Si les résultats restent loin des attentes théoriques pour les JTMs à base de demi-métaux sauf quelques exceptions [12], celles utilisant l'alliage CoFeB ont, en revanche, déjà montré des TMRs de 600 % [13] à température ambiante. Leur faisabilité en termes de production industrielle en fait de bons candidats pour la commercialisation de la nouvelle génération de mémoires magnétiques non-volatiles (MRAMs). Des industriels se seraient déjà laisser séduire...

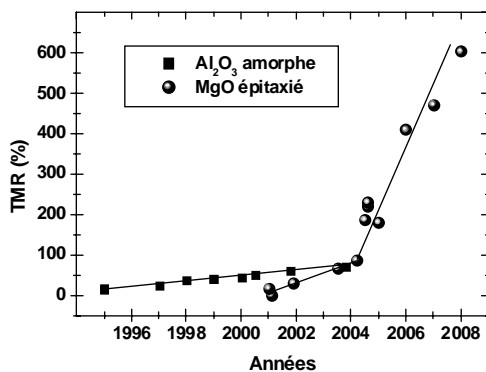


Figure P.2 : Evolution de l'amplitude de TMR au cours des années pour des JTMs à base d' Al_2O_3 amorphe (carrés) et MgO épitaxié (ronds).

Au-delà de cette course effrénée, les JTMs Fe/MgO/Fe(001) épitaxiées restent un système modèle indéniable et une base solide pour une compréhension approfondie des mécanismes du transport tunnel polarisé en spin.

Les premières jonctions tunnel Fe/MgO/Fe(001) ont vu le jour en 2001 au Laboratoire de Physique des Matériaux (LPM) de Nancy. Aux débuts prometteurs (20 % de TMR), le laboratoire a rapidement acquis une expertise dans ce domaine puisque, en 2005, les premières JTMs montrant près de 200 % de TMR étaient synthétisées.

Cette thèse s'inscrit dans la continuité de la thèse de Jérôme Faure-Vincent, soutenue en 2004 au laboratoire [14]. Dans son manuscrit, J. Faure-Vincent pose les bases des techniques expérimentales nécessaires à la réalisation de JTMs Fe/MgO/Fe(001) de haute qualité cristalline. Même si les TMRs ne dépassaient pas encore les 100 %, on retrouve un fourmillement d'indices permettant l'élaboration d'un empilement efficace, tant au niveau de la croissance que du magnétisme. D'ailleurs, ces études se sont soldées, entre autres, par la première mise en évidence expérimentale d'un couplage antiferromagnétique via les électrons tunnel entre les électrodes de Fe et pour des épaisseurs de barrière ne dépassant

pas les 6 monocouches atomiques [15]. Cet effet était jusque là resté au stade de prédiction théorique [16].

Parallèlement à la thèse de J. Faure-Vincent, on retrouve dans la thèse de Muriel Sicot, précieuse étude sur les interfaces métal/MgO(001) et soutenue en 2005 au laboratoire, les ingrédients permettant d'obtenir des JTMs Fe/MgO/Fe(001) offrant un effet TMR de l'ordre de 160 % ; l'augmentation de l'épaisseur de l'électrode de Fe supérieure permet de se rapprocher des propriétés du Fe massif et ainsi d'augmenter significativement l'effet magnétorésistif. Dans le même temps, un recuit modéré de cette même couche permet d'en augmenter la cristallinité et de renforcer les signatures de la structure électronique du *bcc* Fe(001) massif [17].

La thèse présentée ici a, bien sûr, consisté en l'élaboration de nombreuses structures tunnel par épitaxie par jets moléculaires et tous les résultats expérimentaux sont tirés de ces jonctions. Cependant, au vu de ce qui a déjà été détaillé dans les thèses précédentes, les techniques d'élaboration et de structuration des JTMs ne seront reprises que brièvement dans une annexe et ne feront pas partie du corps du texte. Cette thèse a été principalement dédiée à une compréhension plus approfondie des phénomènes de transport inhérents aux jonctions tunnel à base de MgO(001).

Le chapitre premier de ce manuscrit est entièrement dévoué à la physique des jonctions Fe/MgO/Fe(001) et permet d'avoir une vue d'ensemble de la modélisation des mécanismes de transport polarisé en spin dans ces empilements particuliers. Il s'en suivra une description des résultats expérimentaux que nous avons obtenus.

Le chapitre deuxième peut être vu comme un test de validité du modèle théorique utilisé. Nous verrons comment l'insertion de *bcc* Cr(001) à l'interface Fe/MgO(001) peut nous renseigner sur le bien fondé du modèle explicité au chapitre premier.

La dynamique du chapitre troisième sera animée par des mesures de bruits basses fréquences effectuées sur des jonctions Fe/MgO/Fe(001) dont l'interface inférieure Fe/MgO(001) a été contaminée au carbone. L'étude d'un système contaminé au carbone permettra, d'ailleurs, de montrer l'importance des interfaces dans le transport tunnel. Au-delà de ça, nous verrons comment des mesures de bruits basses fréquences peuvent nous éclairer sur les mécanismes de transport tunnel et quelles informations nouvelles elles nous ont apportées.

Le chapitre dernier annonce le retour au statique. Il correspond au premier pas vers l'utilisation de demi-métaux comme électrode. Après une présentation générale du demi-métal utilisé, en l'occurrence la magnétite (Fe_3O_4), nous aborderons et discuterons les résultats de transport que nous avons obtenus.

Chapitre Premier – Le système Fe / MgO / Fe (001)

Le prologue a mis en place les bases de l'effet tunnel dépendant du spin dans les jonctions tunnel. Nous allons donc partir de cette introduction pour entrer précisément dans les mécanismes de transport impliqués dans les jonctions tunnel monocristallines. Ce dernier terme a son importance : les modèles développés sous-entendent, en effet, que l'on connaisse parfaitement la position des atomes les uns par rapport aux autres et la façon dont ils s'arrangent aux interfaces ferromagnétique/isolant. Ce chapitre va se restreindre aux cas des JTM Fe/MgO/Fe(001) mais les concepts peuvent se généraliser et s'appliquer à d'autres empilements pour le peu que l'on connaisse les propriétés intrinsèques des matériaux qui les forment : structure cristalline, structure électronique, propriétés magnétiques, etc. En premier lieu, nous montrerons comment les mailles de Fe et de MgO se connectent entre elles pour obtenir une structure épitaxiée. Après avoir brièvement décrit le formalisme des différentes méthodes de calculs utilisées pour la modélisation, nous aborderons les mécanismes de transport tunnel en nous basant sur les travaux développés par J. Mathon, W.H. Butler et P.H. Dederichs. Enfin, les résultats expérimentaux obtenus sur nos systèmes épitaxiés seront présentés.

1. 1. MgO et Fe : Structures cristallographique et électronique

1. 1. 1. L'oxyde de magnésium MgO

L'oxyde de magnésium (MgO) cristallise dans une structure cubique de type NaCl avec un paramètre de maille $a_{\text{MgO}} = 0.421 \text{ nm}$ (fig. 1.1). C'est un isolant à gap direct avec le maximum de sa bande de valence et le minimum de sa bande de conduction situés au centre de la zone de Brillouin appelé point Γ .

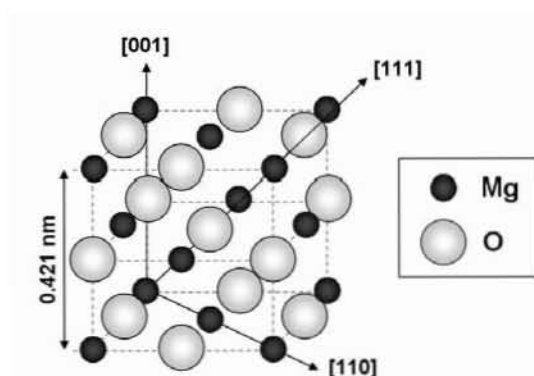


Figure 1.1 : Maille cubique du MgO et directions cristallographiques

Expérimentalement, le gap du MgO est évalué à 7.8 eV [18]. Les différents modèles de calculs utilisés réduisent cette valeur pour la porter aux alentours de 5 eV [19]. Par ailleurs, C. Li et A.J. Freeman dans leur caractérisation de monocouches atomiques de Fe sur MgO,

placent le haut de la bande de valence à 3.5 eV en-dessous du niveau de Fermi [20] ; le niveau de Fermi se situe donc au milieu du gap du MgO.

1. 1. 2. Le fer cubique centré

Le fer cristallise dans une structure cubique centré (*bcc*) avec un paramètre de maille $a_{\text{Fe}} = 0.287 \text{ nm}$ (fig. 1.2(a)). La figure 1.2(b) représente les zones de Brillouin tridimensionnelle (3D ZB) et bidimensionnelle (2D ZB) pour la face (001) de la maille cubique centrée (*bcc*) avec toutes les directions de haute symétrie. Les niveaux d'énergie quantifiés de chaque atome se transforment en bandes d'énergie permises et interdites lorsque les atomes sont arrangés de manière régulière dans un cristal. La dispersion en énergie des bandes électroniques diffère suivant la direction de propagation de haute symétrie puisque le potentiel perçu par les électrons est anisotrope (voir § 1.2) ; la figure 1.2(c) montre la structure de bandes du *bcc* Fe le long de ces différentes lignes. On s'intéressera par la suite au transport s'effectuant dans la direction [001], c'est-à-dire perpendiculairement aux plans (001) de la maille cubique. Cette direction correspond à la ligne de haute symétrie $\Gamma - H$, nommée Δ , dans la zone de Brillouin 3D et au point Γ dans la zone de Brillouin 2D relative aux plans (001). La structure de bandes pour la direction Δ est représentée dans la partie grisée de la figure 1.2(c) et sera reprise plus en détails dans la suite (voir § 1.4).

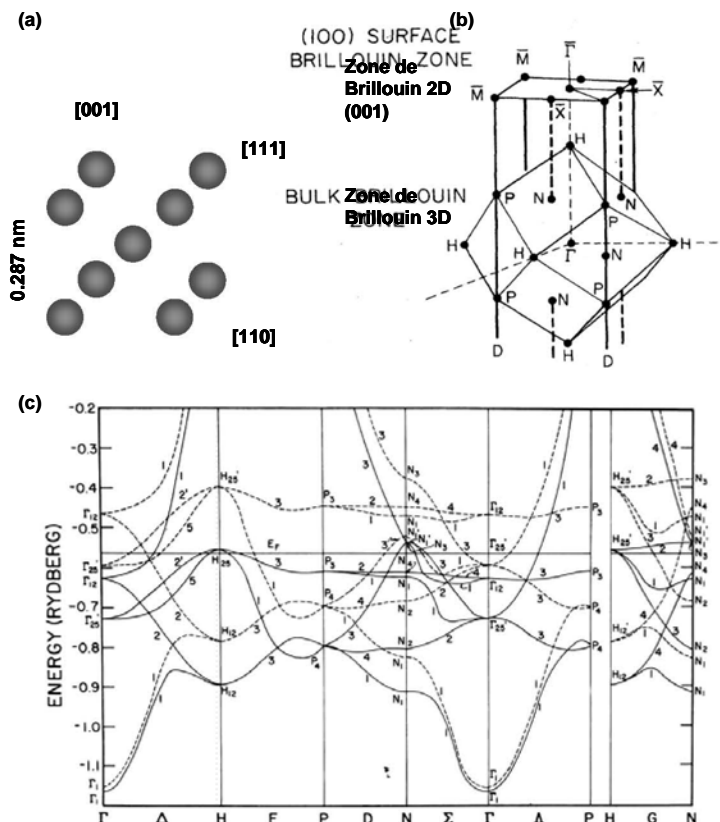


Figure 1.2 : (a) Maille du *bcc* Fe et axes cristallographiques. (b) Zones de Brillouin 3D et 2D pour la face (001) d'une maille *bcc* et directions de haute symétrie. Source [21]. (c) Structure de bandes du *bcc* Fe le long des lignes de haute symétrie : en trait plein les spins majoritaires, en pointillés les spins minoritaires, en grisé pour la direction de haute symétrie $\Gamma - H = \Delta$ correspondant à la face (001) du cristal. Source [22].

En ce qui concerne les propriétés magnétiques, la structure cristallographique du Fe lui confère une anisotropie magnétique, c'est-à-dire que, d'un point de vue magnétique, toutes les directions cristallographiques ne sont pas équivalentes. C'est un matériau qui possède une anisotropie magnétocristalline d'ordre quatre : le *bcc* Fe s'aimante plus facilement selon les axes correspondants aux arêtes du cube de la structure cristallographique. Ce sont les axes dits de *facile aimantation* et ils correspondent aux directions cristallographiques [001], [010] et [100]. Les autres directions comme [110] ou [111] sont des axes dits *difficiles*, la direction [111] étant la plus difficile. Dans le cas de nos JTMs, le champ magnétique extérieur est appliqué parallèlement aux plans (001) des couches, on ne fera donc référence désormais qu'aux seules directions [100] pour l'axe facile et [110] pour l'axe difficile.

1. 1. 3. L'empilement *bcc* Fe(001) / MgO(001)

Le MgO(001) croît de façon pseudomorphe sur le Fe(001) jusque 6 monocouches (ML) pour ensuite relaxer par l'intermédiaire de la formation de dislocations à l'interface Fe/MgO(001) [23]. L'épitaxie du MgO(001) sur le Fe(001) s'effectue selon la relation suivante : Fe(001)[110] || MgO(001)[100]. Elle se fait donc via une rotation de 45° de la maille de MgO(001) dont l'axe [100] se superpose à l'axe [110] du Fe(001) entraînant un désaccord paramétrique entre mailles $\Delta a/a$ de l'ordre de 3.7 % avec $\Delta a/a = \left(\frac{a_{\text{MgO}}}{2} - a_{\text{Fe}} \right) / a_{\text{Fe}}$. Par ailleurs, les études de minimisations d'énergie ainsi que les résultats expérimentaux [20,23] montrent que les atomes d'O de la maille de MgO se placent au-dessus des atomes de la maille de Fe (fig. 1.3). La distance Fe-O est évaluée entre 0.2 nm [23] et 0.23 nm [20].

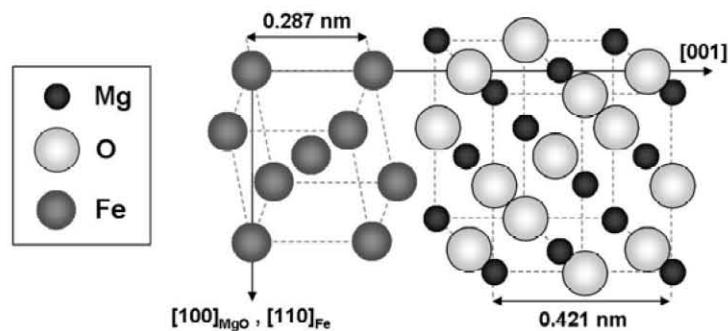


Figure 1.3 : Structure cristallographique de l'empilement Fe(001)/MgO(001).

Le faible désaccord paramétrique entre les mailles de Fe et de MgO permet d'obtenir une très bonne épitaxie des couches dans la direction de croissance (001). Cela en fait un système idéal pour la réalisation de jonctions monocristallines Fe/MgO/Fe(001) où la symétrie est conservée à travers l'empilement.

1. 2. Formalisme et modèles théoriques

Pour décrire le transport dans des structures monocristallines, il est nécessaire de prendre en compte la symétrie de l'empilement. Dans un cristal, les atomes sont répartis de

façon régulière dans l'espace selon une périodicité géométrique. Cette période dépend de la direction cristallographique. Par exemple, si on reprend la maille de Fe décrite au § 1.1.2, la période géométrique dans la direction cristallographique [001] est a_{Fe} , $a_{\text{Fe}}\sqrt{2}$ selon la direction [110] ou encore $a_{\text{Fe}}\sqrt{3/2}$ selon [111]. En conséquence, le potentiel perçu par les électrons sera périodique et sa périodicité dépendra de la direction cristallographique. Aussi, le modèle des électrons libres, qui sous-entend l'approximation d'un potentiel constant, devient-il inapplicable et les fonctions d'ondes électroniques dans un solide monocristallin sont-elles décrites dans le formalisme de Bloch. Dans un potentiel périodique de période \vec{R} , les fonctions d'ondes électroniques, appelées *ondes de Bloch*, s'écrivent : $\Psi_{\vec{k}}(\vec{r}) = e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} u_{\vec{k}}(\vec{r})$ avec $u_{\vec{k}}(\vec{r})$ une fonction périodique telle que : $u_{\vec{k}}(\vec{r} + \vec{R}) = u_{\vec{k}}(\vec{r})$.

1. 2. 1. Modèle des liaisons fortes

L'approximation de base de ce modèle est de supposer que les fonctions d'ondes électroniques peuvent être décrites en termes d'orbitales atomiques centrées autour de chaque atome du réseau cristallin. En considérant que seuls les électrons de valence contribuent aux liaisons chimiques, la structure électronique d'un matériau va être représentée comme une combinaison linéaire d'autant d'orbitales atomiques par atome que d'électrons de valence. Pour trouver les valeurs propres du Hamiltonien, il est nécessaire de connaître les éléments de matrice entre les orbitales atomiques ; ces éléments de matrice sont dénommés intégrales de saut et sont des fonctions analytiques de la distance interatomique D . On peut ainsi définir la structure électronique du matériau via le jeu de liaisons chimiques σ , π , δ créées entre les différentes orbitales des atomes premiers voisins. Dans les métaux de transition, on s'attachera, par exemple, au jeu de liaisons entre orbitales s , p et d . Dans ce cas, 5 sortes d'interactions peuvent entrer en jeu : $s-s$, $s-p$, $s-d$, $p-d$ et $d-d$. Les intégrales de saut varient en $1/D$ pour les interactions de type $s-s$, $1/D^2$ pour les interactions de type $s-p$ et ainsi de suite jusqu'à une variation en $1/D^5$ pour les interactions de type $d-d$. Les calculs effectués dans ce modèle, considèrent les fonctions électroniques comme des fonctions de Bloch dans le plan et atomiques dans la direction de propagation.

1. 2. 2. Approche layer Korringa Kohn Rostoker (LKRR)

Dans cette approche, un cristal est considéré comme un empilement infini de plans atomiques dont on connaît pour chacun la symétrie de translation dans le plan. Aucune condition n'est nécessaire sur la périodicité perpendiculairement aux plans des couches. Cette approche repose sur la théorie de la fonctionnelle de densité où toute fonction d'onde électronique est elle-même fonction de la densité électronique. Cette méthode est utilisée pour calculer les coefficients de transmission et de réflexion des ondes de Bloch entre plans atomiques adjacents. De chaque côté de la structure, on considère deux réservoirs ayant les propriétés du massif. Les atomes situés loin d'une interface auront le potentiel du massif et le potentiel de surface est atteint de manière auto-cohérente en permettant aux plans atomiques de surface de relaxer librement. C'est donc une procédure auto-cohérente utilisant autant d'itérations nécessaires pour obtenir la convergence du potentiel en surface. Le magnétisme est traité dans l'approximation de la densité locale de spins où les densités de spins majoritaires et minoritaires peuvent converger de manière indépendante.

1. 2. 3. Approximations

Dans toutes approximations des théories tunnel, il est supposé que la composante $k_{//}$ et le spin des électrons sont conservés durant le processus tunnel. La conservation du spin peut se justifier par le fait qu'à basse température les processus de diffusion inélastique pouvant faire passer d'un état de spin à un autre (*spin-flip*) sont gelés. La conservation de $k_{//}$ provient, quant à elle, du fait que l'empilement est toujours considéré invariant par translation dans le plan des couches. De plus, on suppose que la phase des fonctions d'ondes électroniques est également conservée durant le processus tunnel, ainsi que leur symétrie (voir § 1.4). On se place alors dans un modèle de *transport balistique* (conservation de k) et *cohérent* (conservation de la phase et de la symétrie).

La modélisation du transport dans les JTMs s'affranchit du désaccord paramétrique qu'il peut exister entre les différentes mailles qui composent l'empilement. Les autres paramètres comme le magnétisme, la distance entre atomes, le positionnement des atomes entre eux aux interfaces sont tirés et ajustés, pour leur part, des résultats expérimentaux (voir § 1.1 pour le système Fe/MgO/Fe(001)).

1. 3. Approche globale du transport tunnel

1. 3. 1. Surfaces de Fermi

Une manière de comprendre la distribution des conductances dans la zone de Brillouin de surface (2D ZB) est de s'attacher à la correspondance entre les surfaces de Fermi des électrodes ferromagnétiques et la surface de Fermi complexe de l'isolant ou autrement dit au couplage entre les états métalliques des électrodes et les états évanescents dans la barrière. En effet, les surfaces de Fermi, différentes pour chaque direction cristallographique, informent sur la répartition de la densité d'états, minoritaire et majoritaire, pour les électrodes et sur la transparence de l'isolant. La figure 1.4 montre les surfaces de Fermi des spins minoritaires et majoritaires du *bcc* Fe(001) ainsi que la surface de Fermi complexe du MgO(001) restreinte à $\kappa(k_{//}) = \kappa_{\min}$, c'est-à-dire que l'on a une cartographie du taux d'atténuation minimum dans le MgO(001).

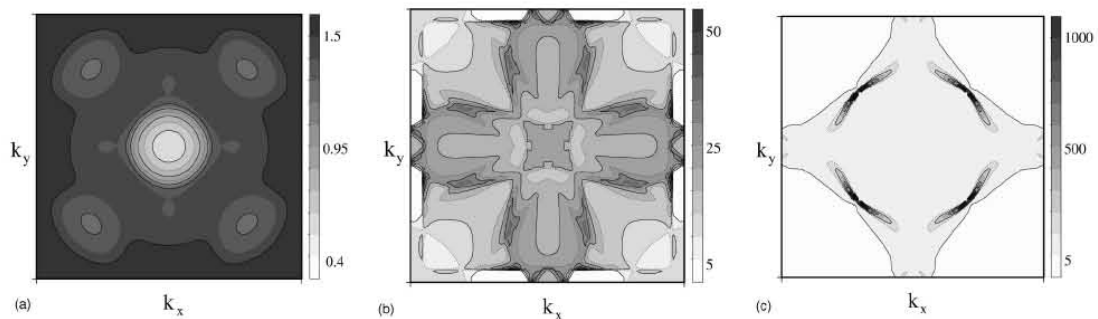


Figure 1.4 : (a) Surface de Fermi complexe du MgO limitée à $\kappa(k_{//}) = \kappa_{\min}$. (b) et (c) Surfaces de Fermi du *bcc* Fe(001) pour les spins majoritaires, respectivement minoritaires. Source [8].

La zone la plus claire sur la « cartographie » de κ_{\min} dans le MgO correspond au taux d'atténuation le plus faible et est centrée au point Γ (fig. 1.4(a)). Les électrons les moins atténués dans le MgO seront ceux ayant un vecteur d'onde transverse $k_{\parallel} = 0$, c'est-à-dire ceux arrivant perpendiculairement aux plans des couches. Les quatre autres zones ayant également un taux d'atténuation réduit sont situées le long des lignes $k_x = k_y$. La barrière de MgO fait office de *filtre* avec un filtrage préférentiel des électrons incidents ayant un $k_{\parallel} = 0$.

En ce qui concerne les spins majoritaires du *bcc* Fe(001), la densité d'états est approximativement répartie de façon égale sur toute la 2D ZB. Pour les spins minoritaires, on note une forte densité d'états sur un anneau centré en Γ , donc pour des valeurs finies de k_x et k_y . En revanche, au point Γ , la densité d'états est pour ainsi dire inexistante.

1. 3. 2. Distribution des conductances

La figure 1.5 représente les distributions des conductances calculées du système Fe/MgO/Fe(001) dans la 2D ZB pour différentes épaisseurs de barrière de MgO(001) : 4 monocouches atomiques (ML) et 8 ML. Ces « cartes » de conductances sont directement reliées au couplage des états de Bloch des électrodes de Fe(001) avec les états évanescent dans la barrière de MgO(001).

La corrélation avec les surfaces de Fermi apparaît sans ambiguïté :

- pour le canal de spins majoritaires en configuration P (fig. 1.5(a)), les pics de conductances se situent dans les zones où le taux d'atténuation est le plus faible ($k_x = k_y$ et $k_{\parallel} = 0$). En passant de 4 ML à 8 ML de MgO, la conductance G_P^{\uparrow} chute de 3-4 ordres de grandeur et seul persiste un pic centré en Γ qui se resserre autour des valeurs où κ_{\min} est minimal.

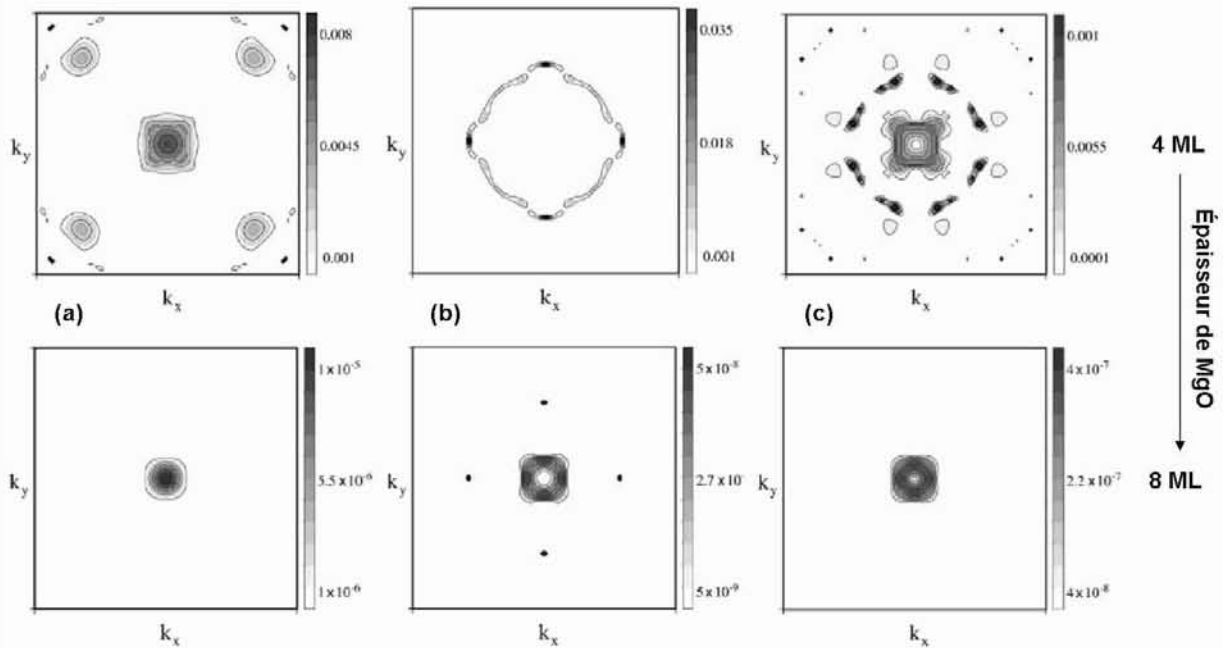


Figure 1.5 : Distribution des conductances sur la 2D ZB dans des JTM Fe/MgO/Fe(001) : (a) G_P^{\uparrow} , (b) G_P^{\downarrow} et (c) G_{AP} . En haut : pour 4 ML de MgO ; en bas pour 8 ML de MgO. Source [8].

- pour le canal de spins minoritaires en configuration P (fig. 1.5(b)) et à 4 ML de MgO, on voit réapparaître l'anneau où la densité d'états est forte (fig. 1.4(c)) avec des pics de conductance plus importants sur les lignes $k_x = 0$ et $k_y = 0$. En augmentant l'épaisseur de MgO, de la même manière que pour le canal majoritaire, l'anneau se resserre autour du point Γ et la conductance G_P^\uparrow chute de 6-7 ordres de grandeur, laissant un « trou » de conductance en Γ .
- En configuration AP (fig. 1.5(c)), on retrouve la signature conjointe des 3 surfaces de Fermi (réelles et complexe) avec un anneau de conductance resserré autour du point Γ et un « trou » au point Γ . La présence du trou au point Γ en configuration AP suggère que les états de spins majoritaires, pourtant présents en Γ , ne trouvent pas d'états accepteurs dans les spins minoritaires.

On voit donc naître un contraste entre les conductances P et AP d'autant plus appréciable au point Γ que la barrière de MgO est épaisse qui suggère un effet TMR géant en ce point.

Pour résumer cette première approche globale du transport dans le système Fe/MgO/Fe(001), on retrouve les principes généraux qui ont été introduit dans le prologue, à savoir :

- un taux d'atténuation dans la barrière minimal au point Γ ($k_{//} = 0$) favorisant ainsi la propagation des états de Bloch ayant un $k_{//}$ nul,
- un taux d'atténuation plus important pour les spins minoritaires que majoritaires,
- un contraste entre les conductances P et AP qui augmente avec l'épaisseur de la barrière.

Néanmoins, dans le cadre du modèle le plus simple des électrons libres, donc dans une structure non périodique (similaire au cas développé dans le prologue), les pics de conductance auraient été centrés au centre de zone pour les deux populations de spins. La seule différence aurait été l'amplitude de ces pics : plus faible pour les spins minoritaires au vu d'une probabilité de transmission réduite à travers la barrière. L'effet TMR n'aurait alors été dû qu'à cette seule différence. L'approche développée ici montre que la probabilité de transmission pour les spins minoritaires est bien plus élevée pour des états de Bloch incidents de $k_{//}$ non nul. Ceci est la conséquence du couplage entre les états métalliques de l'électrode et les états évanescents dans la barrière, couplage qui s'avère plus efficace pour des états proches de Γ que ceux situés effectivement en Γ pour les spins minoritaires. Ces états souffrent d'un taux d'atténuation plus élevé ($k_{//} \neq 0$) dans la barrière mais restent ceux qui dominant la conductance des spins minoritaires.

En gardant cette dernière remarque à l'esprit, les mécanismes de transport vont être abordés dans la suite en se limitant aux états de Bloch ayant un $k_{//} = 0$. En effet, pour de fortes épaisseurs de barrière (régime asymptotique) les états de Bloch ayant un $k_{//} \neq 0$ auront une probabilité de transmission fortement réduite. Par conséquent, en première approximation, la contribution de ces états dans les mécanismes tunnel peut être négligée afin de se concentrer sur les mécanismes responsables de l'effet TMR au point Γ .

1. 4. Modélisation du transport tunnel en $k_{//} = 0$

1. 4. 1. Symétries des états de Bloch du *bcc* Fe(001)

Comme introduit au § 1.1.2, la ligne de haute symétrie correspondant à un transport en $k_{//} = 0$ (perpendiculairement aux plans (001)) est la ligne $\Gamma - H = \Delta$. La figure 1.6 représente la structure de bandes du *bcc* Fe(001) suivant cette direction particulière.

Les différents états de Bloch, notés Δ_i , pouvant participer au transport tunnel sont ceux qui croisent le niveau de Fermi :

- Δ_1 , Δ_5 et $\Delta_{2'}$ pour les spins \uparrow ,
- Δ_5 , $\Delta_{2'}$ et Δ_2 pour les spins \downarrow .

Les notations Δ_i caractérisent la symétrie des bandes électroniques et sont issues de la théorie des groupes. Chaque représentation irréductible Δ_i est une combinaison linéaire d'orbitales qui reste invariante sous toutes opérations de symétries Δ_i . Chaque état électronique est indexé suivant les propriétés de symétrie des orbitales atomiques qu'il occupe.

Aussi, les états de symétrie Δ_1 regroupent les orbitales s , p_z et d_{z^2} , les états de symétrie Δ_5 correspondent aux orbitales p_x , p_y , d_{xz} et d_{yz} , les états de symétrie Δ_2 aux orbitales $d_{x^2-y^2}$ et enfin les états de symétrie $\Delta_{2'}$ aux orbitales d_{xy} .

De façon intuitive, tous ces états devraient avoir le même taux d'atténuation dans la barrière tunnel. Pourtant, dans un cristal, la symétrie dans le plan (x,y) entraîne des oscillations des fonctions d'ondes électroniques de Bloch et la composante $k_{//}$ s'écrit :

$$(k_{//}^{\sigma})^2 = \frac{\Psi \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) \Psi}{\Psi \Psi}$$

Par conséquent, $k_{//}$ se trouvant modulé par le nombre de nœuds de la fonction d'onde dans le plan (x,y) , cela va induire une même dépendance du taux d'atténuation dans la barrière puisque :

$$\kappa^{\sigma}(k_{//}^{\sigma}) = \frac{2m^{\sigma}}{\hbar^2} \left(U_0 - \left(E \pm \frac{\Delta E}{2} \right) \right) + k_{//}^{\sigma 2}$$

Les états s qui ne présentent pas de nœud dans le plan (x,y) auront le taux d'atténuation le plus faible, suivront les états p puis les états d . Chaque composante des états de symétrie Δ_i va présenter la même modulation dans le plan, aussi [24] :

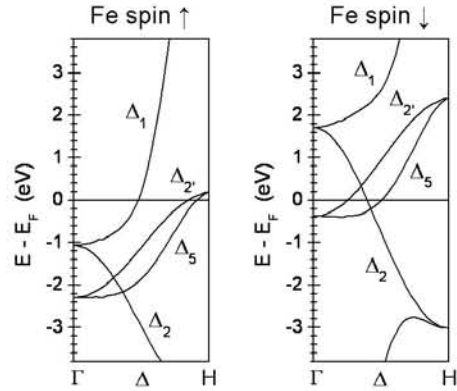


Figure 1.6 : Structure de bandes du *bcc* Fe(001) suivant la ligne de haute symétrie Δ pour les spins majoritaires (\uparrow) à gauche et minoritaires (\downarrow) à droite.

- les états Δ_1 ne présentent pas de nœuds dans les plans (001) et seront les moins atténués dans la barrière. Le taux d'atténuation κ_{Δ_1} relatif sera le plus faible.
- les états Δ_5 et Δ_2 présentent des nœuds dans les directions x et/ou y et seront, par conséquent, plus atténués avec $\kappa_{\Delta_5, \Delta_2} > \kappa_{\Delta_1}$.
- les états Δ_2 , quant à eux, sont de symétrie xy et seront les plus fortement atténués et $\kappa_{\Delta_2} > \kappa_{\Delta_5, \Delta_2} > \kappa_{\Delta_1}$.

En analysant les états de Bloch disponibles dans les électrodes de *bcc* Fe(001), la conservation de la symétrie de l'empilement entraîne une dépendance du taux d'atténuation par rapport aux symétries Δ_i des états de Bloch avec $\kappa_{\Delta_2} > \kappa_{\Delta_5, \Delta_2} > \kappa_{\Delta_1}$.

La conservation de la symétrie cristalline selon la direction de propagation permet, en outre, la conservation de la symétrie des états de Bloch pendant le processus tunnel ; un état Δ_i émis de l'électrode ne pourra donc être transmis à travers la barrière tunnel que s'il existe un état récepteur de même symétrie Δ_i dans la contre-électrode. Par conséquent, la propagation des états de symétrie Δ_1 des spins majoritaires est interdite en configuration AP suite à l'absence d'états de symétrie Δ_1 au niveau de Fermi pour les spins minoritaires (fig. 1.6). Dans la direction Δ , le *bcc* Fe(001) peut donc être perçu comme un demi-métal par rapport à la symétrie Δ_1 , c'est-à-dire $P_{\Delta_1} = +1$. Ces états étant les moins atténués dans la barrière ($\kappa_{\Delta_2} > \kappa_{\Delta_5, \Delta_2} > \kappa_{\Delta_1}$), cela va induire un fort contraste entre les conductances P et AP et donner naissance à un effet TMR important.

Les prévisions théoriques qui viennent d'être énoncées ont été obtenues en faisant abstraction de la nature de la barrière : la barrière est supposée rectangulaire et de hauteur constante U_0 indépendante de la symétrie. Néanmoins, la structure de bandes complexe de la barrière de MgO en $k_{//} = 0$ va instaurer une différence encore plus prononcée des taux d'atténuations relatifs aux symétries Δ_i des états de Bloch : $U_0 = U_0(\Delta_i)$.

1. 4. 2. Influence de la structure de bandes complexe du MgO

Le MgO est un isolant à gap direct au centre de zone. Ce gap apparaît suite à la périodicité du potentiel. En imaginant faire varier la force de ce potentiel périodique de zéro jusqu'à sa valeur normale (voir § 1.1.1), le gap s'ouvre graduellement en levant la dégénérescence en Γ . Les états initialement dégénérés sont alors connectés par une bande complexe formant une boucle. Le calcul de ces boucles s'effectue en utilisant des méthodes de calculs de structure de bandes standards mais en rendant possible à la composante k_z du vecteur d'onde $\mathbf{k} = (k_{//}, k_z)$ de prendre des valeurs complexes qui décrivent l'évanescence des états de Bloch dans la barrière (voir MIGS dans le prologue). L'intersection des boucles relatives aux différents états de Bloch avec le niveau de Fermi (E_F) représente alors leur taux respectif d'atténuation κ . Le taux d'atténuation le plus faible κ_{\min} correspond à celui de la plus petite boucle.

La figure 1.7 représente la structure de bandes réelle et complexe du MgO pour $k_{//} = 0$ le long de la direction $\Gamma - X$. La plus petite boucle et, par conséquent, le plus faible taux d'atténuation $\kappa(k_{//}) = \kappa_{\min}$ dans la barrière, est située en $k_{//} = 0$ en accord avec la surface de Fermi complexe du MgO présentée au § 1.3.1. Cette boucle correspond à la

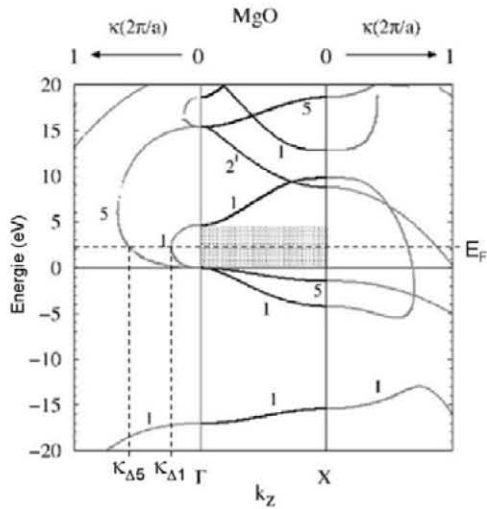


Figure 1.7 : Au centre : structure de bandes réelle du MgO le long de k_z et pour $k_{//} = 0$. A gauche et droite, structure de bandes complexe pour respectivement, $k_z = 0$ et $2\pi/a_{MgO}$. En grisé, le gap du MgO. L'intersection entre E_F et les bandes reliant les bandes de même symétrie correspond au taux d'atténuation κ_{Δ_i} des états de Bloch (représentés en pointillés pour les états Δ_1 et Δ_5). Source [25].

bande complexe reliant le haut de la bande de valence et le bas de la bande de conduction des états de symétrie Δ_1 ; on retrouve, comme au § 1.4.1, $\kappa_{\min} = \kappa_{\Delta_1}$. L'analyse de la structure de bandes complexe du MgO en $k_{//} = 0$, amène la hiérarchie suivante :

$$\kappa_{\Delta_2} \gg \kappa_{\Delta_5} > \kappa_{\Delta_1}$$

D'autre part, les écarts énergétiques séparant les bandes de valence des bandes de conduction différent pour chaque état Δ_i : de 5 eV pour le « gap Δ_1 » (partie grisée sur la figure) à 15 eV pour le « gap Δ_5 », par exemple. Les états Δ_i ne perçoivent pas la même hauteur de barrière (U_{Δ_i}) dans le MgO et $U_{\Delta_2} \gg U_{\Delta_5} > U_{\Delta_1}$. Le MgO est un filtre en symétrie avec un filtrage préférentiel des états de symétrie Δ_1 . La différenciation entre taux d'atténuation provient, ici, du couplage entre les états métalliques des électrodes et les états évanescents dans la barrière et est une conséquence directe de l'empilement cristallin des mailles de Fe et de

MgO. D'ailleurs, la rotation de 45° nécessaire à l'épitaxie du MgO sur le Fe (voir § 1.1.3), entraîne que les états de symétrie xy dans le Fe correspondent à une symétrie $x^2 - y^2$ dans le MgO. Aussi, les états de symétrie Δ_2 du Fe vont décroître comme des états Δ_2 dans le MgO et réciproquement : les états Δ_2 du Fe décroîtront comme les états Δ_2 dans le MgO.

Au § 1.4.1, une hiérarchie des taux d'atténuations avait été établie ($\kappa_{\Delta_2} > \kappa_{\Delta_5, \Delta_2} > \kappa_{\Delta_1}$) en supposant une barrière de hauteur identique pour tous les états Δ_i . Elle reposait uniquement sur des arguments d'oscillations des fonctions d'ondes dans le plan (x, y) . En prenant désormais en compte la nature de la barrière de MgO et le couplage des états à l'interface Fe/MgO, cette hiérarchie se renforce suite à l'apparition de hauteur de barrière différente pour chaque état et $\kappa_{\Delta_2} \gg \kappa_{\Delta_5} > \kappa_{\Delta_1}$. Par exemple, les états Δ_2 et Δ_5 ayant un nombre de nœuds similaire dans le plan (x, y) ont pourtant des taux d'atténuation différents.

Si l'ordre des taux d'atténuation n'est pas foncièrement chamboulé suite à l'analyse de la structure de bandes complexes du MgO, ceci n'est pas pour autant généralisable à tous les systèmes. Encore une fois, le paramètre important est le couplage des états à l'interface. Pour un autre isolant que le MgO, l'analyse de la structure de bandes complexe aurait pu amener à un taux d'atténuation plus faible pour les états Δ_5 que Δ_1 , comme dans le cas de barrière de $SrTiO_3$ [26,27].

Dans notre cas, l'ordre reste sensiblement identique, même si l'écart se creuse entre les états Δ_1 et Δ_5 suite à une barrière énergétique trois fois plus élevée pour les états Δ_5 . Le fait que les états Δ_1 soient préférentiellement transmis par la barrière vient, par ailleurs, renforcer la nature demi-métallique du bcc Fe(001) par rapport à cette symétrie (voir § 1.4.1).

1. 4. 3. Résultats des calculs *ab-initio* pour l'empilement complet

Les arguments développés aux § 1.4.1 et § 1.4.2 permettent de comprendre les résultats des calculs *ab-initio* effectués par W.H. Butler *et al.* [7] pour une barrière de MgO de 8 ML ($t_{\text{MgO}} = 8 \text{ ML}$). Ces calculs renseignent sur l'atténuation des différentes symétries des états de Bloch avec l'épaisseur de la barrière mais également sur leur comportement en termes de propagation dans la contre-électrode (fig. 1.8).

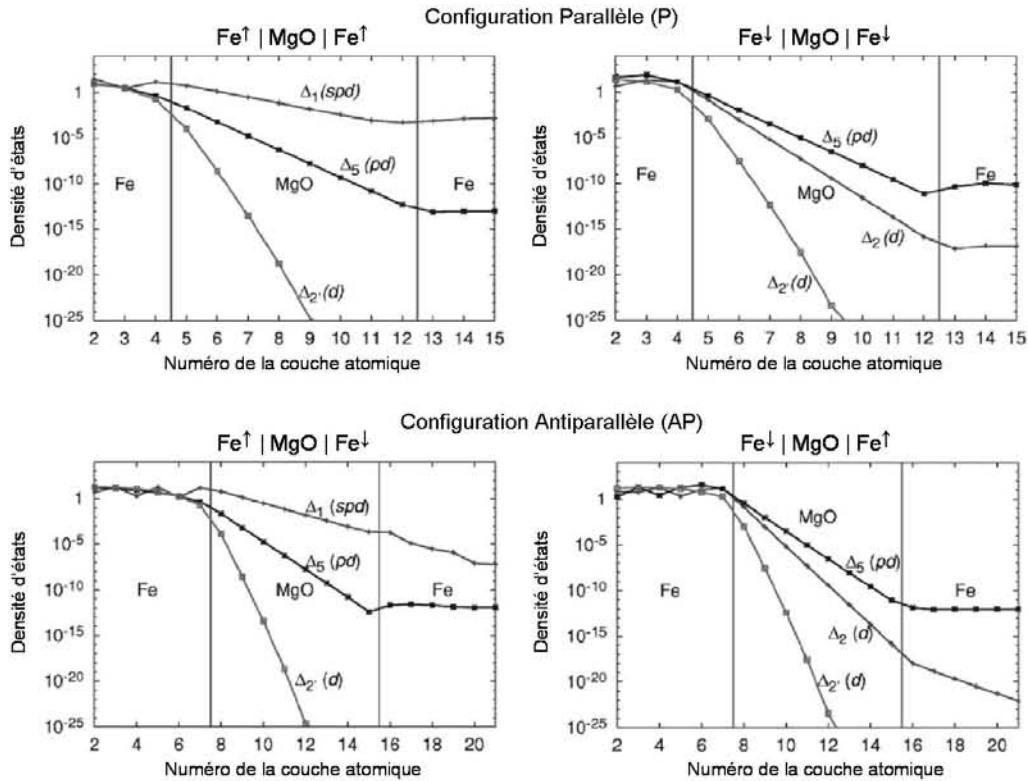


Figure 1.8 : Densité d'états tunnel pour $k_{\parallel} = 0$ pour chaque symétrie Δ_i des états de Bloch provenant de l'électrode de gauche pour le système Fe / MgO (8ML) / Fe(001). En haut (bas) pour la configuration parallèle (antiparallèle) des aimantations des électrodes de Fe. D'après [7].

En configuration parallèle :

- pour les spins majoritaires ($\text{Fe}\uparrow | \text{MgO} | \text{Fe}\uparrow$), les états Δ_1 , Δ_5 et Δ_2' peuvent prendre part au transport tunnel et ont chacun des états accepteurs dans la contre-électrode. Dans le MgO, ils subissent une décroissance exponentielle en $\exp(-2\kappa_{\Delta_i} t_{\text{MgO}})$. En raison du nombre de nœuds de la fonction d'onde associée dans le plan (x, y) et conjointement à la forte hauteur de barrière dans le MgO, les états Δ_2' ne subsistent pas au-delà d'une épaisseur de barrière $t_{\text{MgO}} = 4-5 \text{ ML}$. A $t_{\text{MgO}} = 8 \text{ ML}$, seuls les états Δ_1 et Δ_5 se propagent avec une atténuation importante dans la barrière pour les états Δ_5 .
- pour les spins minoritaires ($\text{Fe}\downarrow | \text{MgO} | \text{Fe}\downarrow$), la situation est semblable à la différence qu'il n'existe pas d'états Δ_1 et que des états Δ_2 apparaissent (fig. 1.6). Ces derniers même s'ils sont moins atténués dans le MgO que les états Δ_2' , perçoivent une hauteur de barrière importante.

En configuration antiparallèle :

- des spins majoritaires vers les spins minoritaires ($Fe^\uparrow | MgO | Fe^\downarrow$), les états Δ_1 incidents n'ont pas d'états susceptibles de les accueillir dans la contre-électrode. La contre-électrode est perçue comme une barrière de potentiel supplémentaire pour ces états. Le transport, pour une barrière de 8 ML, est gouverné par les seuls états Δ_5 qui ont des états accepteurs.
- des spins minoritaires vers les spins majoritaires ($Fe^\downarrow | MgO | Fe^\uparrow$), il n'y a pas d'états Δ_1 incidents. Le transport est gouverné par les états Δ_5 . On note également, que les états Δ_2 n'ont pas d'états accepteurs dans la contre-électrode.

Dans le modèle le plus simple, les conductances P et AP sont la somme des conductances de chaque canal de symétrie Δ_i pour chaque courant de spin qui participe au transport tunnel. En ne prenant en compte que les états incidents qui possèdent des états accepteurs dans la contre-électrode, on a :

$$\begin{aligned}
 - G_P &= G_{\Delta_1}^{\uparrow\uparrow} + G_{\Delta_5}^{\uparrow\uparrow} + G_{\Delta_5}^{\downarrow\downarrow} + G_{\Delta_2}^{\downarrow\downarrow} \\
 - G_{AP} &= G_{\Delta_5}^{\uparrow\downarrow} + G_{\Delta_5}^{\downarrow\uparrow}
 \end{aligned}$$

L'effet TMR attendu dans ce système est renforcé par la différence entre les taux d'atténuation relatif à chaque symétrie d'états. Ainsi, la conductance du « canal » de conduction Δ_1 (G_{Δ_1}) sera qualitativement très importante par rapport à la conductance des autres canaux de conduction. Plus l'épaisseur de barrière t_{MgO} sera grande, plus le contraste entre les conductances P et AP va être marqué. Par conséquent, la TMR augmente avec l'épaisseur de barrière et, pour une épaisseur t_{MgO} optimale, l'effet TMR peut être qualifié de géant puisque seul le canal de conduction Δ_1 subsistera.

En résumé, les mécanismes de transport tunnel dans les JTMs sont intimement liés au couplage entre les états métalliques des électrodes et les états évanescents dans la barrière. Dans des électrodes métalliques magnétiques monocristallines, plusieurs états de symétries différentes croisent le niveau de Fermi pour les spins majoritaires et minoritaires. Chaque état est associé à une symétrie particulière dépendant de la symétrie des orbitales auxquelles appartiennent les électrons. L'analyse de la structure de bandes complexes de la barrière monocristalline est un outil essentiel puisqu'elle va dicter l'évanescence de chaque état. Ainsi, en supposant conservés $k_{//}$, spin et symétrie durant le processus tunnel, on parvient à modéliser le transport dans l'empilement en tension nulle.

Dans le cas particulier des JTMs Fe/MgO/Fe(001), il se trouve que l'évanescence la plus faible dans la barrière correspond à la symétrie d'états Δ_1 . Cette symétrie n'existe au niveau de Fermi dans le *bcc* Fe(001) que dans les spins majoritaires. La propagation de cet état est par conséquent interdite en configuration AP. La combinaison de ces deux propriétés associée au faible désaccord paramétrique entre mailles fait de ce système un système modèle dans lequel un effet géant de TMR est attendu.

1. 5. Influence des interfaces

Les mécanismes de conduction n'ont jusqu'ici été envisagés qu'en faisant référence aux « états du volume », c'est-à-dire aux états existant dans le cristal massif supposé de dimension infinie dans les trois directions de l'espace. Cependant, le fait que le cristal se termine par une surface dans la direction de propagation va influencer sa structure électronique en surface. De nouveaux états électroniques peuvent apparaître. Ils sont localisés en surface et sont appelés *états de surface*. Ils sont confinés dans la bande interdite du continuum des états du volume et ne peuvent *a priori* pas prendre part au transport.

En revenant au cas du *bcc* Fe(001), il peut arriver que ces états croisent le continuum des états de volume pour certaines valeurs d'énergie ; ce sont des états de surface *résonants* (IRS). En quelque sorte, les IRS sont des états du volume ayant une forte amplitude en surface. Si ces derniers se couplent efficacement aux états du volume, ils peuvent donc *a priori* participer au transport. A titre illustratif, la figure 1.9 représente les densités d'états calculées du *bcc* Fe(001) pour les premières couches atomiques de Fe à l'interface Fe/MgO. En se fixant sur les couches de surface (lignes pleines 'IF layer'), il apparaît que la densité d'états des spins majoritaires est nettement réduite à l'approche du niveau de Fermi alors que dans les spins minoritaires, un important pic de densité se distingue juste au-dessus du niveau de Fermi.

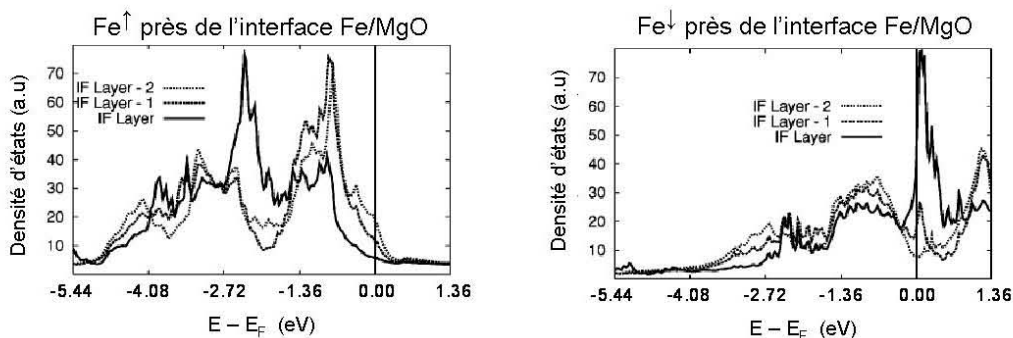


Figure 1.9 : Densités d'états des trois premières couches de *bcc* Fe(001) situées à l'interface Fe/MgO : 'IF layer' dénote la couche atomique de surface, 'IF layer - 1' la couche juste au-dessous, etc. D'après [7].

Ces signatures s'estompent rapidement et dès la troisième couche atomique de Fe ('IF layer - 2'), les propriétés du massif sont rétablies. Les effets liés à la présence de surface peuvent être drastiques ; on note par exemple dans ce cas précis, que la polarisation de surface est négative, contrairement à la polarisation positive du *bcc* Fe(001) massif. Aussi, si sous certaines conditions la contribution des interfaces domine, les propriétés de transport s'en trouveront fortement modifiées.

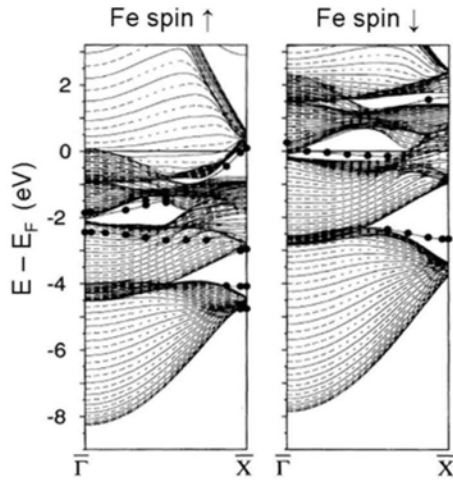


Figure 1.10 : Structure de bandes du *bcc* Fe(001) dans la direction $\Gamma - X$. Les parties grisées représentent le continuum des états du volume, les cercles noirs les états localisés en surface. D'après [28].

Lors de mesures de conductance tunnel sur des surfaces de *bcc* Fe(001) via un microscope à effet tunnel, J.A. Stroscio révéla la présence d'un fort pic de conductance pour une tension proche de 0.2 V [28]. Par ailleurs, l'amplitude de ce pic augmente lorsque la distance pointe – surface diminue. Ceci est en accord avec l'évanescence exponentielle dans une barrière tunnel. La figure 1.10 présente les résultats des calculs de structure de bandes pour du *bcc* Fe(001) suivant la direction $\Gamma - X$. Cette direction correspond à la direction parallèle aux plans (001) dans la zone de Brillouin de surface selon les lignes $k_x = 0$ et $k_y = 0$ (voir fig. 1.2(b)). Les états localisés en surface y sont représentés par des cercles pleins noirs.

L'état de surface proche du niveau de Fermi dans les spins minoritaires est IRS au point Γ et à une énergie de 0.2 eV au-dessus du niveau de Fermi. Cet IRS peut donc être activé en énergie et participer au transport en $k_{||} = 0$. Sa présence se manifeste alors par une augmentation soudaine de la conductance et donc l'apparition d'un pic de conductance à tension non nulle témoignant de l'ouverture d'un canal de conduction résonant. Par ailleurs, différentes méthodes de calcul s'accordent à démontrer le caractère d_{z^2} tunnel de cet IRS [28,29]. Aussi fait-il partie de la représentation irréductible Δ_1 dont l'évanescence dans la barrière de MgO est la plus faible. La contribution de l'IRS peut donc fortement modifier les caractéristiques tunnel puisqu'il autorise l'ouverture d'un canal de conduction Δ_1 dans la configuration AP d'ordinaire interdite si on se restreint à la structure électronique du Fe[↓] massif.

D'autre part, la dispersion de cet état de surface montre que ce dernier croise le niveau de Fermi pour des valeurs finies de $k_{||} \neq 0$ et qu'il devient IRS en se rapprochant des points Γ et X. Cela permet alors de mieux comprendre la distribution des conductances G_p^\uparrow et G_{AP} (fig. 1.5(b) et (c)) présentée au § 1.3.2 et dont la figure 1.11 se fait l'écho pour 8 ML de MgO. Pour rappel, ces calculs sont effectués à l'équilibre. Ils témoignent uniquement des mécanismes impliqués dans le transport au niveau de Fermi. Si le « trou » de conductance en $k_{||} = 0$ révèle la faible conductance des états du volume Δ_5 , et Δ_2 minoritaires, les pics de conductance situés le long des lignes $\Gamma - X$

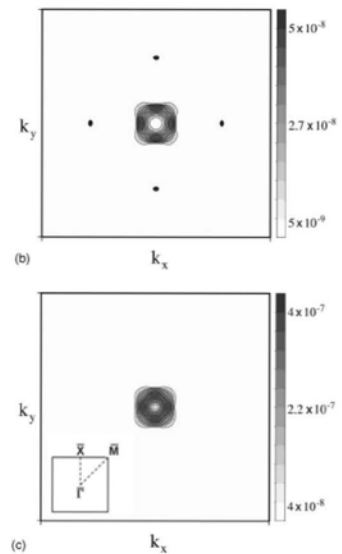


Figure 1.11 : Distribution de G_p^\downarrow (haut) et G_{AP} (bas) dans la 2D ZB pour 8 ML de MgO.

correspondant aux droites $k_x = 0$ et $k_y = 0$ de la 2D ZB reflètent pour leur part la forte conductance qui émane des états résonants. En effet, ces pics se situent dans les zones où l'état de surface croise à la fois le niveau de Fermi et le continuum des états du volume (proche du point $\bar{\Gamma}$ et se rapprochant du point \bar{X} , voir fig. 1.10).

En guise de précision, les calculs ont été effectués dans des systèmes parfaits, c'est-à-dire totalement symétriques et sans tension appliquée. Ce qui a été énoncé précédemment n'est donc valable que si les états de résonance sont couplés à des états de résonance similaires de l'autre côté de la barrière, ce qui est possible lorsque le système est symétrique. Ils pourront alors générer un fort courant tunnel. L'application d'une tension ou l'apparition de désordre aux interfaces engendre la disparition de ce couplage [30]. Des conditions d'existence aussi drastiques amènent à considérer le canal minoritaire parallèle comme fermé dans des systèmes réels. En revanche, le canal AP peut toujours être considéré comme ouvert ; cette fois, les états minoritaires résonants sont transmis dans les états majoritaires du volume de la contre-électrode. Comme ces derniers ne possèdent pas une structure aussi fine dans la zone de Brillouin, ils ne disparaîtront pas suite à l'application d'une tension ou toute autre perturbation.

1. 6. Résumé

Dans les JTMs monocristallines, les calculs montrent l'apparition d'un transport multi-canal lié aux différents états de Bloch des électrodes ferromagnétiques. Chaque canal est associé à un spin, une symétrie et un vecteur d'onde. En se plaçant dans un modèle de transport balistique et cohérent, on suppose la conservation de ces grandeurs durant le processus tunnel. Un état injecté ne pourra être transmis à travers la barrière que s'il existe un état de même spin et symétrie dans la contre-électrode. Dans le régime asymptotique des barrières épaisses, on peut se limiter à l'analyse du transport en $k_{//} = 0$. En s'attachant au couplage entre les états métalliques disponibles et les états évanescents dans la barrière, cela se traduit, pour le système Fe/MgO/Fe(001), par :

- une forte conductance P dominée par la propagation des états de Bloch Δ_1 dont l'évanescence est la plus faible dans le MgO.
- une conductance AP très faible due à l'absence d'états Δ_1 dans les spins minoritaires. Les autres états disponibles subissent une importante évanescence dans le MgO.
- le caractère demi-métallique du *bcc* Fe(001) dans la direction Δ et pour la symétrie Δ_1 conjugué au filtrage préférentielle de cette symétrie dans le MgO, est propice à l'apparition d'un effet TMR géant.
- l'activation possible d'un état résonant de surface appartenant à la symétrie Δ_1 peut engendrer une forte augmentation de la conductance AP et donc une diminution de la TMR aux alentours de 0.2 V. Il n'a cependant pas d'impact sur l'effet TMR à tension nulle.

En revanche, dans le régime des faibles épaisseurs de barrière, on ne peut plus se restreindre au transport en $k_{//} = 0$. Cela rend la modélisation du transport beaucoup plus complexe. De plus, la contribution des états de résonance minoritaires situés en $k_{//} \neq 0$

devient importante et résulte principalement en une augmentation de la conductance AP. Aussi, l'effet TMR est-il fortement réduit. L'optimisation de l'épaisseur de barrière est donc un paramètre clé pour l'obtention de fortes valeurs de TMR.

1. 7. Résultats expérimentaux

Ne seront abordés dans ce paragraphe que les résultats de transport, l'élaboration et la structuration des échantillons étant rappelées dans l'annexe. Les résultats présentés ont été obtenus sur des JTM ayant la structure suivante : MgO (substrat) / MgO (10 nm) / Fe (45 nm) / MgO (3 nm) / Fe (10 nm) / Co (20 nm) / Pd (10 nm) / Au (10 nm). Brièvement, la couche de MgO déposée directement sur le substrat de MgO est utilisée pour piéger tout polluant résiduel que le traitement thermique du substrat n'aurait pas suffi à éliminer. La couche de Co permet de durcir magnétiquement l'électrode supérieure de Fe pour obtenir des électrodes magnétiquement indépendantes et donc deux champs de retournement distincts. La bicouche Pd/Au est quant à elle utilisée comme couche de protection pour prévenir l'échantillon de toute oxydation ultérieure. L'épaisseur de la barrière tunnel de MgO égale à 3 nm est optimisée pour obtenir le maximum de TMR expérimental mesurable dans ce système.

Dans toutes les mesures présentées dans la suite, le champ magnétique extérieur est appliqué dans le plan des couches selon l'axe facile [100] du *bcc* Fe(001). Pour précision, les mesures en configuration P (notées P) ont été effectuées à ± 1000 Oe et en configuration AP (notées AP) à ± 100 Oe après saturation à ∓ 1000 Oe. On ne présente ici que les mesures à température ambiante (300 K).

La convention utilisée pour les mesures en tension est la suivante : en tension positive, on injecte les électrons de l'électrode de Fe inférieure vers l'électrode de Fe supérieure. Par conséquent, en tension négative, on sonde les états disponibles de l'électrode inférieure.

La figure 1.12 représente la variation en tension de la TMR typique du système Fe/MgO/Fe(001) avec en encart sa réponse en champ. A tension nulle, l'effet TMR est de 180 %, correspondant à l'état de l'art de ce que l'on peut expérimentalement obtenir.

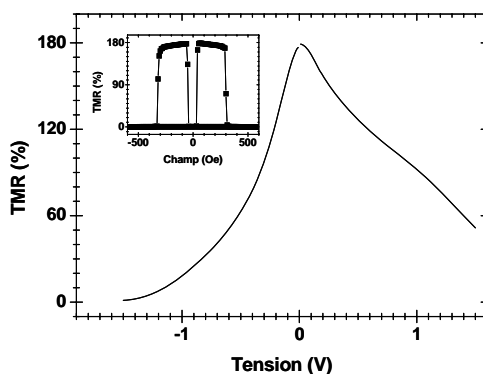


Figure 1.12 : Variation en tension de la TMR dans une JTM Fe/MgO/Fe(001). En encart : réponse en champ.

En théorie, les interfaces supérieure et inférieure avec la barrière sont strictement identiques. La dépendance en tension devrait donc être équivalente quelque soit la polarité du courant. Néanmoins, expérimentalement, lorsque la tension augmente la TMR chute rapidement avec une perte plus accentuée de signal en tension négative. Cette asymétrie expérimentale peut s'expliquer par la qualité inégale des interfaces Fe/MgO et MgO/Fe [31]. Le traitement thermique effectué après le dépôt de la

couche de Fe inférieure a pour effet non seulement d'augmenter la cristallinité de la couche mais également d'aplanir sa surface en offrant des terrasses de 100 nm de large [14]. Cela permet d'obtenir une très haute qualité de l'interface inférieure avec une rugosité pic à pic et RMS ne dépassant pas 0.5 nm et 0.06 nm, respectivement [14]. L'interface inférieure de la jonction peut donc être considérée comme « parfaite ». La croissance de MgO sur Fe se fait couche par couche. Cependant, la rugosité de la couche de MgO augmente avec son épaisseur ; par exemple, la rugosité RMS passe à 0.1 nm pour 2 nm de MgO déposés. Aussi la qualité de l'interface supérieure sera-t-elle diminuée, relativement [14]. Par ailleurs, l'apparition de dislocations est inévitable dans le régime d'épaisseur de barrière utilisé (14 ML) (voir § 1.1.3). Ces défauts structuraux ainsi que des fautes d'empilement entraînent une brisure locale de la symétrie de l'empilement et deviennent autant de sites diffuseurs pour les électrons incidents.

En gardant cela à l'esprit, nous allons nous placer dans les modèles théoriques développés pour les systèmes « tout épitaxié » et appliquer les arguments de symétrie qui ont été exposés plus haut aux résultats expérimentaux que nous avons obtenus. Pour rappel, les calculs *ab-initio* sont effectués pour des systèmes à l'équilibre c'est-à-dire sans tension appliquée. Une première approximation raisonnable consiste à considérer que lorsqu'une tension est appliquée sur la jonction, la chute de tension se fait de façon continue sur l'isolant laissant la structure électronique des électrodes ferromagnétiques inchangée. Nonobstant l'impact certain sur la structure électronique de l'isolant, nous allons donc supposer que l'application d'une tension $|V|$ n'aura pour effet majeur que de déplacer les niveaux de Fermi des électrodes entre eux d'une énergie $|eV|$. Ainsi, dans un modèle de transport balistique et cohérent, un électron incident d'énergie E_F sondera les états électroniques disponibles situés à $E_F + eV$ dans la contre-électrode.

La figure 1.13 représente les conductances dynamiques dérivées des caractéristiques courant-tension pour chaque état magnétique. En remarque, ces mesures sont des mesures de conductances totales pour chaque configuration magnétique. Elles rendent quantitativement impossible la distinction entre par exemple le canal majoritaire $G^{\uparrow\uparrow}$ et le canal minoritaire $G^{\downarrow\downarrow}$ contribuant tous deux à la conductance P : $G_P = G^{\uparrow\uparrow} + G^{\downarrow\downarrow}$. De la même manière $G_{AP} = G^{\uparrow\downarrow} + G^{\downarrow\uparrow}$. Les contributions des différentes symétries d'états Δ_i sont également sommées. L'interprétation restera donc purement qualitative.

La variation en tension presque parabolique de la conductance P est beaucoup plus contenue aux faibles tensions que celle relative à G_{AP} . En tension négative, G_{AP} augmente fortement, offrant une variation plus timide en tension positive. Ces effets sont plus prononcés lorsque l'on regarde les

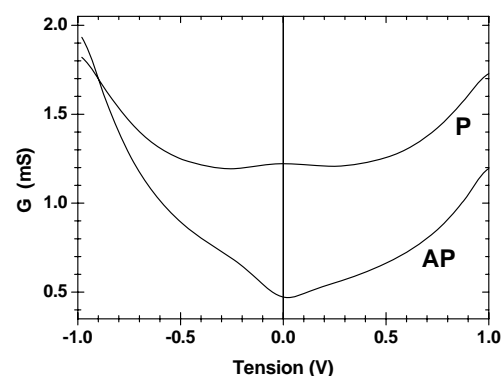


Figure 1.13 : Variation en tension des conductivités dynamiques en configurations P et AP pour une JTM Fe/MgO/Fe(001).

conductances dynamiques. Néanmoins, les conductances statiques suivent la même évolution et la chute rapide de TMR ainsi que son asymétrie en tension semble directement reliée à la variation en tension de la conductance AP. Une inspection plus détaillée du comportement des conductances dans le régime des basses tensions semble donc nécessaire à une compréhension plus approfondie.

La figure 1.14 présente un agrandissement de la variation en tension des conductances dynamiques P (a) et AP (b) restreint à l'intervalle de tension ± 0.5 V. La variation de G_P dans cette fenêtre est, effectivement, très faible se limitant à environ 3 % de sa valeur à tension nulle. G_{AP} , en revanche, augmente de 90 % sa valeur à tension nulle. L'agrandissement permet, cependant de mettre en évidence des signatures particulières sur les deux courbes, désignées par des flèches. Deux minima symétriques en tension se dessinent à $|0.25|$ V dans G_P et deux points d'inflexion apparaissent à $|0.2|$ V dans G_{AP} .

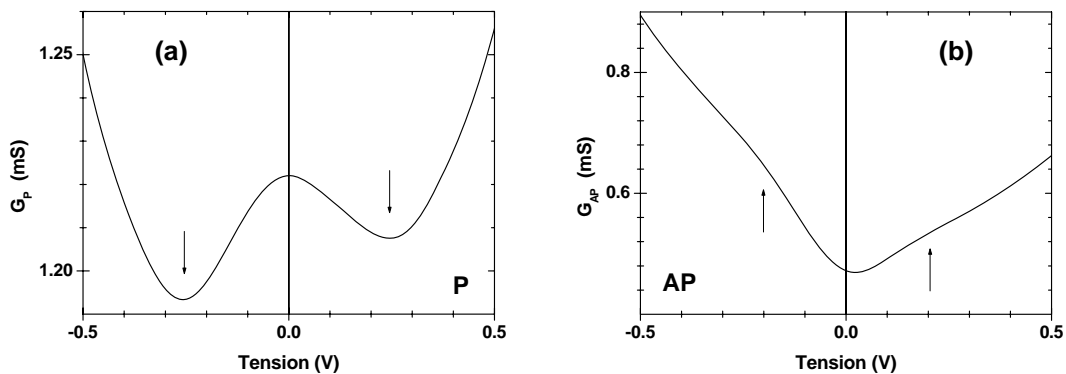


Figure 1.14 : Variation en tension restreinte à l'intervalle de tension ± 0.5 V pour (a) G_P et (b) G_{AP} . En (a), les deux flèches désignent la position de minima situés à ± 0.25 V ; en (b) les flèches montrent un point d'inflexion à ± 0.2 V.

Pour comprendre l'origine de ces signatures, nous allons nous reporter à la structure de bandes du *bcc* Fe(001) dans la direction Δ ($k_{//} = 0$) (voir fig. 1.6). Seules les symétries d'états Δ_1 et Δ_5 seront prises en compte, les autres symétries étant fortement atténuées dans l'isolant pour cette épaisseur de barrière (voir § 1.4.2).

Dans les spins majoritaires, le haut de la bande relative aux états de symétrie Δ_5 est situé à une énergie de + 0.2 eV. Par conséquent, les canaux de conduction $G_{\Delta_5}^{\uparrow\uparrow}$ et $G_{\Delta_5}^{\downarrow\uparrow}$ se ferment pour une tension appliquée supérieure à $|0.2|$ V puisque les états Δ_5 injectés ne trouvent plus d'états accepteurs ayant la même symétrie dans la contre-électrode. Pour étayer ce propos, des calculs de densité d'états ont été effectués via le code de calcul Wien2k. La

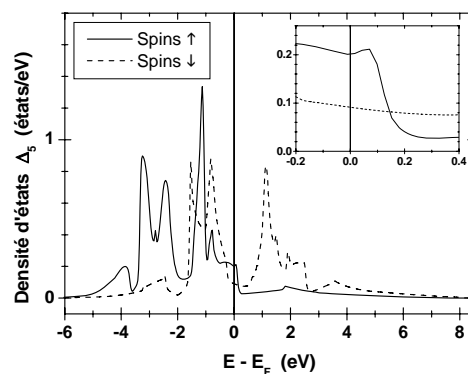


Figure 1.15 : Densité d'états Δ_5 du *bcc* Fe(001) pour les spins \uparrow et \downarrow . En encart : agrandissement sur les faibles énergies.

figure 1.15 rend compte de la densité d'états Δ_5 du *bcc* Fe(001). Même si cette densité correspond à l'intégration suivant toutes les directions, elle rend particulièrement compte de la direction Δ . On note une chute très nette de la densité d'états Δ_5^\uparrow aux abords de 0.2 eV en corrélation avec l'énergie du haut de bande Δ_5^\uparrow dans la structure de bandes du *bcc* Fe $^\uparrow$.

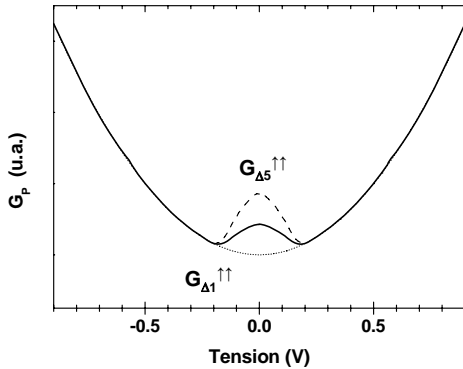


Figure 1.16 : Représentation schématique de la contribution des canaux $\Delta_1^{\uparrow\uparrow}$ et $\Delta_5^{\uparrow\uparrow}$ (courbes en pointillés) dans la conductance P (trait plein).

A tension nulle : $G_P \approx G_{\Delta_1^{\uparrow\uparrow}} + G_{\Delta_5^{\uparrow\uparrow}} + G_{\Delta_5^{\downarrow\downarrow}}$. Plus la tension augmente, plus le canal de conduction $\Delta_5^{\uparrow\uparrow}$ se réduit. Si, en première approximation, on suppose une contribution parabolique due à la conductance $\Delta_1^{\uparrow\uparrow}$, on arrive à reproduire qualitativement la forme que prend la conductance P en sommant les canaux de conduction $\Delta_1^{\uparrow\uparrow}$ et $\Delta_5^{\uparrow\uparrow}$ (fig. 1.16). La contribution du canal de conduction $\Delta_5^{\downarrow\downarrow}$ a été négligée suite à la contribution majoritaire du canal $\Delta_1^{\uparrow\uparrow}$.

signatures que celles observées dans la conductance P : une perte de conductance liée à la fermeture du canal $\Delta_5^{\downarrow\uparrow}$. Aussi, l'augmentation rapide de G_{AP} à faible tension implique-t-elle que les effets de structure électronique liés uniquement au massif ne suffisent pas à expliquer sa variation.

Cependant, un autre effet peut se coupler à la variation de G_{AP} : la contribution des états de surface résonants. Aussi, l'épaule à $|0.2|$ V peut-il également être dû à l'ouverture d'un canal de conduction venant se rajouter aux canaux de conduction déjà existants. Nous avons vu au § 1.5, que l'IRS situé à 0.2 eV au-dessus du niveau de Fermi dans les spins minoritaires appartient à la symétrie Δ_1 . L'évanescence des états Δ_1 étant la plus faible dans la barrière de MgO, sa contribution à la conductance $G_{\Delta_1}^{IRS}$ peut se révéler décisive. C'est ce que représente la figure 1.17 qui se veut une représentation schématique de la conductance AP. La somme des canaux de conduction venant du massif et de l'interface reproduit qualitativement la forme de la conductance AP.

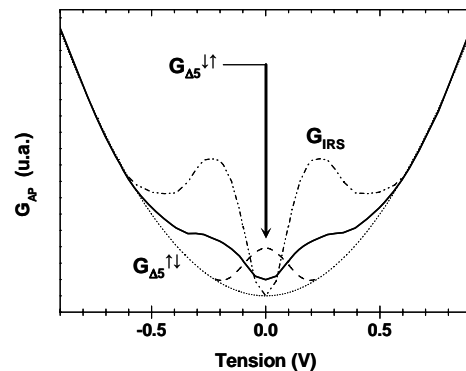


Figure 1.17 : Représentation schématique de la contribution des canaux $\Delta_5^{\downarrow\uparrow}$, $\Delta_5^{\uparrow\downarrow}$ et Δ_1^{IRS} (courbes en pointillés) dans la conductance AP (trait plein).

L'asymétrie en tension visible dans les systèmes réels peut être due, encore une fois, à l'inégale qualité des interfaces électrode/barrière inférieure et supérieure. En tension négative, les électrons injectés sondent les états disponibles de l'électrode inférieure ;

l'interface inférieure étant de meilleure qualité, les effets liés à la structure électronique y seront plus palpables et les caractéristiques tunnel exacerbées.

Voici résumées les caractéristiques tunnel relatives au système épitaxié Fe/MgO/Fe(001). En suivant les modèles théoriques développés pour le transport en $k_{//} = 0$, les résultats expérimentaux font foi d'un modèle de transport multi-canal, chaque canal étant associé à un spin et une symétrie d'états. Cela démontre la validité d'un transport balistique et cohérent. Les signatures dans les conductances correspondent à une lecture directe de la structure électronique du massif et de la surface des électrodes ferromagnétiques : fermeture des canaux de conduction $\Delta_5^{\uparrow\uparrow}$ et $\Delta_5^{\downarrow\uparrow}$ à $|0.2|$ V, ouverture d'un canal de conduction Δ_1^{RS} suite à l'activation en tension ($|0.2|$ V) de l'état résonant d'interface du Fe.

N'ayant pour seule limitation le fait qu'ils soient réels, les systèmes expérimentaux présentent des imperfections d'ordre structural qui peuvent jouer pour beaucoup sur le transport tunnel. Les résultats expérimentaux obtenus sur les JTMs élaborées au laboratoire en démontrent la haute qualité structurale et explique le fait que l'on utilise prioritairement des arguments de structure électronique pour expliquer les résultats expérimentaux.

Les modèles théoriques, si on les adapte aux mesures hors-équilibre, semblent aller dans le sens d'un filtrage en symétrie dans les électrodes ferromagnétiques. Cependant, les calculs ne sont en toute rigueur applicables qu'au système parfaitement symétrique, à l'équilibre et à tension nulle. Aussi, ne peut-on toujours pas trancher sur la réalité d'une contribution dominante des états de symétrie Δ_1 .

La valeur expérimentale de la TMR à l'équilibre est certes très élevée (180 % à température ambiante) mais elle demeure bien en-deçà des prédictions théoriques qui l'évaluent à quelques milliers de pourcents.

Le modèle de M. Jullière [3] relie la valeur de TMR à la polarisation des électrodes ferromagnétiques de chaque côté de l'isolant, selon la formule :

$$\text{TMR} = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2} \quad \text{qui, dans notre cas, devient :} \quad \text{TMR} = \frac{2P_{\text{Fe}}^2}{1 - P_{\text{Fe}}^2}$$

Un calcul direct permet donc d'évaluer la polarisation du Fe à $P_{\text{Fe}} \sim 0.7$. En étendant ce modèle à celui de J.C. Slonczweski [16], 0.7 correspond à la polarisation effective des électrons tunnel, produit de la polarisation des électrodes et d'un facteur qui dépend de la hauteur de barrière. Cette valeur n'a rien d'in vraisemblable et pourrait être reliée à la demi-métallicité du *bcc* Fe(001) dans la direction Δ par rapport aux états de symétrie Δ_1 . Cependant, rien ne met clairement ce phénomène en évidence dans les systèmes réels puisqu'en oubliant toute notion de filtrage en symétrie une polarisation effective élevée permet de rendre compte de la valeur de TMR. La TMR expérimentale finie est-elle la conséquence d'un filtrage en symétrie imparfait ou d'une absence de ce dernier ?

Chapitre Deuxième – Du filtrage en symétrie

Nombre de résultats expérimentaux ont vu le jour suite aux prédictions théoriques [7,8,25] faites sur le système épitaxié Fe/MgO/Fe(001) [9,10,32]. Tous présentent des amplitudes de TMR record allant jusqu'à 180 % à température ambiante pour des systèmes de haute qualité cristalline.

Les résultats des calculs *ab-initio* ont été obtenus sur des systèmes à l'équilibre et à température nulle où l'amplitude de la TMR est le fruit d'un transport multi-canal, conséquence directe d'un filtrage en symétrie des électrons tunnel. Cependant, expérimentalement, la simple mesure de l'effet magnétorésistif à tension nulle ne peut à elle seule explicitement démontrer la validité de ce modèle. Face aux valeurs prononcées de TMR, on ne peut raisonnablement que conclure à une forte polarisation effective qui se monterait à 0.7 pour Fe/MgO(001).

Une autre expérience ne permettant toujours pas de trancher, mais allant dans le sens des modèles théoriques, est celle faite par S. Yuasa *et al.* [33]. Ces derniers ont mesuré un effet magnétorésistif géant suite à l'insertion de *bcc* Co(001) à l'interface Fe/MgO. La structure de bandes calculée du *bcc* Co(001) dans la direction Δ est très similaire à celle du *bcc* Fe(001) à la différence près que, dans les spins majoritaires, il n'y a pas d'états de symétrie Δ_5 au niveau de Fermi. Par conséquent, en se basant sur le modèle de filtrage en symétrie, la fermeture des canaux de conduction $\Delta_5^{\uparrow\uparrow}$, $\Delta_5^{\uparrow\downarrow}$ et $\Delta_5^{\downarrow\uparrow}$ entraîne une augmentation du contraste entre conductances P et AP ; la TMR se hisse à 270 % en accord qualitatif avec les calculs *ab-initio* [34]. Cependant, une fois de plus, une telle valeur de TMR témoigne d'une polarisation effective plus élevée (± 0.82) de Co/MgO(001) par rapport à Fe/MgO(001).

Les premiers signes éventuels du filtrage en symétrie se dessinent en s'attachant à la variation en tension de la TMR et donc des conductances P et AP. Comme nous l'avons vu au chapitre premier, les formes particulières des conductances que le modèle des électrons libre échoue à justifier peuvent s'expliquer en se permettant d'ouvrir le modèle théorique du filtrage en symétrie au cas hors équilibre. L'apparition de minima locaux dans G_p et de points d'inflexion dans G_{AP} aux alentours de $|0.2|$ V serait ainsi la conséquence de la fermeture des canaux de conduction $\Delta_5^{\uparrow\uparrow}$ et $\Delta_5^{\downarrow\uparrow}$ et de l'ouverture du canal de conduction Δ_1^{IRS} .

L'enjeu de l'étude qui va être développée ici est de mettre en évidence le filtrage en symétrie de façon non ambiguë. Cette étude est issue d'une étroite collaboration entre notre laboratoire et l'institut de physique et chimie des matériaux de Strasbourg (IPCMS). Si les larges valeurs de TMR obtenues expérimentalement sont effectivement dues au filtrage des électrons de symétrie Δ_1^{\uparrow} en $k_{//} = 0$, bloquer ce canal de conduction devrait avoir un effet drastique sur les propriétés de transport. Pour ce faire, il faut donc être capable de rajouter une pièce au système standard Fe/MgO/Fe(001) qui n'agirait que sur la propagation des électrons de conduction Δ_1^{\uparrow} tout en laissant le reste intact autant du côté structural, magnétique qu'électronique. La première partie de ce chapitre est réservée à la présentation du chrome qui apparaît être un bon candidat pour cette étude. Dans une deuxième partie sera présenté et discuté l'impact de l'insertion de chrome à l'interface sur les caractéristiques tunnel. Puis, partant de ces résultats, l'étude permettant la mise en évidence du filtrage en symétrie dans les systèmes épitaxiés sera présentée.

2. 1. Le chrome Cr(001) : étude de fiabilité

2. 1. 1. Croissance

Le chrome (Cr) stabilise, tout comme le fer, dans une structure cubique centrée de paramètre de maille $a_{Cr} = 0.291$ nm. L'épitaxie du Cr(001) sur Fe(001) se fait suivant la relation Fe(001)[100] || Cr(001)[100] et celle du MgO(001) sur Cr(001) selon Cr(001)[110] || MgO(001)[100] (fig. 2.1(a)). On retrouve la rotation de 45° de la maille de MgO dont l'axe [100] se superpose à l'axe [110] du Cr(001) entraînant un désaccord paramétrique entre mailles de l'ordre de 2.3 %. Le désaccord paramétrique entre les mailles de Fe(001) et Cr(001) n'est que de 1.4 %. Ces valeurs sont faibles et, pour note, inférieures au désaccord entre les mailles de Fe(001) et de MgO(001) évalué à 3.7 %.

Du point de vue de la croissance, l'insertion de *bcc* Cr(001) à l'interface Fe/MgO(001) laisse la symétrie de l'empilement intacte. Ce paramètre est important car il permet *a priori* de garder un mode de transport balistique et cohérent : conservation de k et de la symétrie des états de Bloch.

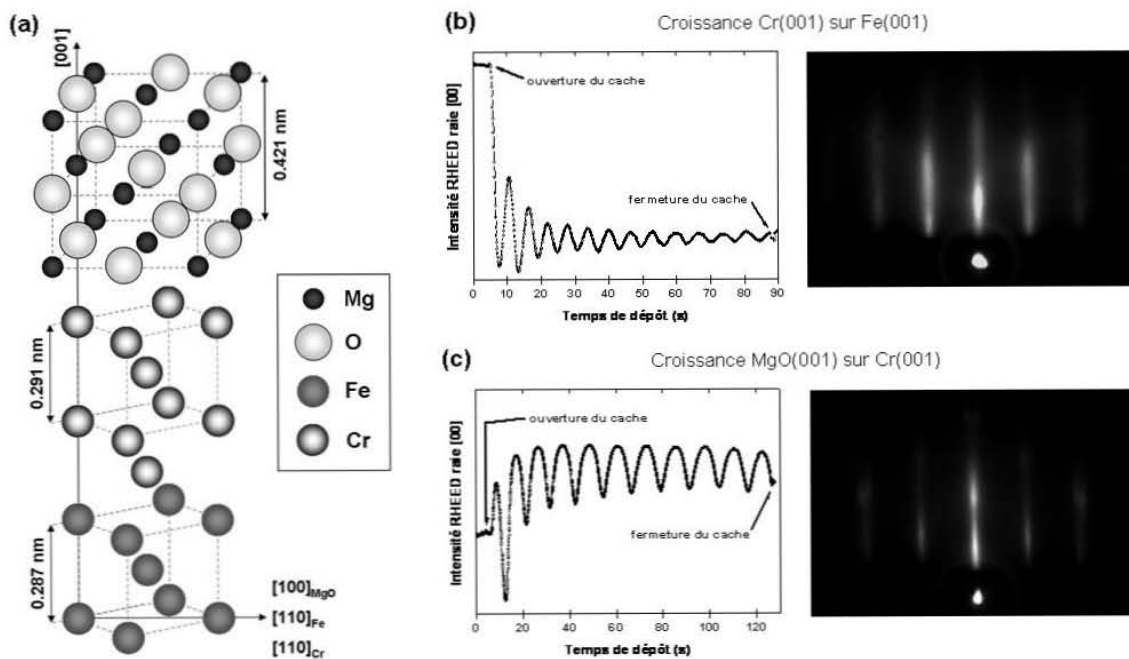


Figure 2.1 : (a) Structure cristallographique de l'empilement Fe/Cr/MgO(001). (b) Croissance Cr(001) sur Fe(001) : oscillations d'intensité de RHEED sur la raie [00] du Fe et clichés RHEED selon [100]_{Cr}. (c) Croissance MgO(001) sur Cr(001) : oscillations d'intensité de RHEED sur la raie [00] du Cr et clichés RHEED selon [110]_{MgO}.

Le suivi *in situ* par diffraction d'électrons à haute énergie (RHEED) dans le bâti d'épitaxie par jets moléculaires permet de vérifier la croissance couche par couche du *bcc* Cr(001) sur le *bcc* Fe(001) ainsi que celle du MgO(001) sur le *bcc* Cr(001). Ce mode de croissance assure un contrôle précis de l'épaisseur de *bcc* Cr(001) déposée à l'interface

Fe/MgO(001). Les clichés RHEED pris en fin de dépôt renforcent l'idée de la haute qualité cristalline de ce système (fig. 2.1(b) et (c)).

2. 1. 2. Magnétisme

La figure 2.2 montre la réponse du produit RA suivant le champ magnétique extérieur appliqué mesurée sur un échantillon Fe / Cr (t_{Cr}) / MgO / Fe / Co.

Le produit RA correspond au produit de la résistance électrique (R) de la jonction tunnel par la surface (A) de cette dernière. A gauche, le cycle magnéto-résistif d'une jonction standard sans Cr à l'interface Fe/MgO ($t_{Cr} = 0$ ML) et, à droite, celui d'une jonction avec 8 monocouches de Cr ($t_{Cr} = 8$ ML). Le champ magnétique est appliqué dans le plan des couches et parallèlement à la direction de facile aimantation [100] du *bcc* Fe(001). Des épaisseurs de Cr allant de 0 ML à 10 ML ont été testées ; quelque soit le nombre de monocouches déposées, les propriétés magnétiques du système restent inchangées par rapport à un système standard sans Cr.

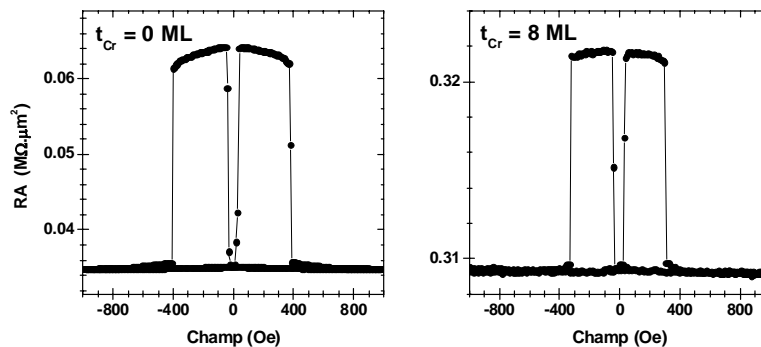


Figure 2.2 : Cycles magnéto-résistifs de jonctions Fe/Cr(t_{Cr})/MgO/Fe/Co pour $t_{Cr} = 0$ ML (gauche) et $t_{Cr} = 8$ ML (droite).

Sur les deux courbes, on retrouve :

- le retournement abrupt de l'aimantation de la couche de *bcc* Fe(001) à faible champ (30 Oe),
- un large plateau où les aimantations sont en configuration AP offrant une large fenêtre d'opération,
- le retournement abrupt de l'aimantation de la bicouche dure Fe/Co à plus fort champ appliqué (320 Oe).

La seule différence nette entre ces deux cycles peut se faire au niveau de la valeur du produit RA, plus importante pour des JTM avec *bcc* Cr(001) à l'interface. L'explication en sera donnée ultérieurement (voir § 2.3.1).

2. 1. 3. Propriétés électroniques

La structure électronique du *bcc* Cr(001) dans la direction Δ présente l'intérêt de ne pas avoir d'états de symétrie Δ_1 au niveau de Fermi. Comme l'indique la figure 2.3(a), le bas de la bande Δ_1 est situé à 1.1 eV au-dessus du niveau de Fermi. Par conséquent, dans un

modèle de filtrage en symétrie, des états incidents de symétrie Δ_1^\uparrow ne trouveront pas d'états accepteurs dans la couche de Cr. A l'interface Fe/Cr, ils seront en partie réfléchis et pourront, en partie, être transmis par effet tunnel. Le *bcc* Cr(001) joue le rôle d'une barrière de potentiel pour les électrons de conduction Δ_1^\uparrow de hauteur $\Phi_{Cr} = 1.1$ eV et d'épaisseur t_{Cr} (fig. 2.3(b)).

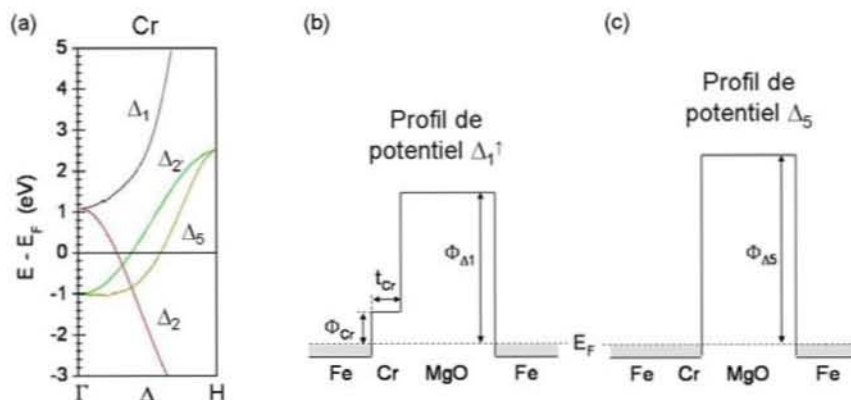


Figure 2.3 : (a) Structure de bandes du *bcc* Cr(001) dans la direction de haute symétrie Δ . (b) et (c) Représentation schématique des profils de potentiel perçus, respectivement, par les électrons de conduction Δ_1^\uparrow et Δ_5 dans une JTM Fe/Cr/MgO/Fe(001).

En revanche, les autres symétries d'états (Δ_5 , Δ_2' , Δ_2) étant présentes au niveau de Fermi dans le *bcc* Cr(001), les états incidents de symétrie correspondante ne verront pas de barrière de potentiel supplémentaire. En particulier, les états de symétrie Δ_5 , responsables de la conduction en AP, devraient pouvoir se propager librement à travers le Cr (fig. 2.3(c)).

En conclusion, le *bcc* Cr(001) :

- ne brise pas la symétrie de l'empilement lorsque des couches sont insérées à l'interface inférieure du système standard Fe/MgO/Fe(001),
- croît couche par couche sur une surface de *bcc* Fe(001) préalablement préparée, permettant un contrôle précis de l'épaisseur déposée et offrant une interface de haute qualité avec le MgO(001),
- ne change pas les propriétés magnétiques du système standard
- a une structure électronique appropriée pour agir sur le canal $\Delta_1^{\uparrow\uparrow}$.

Ces quatre conditions réunies valident l'utilisation du *bcc* Cr(001) pour notre étude.

2. 2. Recherche bibliographique

L'insertion d'une fine couche de chrome à l'interface entre un matériau ferromagnétique et la barrière isolante dans des jonctions tunnel a déjà fait l'objet de plusieurs études expérimentales. Deux études peuvent notamment servir de point de comparaison et vont être détaillées en guise de préambule à la présentation de nos résultats expérimentaux. Dans les études suivantes, il est à noter qu'il n'y a *a priori* pas de

considérations de symétries puisque les jonctions sont à base de barrière d'alumine (Al_2O_3) amorphe.

2. 2. 1. Effets d'interface

En 2001, P. LeClair *et al.* ont étudié des jonctions tunnel réalisées par pulvérisation cathodique dont la structure est composée d'un empilement $\text{Co}/\text{M}_1/\text{M}_2/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ où M_1 et M_2 sont des métaux tels que Co, Cu, Cr et Ru [35]. Ils ont montré en jouant sur les couples M_1 et M_2 que dans un système polycristallin, la densité d'états à l'interface déterminait les propriétés de transport tunnel dépendant du spin.

Pour le démontrer de façon expérimentale, les auteurs ont inséré du Cr à l'interface ferromagnétique/isolant dans le système $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$. La forte asymétrie à l'interface entre les bandes du Co et du Cr entraîne une chute exponentielle de la TMR avec l'épaisseur de Cr (fig. 2.5). Le seul ajout d'une à deux monocouches de Cr (0.15 nm à 0.3 nm) suffit à réduire le signal de TMR à zéro. Réintroduire une fine couche de Co entre le Cr et l' Al_2O_3 ($\text{Co}/\text{Cr}/\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$)

permet cependant de retrouver 75 % de la TMR de la jonction $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ initiale. Il devient alors évident que les densités d'états à l'interface jouent un rôle primordial.

L'étude des mécanismes de transport dans les métaux purs faiblement dopés en impuretés permet de comprendre les mécanismes à l'origine de cette chute de TMR. Lorsque des impuretés de Cr ou de V sont insérées dans une matrice de Fe ou des impuretés de Cr dans une matrice de Co ou de Ni, les bandes d de l'impureté sont repoussées au-dessus du niveau de Fermi du matériau hôte. La diffusion des électrons majoritaires s-p sur les états d du Cr, libres juste au-dessus du niveau de Fermi, entraîne une localisation de ces électrons sur les sites du Cr. Cette localisation engendre une réduction importante de la densité d'états majoritaires s-p, connue pour être responsable du courant tunnel dans les jonctions à base d' Al_2O_3 . Aussi, la chute de TMR est-elle d'autant plus rapide que la densité d'états majoritaire des états virtuels liés à l'impureté est grande ; la diminution est plus vive avec des impuretés de Cr et de Ru que de Cu.

2. 2. 2. Effets d'interface intrinsèques

Distinguer un effet d'interface intrinsèque d'effets structuraux tels qu'une forte rugosité d'interface ou la présence de défauts reste une tâche difficile. Pour clarifier la situation, T. Nagahama *et al.*, se sont focalisés en 2005 sur l'étude d'un système « mixte » réalisé par épitaxie par jets moléculaires combinant une électrode polycristalline d'un alliage FeCo, une barrière d'alumine amorphe et une électrode monocristalline de *bcc* Fe(001) sur laquelle a été déposée une couche de *bcc* Cr(001) d'épaisseur variable [36].

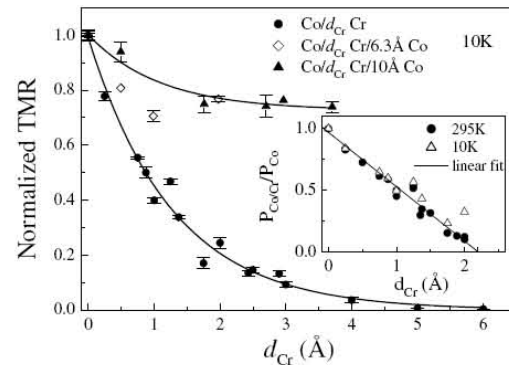


Figure 2.5 : TMR normalisée en fonction de l'épaisseur de Cr dans le système $\text{Co}/\text{Cr}(d_{\text{Cr}})/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ à 10 K. Source [35].

L'utilisation d'une électrode monocristalline présente l'avantage de réduire la rugosité d'interface à l'échelle du plan atomique. Le mode de croissance couche par couche du Cr(001) sur Fe(001) permet de préserver cette qualité d'interface. Ce système est donc viable pour discriminer des effets intrinsèques d'effets structuraux.

De la même manière que l'étude précédente, la TMR disparaît presque totalement dès l'ajout de deux plans atomiques de Cr(001) à l'interface Fe(001)/Al₂O₃ (fig. 2.6). L'explication donnée par les auteurs repose sur une forte diffusion des électrons tunnel à l'interface

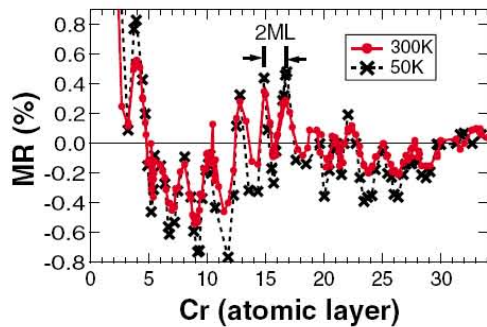


Figure 2.6 : Evolution de l'amplitude de TMR en fonction du nombre de monocouches de Cr(001) à l'interface dans le système Fe(001) / Cr(001) / Al₂O₃ / FeCo. Source [36].

Cr(001)/Al₂O₃. Dans ce cas précis, l'interprétation retenue tient compte du fait que le Cr(001) ne possède pas d'électrons de symétrie Δ_1 au niveau de Fermi. Or, d'après les auteurs, les électrons émis par l'injecteur (électrode polycristalline FeCo / Al₂O₃), qui sont des électrons de type s et donc de symétrie Δ_1 , ne trouveront d'états disponibles dans le Cr que s'ils subissent une diffusion.

Cette analyse est toutefois quelque peu restrictive puisqu'une autre explication reposerait sur le fait que le Cr joue le rôle d'une barrière tunnel supplémentaire pour la symétrie Δ_1 ; les électrons de symétrie Δ_1 passeraient par effet tunnel de l'électrode

de FeCo polycristalline à l'électrode de Fe(001) à travers une barrière de Cr/Al₂O₃. De plus, l'injecteur étant polycristallin, il est fort probable que ce dernier fournisse des électrons s de différentes symétries (Δ , Σ , etc.) et que le canal de conduction Δ_1 ne soit que l'un des canaux activés pour le transport tunnel. Si aucun filtrage en symétrie n'est fait par l'Al₂O₃, on revient alors dans le cadre de l'étude de P. LeClair *et al.* avec l'avantage de mieux contrôler le magnétisme de la couche de Cr. Par nature, le Cr possède des propriétés antiferromagnétiques couche par couche. La croissance couche par couche du Cr(001) permet de révéler ces propriétés. Ainsi, la polarisation des électrons tunnel sera oscillante avec une période d'oscillations correspondant à la période magnétique du Cr(001) soit 2 monocouches atomiques. Les oscillations observées dans la TMR traduisent l'antiferromagnétisme du Cr(001) (fig. 2.6). La TMR est sensible à la direction du moment magnétique porté par la couche atomique de Cr(001) à l'interface.

Dans les deux études exposées ci-dessus, les interprétations proposées reposent sur un mécanisme de diffusion à l'interface qui entraîne une chute rapide de la TMR en fonction de l'épaisseur de Cr insérée à l'interface. Un ou deux plans atomiques suffisent à faire disparaître presque totalement le signal.

En revanche, dans les systèmes totalement épitaxiés même si les effets liés à l'interface peuvent avoir des conséquences importantes sur le transport, les états du volume prennent une part majeure dans les mécanismes tunnel. Quelle est alors l'influence d'une fine couche de Cr insérée à l'interface dans un système où la symétrie de l'empilement est conservée et où le transport balistique et cohérent domine ?

2. 3. Résultats expérimentaux

Tous les résultats présentés dans cette section ont été obtenus sur des échantillons élaborés par épitaxie par jets moléculaires. Les JTMs mesurées ont la structure suivante :

MgO // MgO (10 nm) / Fe (26 nm) / Cr (t_{Cr}) / MgO (3 nm) / Fe (6 nm) / Co (20 nm) / couche de protection.

Contrairement à la procédure standard décrite dans l'annexe, seul un recuit a été effectué après le dépôt de l'électrode inférieure de *bcc* Fe(001) pour améliorer la planéité de la surface et ainsi assurer la croissance couche par couche du *bcc* Cr(001). Aucun recuit supplémentaire n'a été fait dans le souci de ne pas altérer la couche de Cr(001) et d'éviter toute inter-diffusion dans les couches voisines [37,38]. Le dépôt du Cr(001) s'est fait à température ambiante et à l'aide d'un cache motorisé. Ce dernier permet d'avoir, sur un même échantillon, des jonctions avec électrode inférieure, barrière tunnel et électrode supérieure identiques pour des épaisseurs variables de Cr. L'épaisseur de la barrière tunnel de MgO (3 nm) a été choisie pour se placer dans le régime où la conduction domine en $k_{//} = 0$ et où l'efficacité de filtrage des électrons de conduction Δ_1 est importante.

Les mesures électriques ont été faites à température ambiante (300 K) via un système de mesure en deux pointes sur des jonctions carrées de taille latérale variant de 10 à 40 μm .

2. 3. 1. TMR et conductances à l'équilibre

Les mesures de TMR ou de conductances à tension nulle étant expérimentalement irréalisables, les mesures dites « à l'équilibre » ont été réalisées en appliquant une très faible tension de 10 mV.

La figure 2.7(a) montre la variation de TMR en fonction de l'épaisseur de Cr(001) (t_{Cr}) à l'interface Fe/MgO. La TMR est normalisée par rapport à sa valeur pour $t_{Cr} = 0$ ML qui vaut approximativement 100 %. Cette valeur de TMR est raisonnable compte tenu de l'absence de recuit après le dépôt de l'électrode de Fe supérieure.

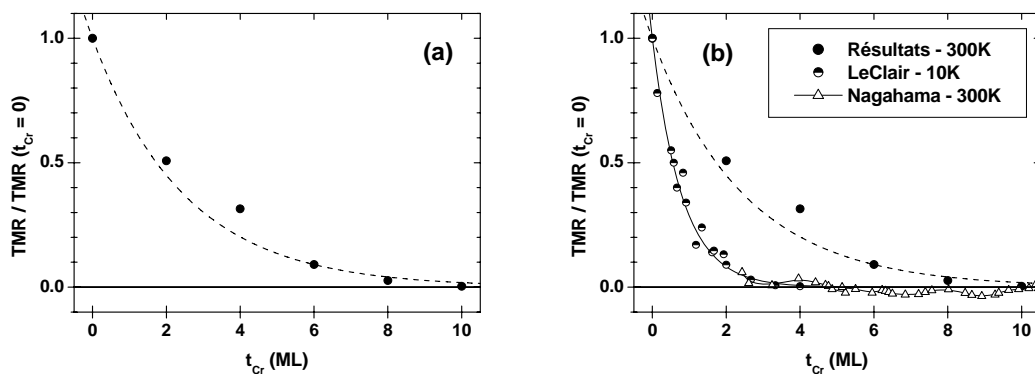


Figure 2.7 : (a) TMR normalisée en fonction de l'épaisseur de Cr(001) dans des JTMs épitaxiées Fe / Cr (t_{Cr}) / MgO / Fe(001) ; la courbe en pointillés est un guide visuel. (b) Comparatif entre (a) (Résultats - 300K) et les systèmes Co / Cr (t_{Cr}) / Al₂O₃ / Co (LeClair - 10K) et Fe(001) / Cr(001) (t_{Cr}) / Al₂O₃ / FeCo (Nagahama - 300K).

L'insertion de Cr(001) à l'interface Fe/MgO(001) entraîne une diminution de la TMR. Cette décroissance est lente comparée aux études présentées dans la section précédente (fig. 2.7(b)). Pour $t_{Cr} = 4$ ML, on conserve encore 35 % de la TMR totale, là où elle est réduite à zéro dans les JTMs de P. LeClair et T. Nagahama.

Compte-tenu du fait que la symétrie à travers l'empilement est conservée dans notre système expérimental, nous allons rester dans un modèle de transport balistique et cohérent. Les résultats expérimentaux seront interprétés en utilisant les modèles de transport développés pour les systèmes totalement épitaxiés.

Aussi, l'atténuation plus réservée de la TMR va-t-elle dans le sens d'une contribution forte des états du volume qui sont moins sensibles à une modification du potentiel de surface. Si seule importait l'interface, la TMR chuterait tout aussi rapidement que dans les exemples de la figure 2.7(b).

La TMR étant une mesure directe du contraste entre les conductances P et AP, l'atténuation de la TMR doit trouver son origine dans les variations des conductances avec l'épaisseur de Cr. La figure 2.8 rend compte de l'évolution de G_P et G_{AP} à l'équilibre où les conductances sont définies comme l'inverse de la résistance électrique : $G_{P(AP)} = 1/R_{P(AP)}$. Les valeurs de G_P et G_{AP} ont été normalisées par rapport à la valeur de G_P à $t_{Cr} = 0$ ML. Sur la figure 2.8(a), la courbe en pointillés est un guide visuel. Sur la figure 2.8(b), en revanche, elle représente $G_{AP}/G_P(t_{Cr} = 0) = 0.5$. Cette droite correspond à la valeur de départ de G_{AP} pour $t_{Cr} = 0$ ML et TMR = 100 %.

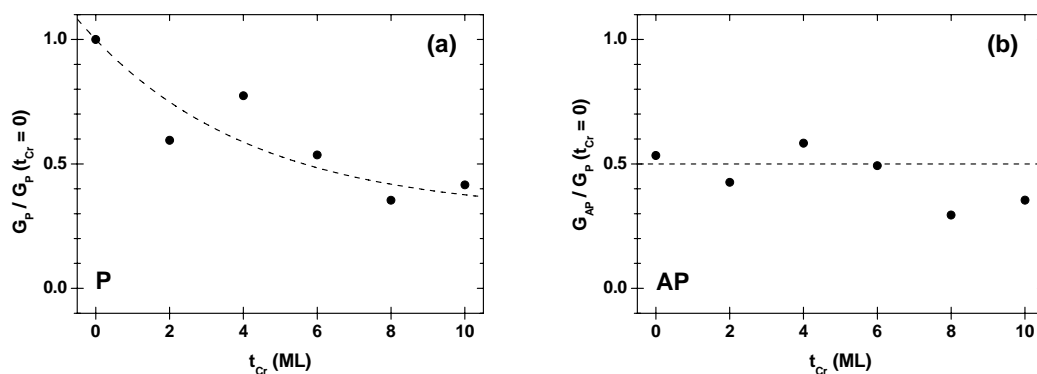


Figure 2.8 : Variation de G_P (a) et G_{AP} (b) en fonction de l'épaisseur de Cr(001) dans des JTMs épitaxiées Fe/Cr(t_{Cr})/MgO/Fe(001) ; la courbe en pointillés en (a) est un guide visuel, en (b) la lignes en pointillés correspond à $G_{AP} / G_P(t_{Cr} = 0) = 0.5$.

L'épaisseur de Cr augmentant, G_P perd jusqu'à 60 % de sa valeur initiale à $t_{Cr} = 10$ ML, alors que G_{AP} reste proche de sa valeur initiale (ligne en pointillés) jusqu'à $t_{Cr} = 6$ ML puis diminue sensiblement pour des épaisseurs de Cr plus importantes ; à $t_{Cr} = 10$ ML, la valeur de G_{AP} a perdu 34 % de sa valeur initiale.

Le bcc Cr(001) est susceptible de par sa structure électronique, de modifier le profil de potentiel perçu par les électrons Δ_1^\uparrow (fig. 2.3(b)). La conductance P est dominée par la propagation des électrons Δ_1^\uparrow . L'existence d'un filtrage en symétrie équivaldrait alors à une forte diminution de G_P lors de l'insertion d'une fine couche de Cr(001). En revanche, en

configuration AP la conductance ne devrait subir en première approximation aucune modification majeure puisque dominée par la propagation des états de symétrie Δ_5 qui sont présents au niveau de Fermi dans le *bcc* Cr(001) (fig. 2.3(c)). Ces considérations sont en accord avec les résultats expérimentaux.

La diminution de G_p n'est certes pas exponentielle comme attendu au passage d'une barrière tunnel. Mais il faut rappeler une nuance importante : avec une barrière de potentiel pour les électrons Δ_1^\uparrow , la conductance qui doit décroître de façon exponentielle est la conductance $\Delta_1^{\uparrow\uparrow}$ ($G_{\Delta_1}^{\uparrow\uparrow}$) et non G_p . En effet, dans G_p , d'autres canaux de conduction sont ouverts comme les canaux $\Delta_5^{\uparrow\uparrow}$ et $\Delta_5^{\downarrow\downarrow}$. D'autre part, se baser uniquement sur ces trois seuls canaux de conduction sous-entendrait un système presque parfait. Or, si le canal dominant est affaibli, on ne peut plus négliger la part de canaux de conduction provenant par exemple de la diffusion d'interface ou encore d'électrons ayant un vecteur d'onde $k_{//} \neq 0$. Il est alors difficile de discriminer le poids de ces contributions « parallèles » pour mettre en évidence la décroissance exponentielle attendue de $G_{\Delta_1}^{\uparrow\uparrow}$. Néanmoins, la chute effective de G_p montre la présence d'une barrière de potentiel supplémentaire pour les électrons Δ_1^\uparrow dans le *bcc* Cr(001).

En comparant les évolutions simultanées de G_p et G_{AP} , on retrouve bien la décroissance de la TMR présentée en figure 2.7(a). L'épaisseur de Cr(001) augmentant, les valeurs de G_p s'alignent sur celles de G_{AP} , entraînant la chute observée de TMR.

L'épaisseur de Cr(001) devenant au fur et à mesure appréciable à l'interface, l'effet de sa structure électronique ne va plus se restreindre à diminuer la contribution des électrons Δ_1^\uparrow . L'effet supplémentaire de la densité d'états du Cr(001) n'est pas forcément palpable dans la variation de G_p parce que noyé dans la réduction du canal de conduction dominant $\Delta_1^{\uparrow\uparrow}$. En revanche, au-delà de $t_{Cr} = 6$ ML, la conductance G_{AP} qui restait jusque là proche de sa valeur initiale, amorce une descente. Il se pourrait donc que le Cr(001) agisse également sur les canaux de conduction liés à la propagation des états de symétrie Δ_5 et puisse en conséquence être à l'origine de la diminution de G_{AP} à $t_{Cr} > 6$ ML.

Bien entendu, ces considérations doivent également avoir des effets sur la conductance G_p mais qui restent, semble-t-il, invisibles en se limitant aux mesures des valeurs de conductances à l'équilibre.

2. 3. 2. Etude de l'évolution des conductances en tension

La figure 2.9 montre la variation en tension des conductances dynamiques P (a) et AP (b) en tension, définies comme : $G_{P(AP)} = dI_{P(AP)}/dV$. Par convention, en tension négative, les électrons sont injectés dans l'électrode inférieure Fe(001)/Cr(001) (t_{Cr}).

A $t_{Cr} = 0$ ML, on retrouve la signature typique des jonctions standards Fe/MgO/Fe(001). La conductance P présente deux minima à basse tension symbolisés par les flèches sur l'agrandissement de la figure 2.9(a). Ces minima témoignent de la fermeture du canal de conduction $\Delta_5^{\uparrow\uparrow}$ lorsqu'on atteint l'énergie du haut de bande Δ_5^\uparrow du *bcc* Fe(001) à $|0.2|$ V. Dans la conductance AP, on ne distingue véritablement qu'un point d'inflexion à l'œil nu aux environs de -0.2 V qui correspond à l'effet conjoint de la fermeture des canaux de

conduction $\Delta_5^{\uparrow\downarrow}$ et $\Delta_5^{\downarrow\uparrow}$ et de l'ouverture du canal de conduction Δ_1^{IRS} lié à l'activation de l'état résonant d'interface (flèches sur la fig. 2.9(b)). Cet effet est également présent en tension positive mais ne devient réellement visible que dans la dérivée de G_{AP} . Le fait que sa signature semble absente en tension positive ne rend compte que d'une interface supérieure de moins bonne qualité suite à l'absence de recuit de l'électrode supérieure.

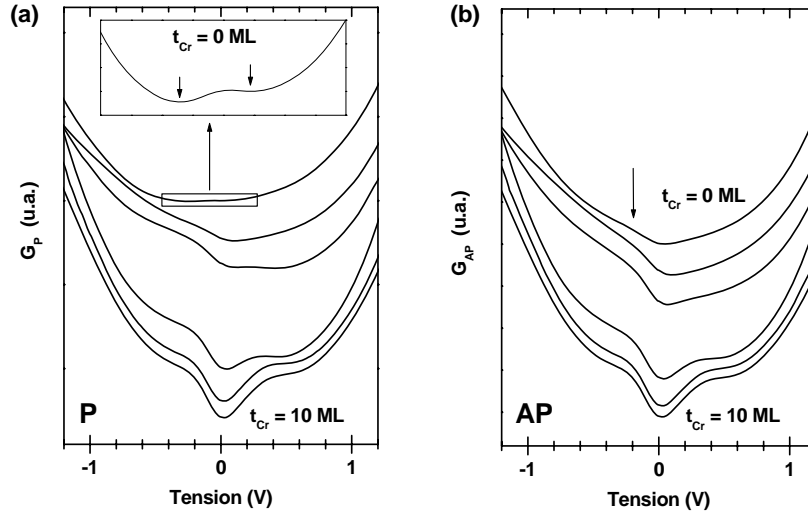


Figure 2.9 : Evolution en tension de G_P (a) et G_{AP} (b) pour, respectivement du haut vers le bas, $t_{\text{Cr}} = 0, 2, 4, 6, 8$ et 10 ML. Les courbes ont été décalées les unes par rapport aux autres pour plus de clarté. Les flèches sur la figure (b) indiquent les points d'inflexion situés à $|0.2|$ V dus à la fermeture du canal $\Delta_5^{\uparrow\downarrow}$ et l'ouverture du canal Δ_1^{IRS} . En encart de la figure (a) : agrandissement sur les basses tensions pour une JTM avec $t_{\text{Cr}} = 0$ ML : les flèches indiquent les minima de conductance dus à la fermeture du canal $\Delta_5^{\uparrow\downarrow}$.

Lorsqu'une fine couche de Cr(001) est insérée à l'interface, des signatures relatives à la conductance G_{AP} s'accroissent. Cette dernière se creuse à tension nulle et des points d'inflexion apparaissent plus apparents (fig. 2.10(a)). La conductance P, quant à elle, suit la même évolution que G_{AP} . Dès l'insertion de 2 ML de Cr(001), les minima locaux à $|0.2|$ V dans G_P disparaissent et les signatures en tension sont semblables à celles visibles dans G_{AP} . Là où la TMR n'est plus que de quelques pourcents ($< 2\%$), à $t_{\text{Cr}} = 8$ ML et 10 ML, G_P et G_{AP} sont identiques (fig. 2.10(b)).

Ces effets marqués peuvent être le fruit de la densité d'états du *bcc* Cr(001). Plus l'épaisseur du Cr(001) augmente, plus l'effet de sa structure électronique va se ressentir dans les caractéristiques tunnel. L'effet majeur reste, bien entendu, la forte diminution du canal de conduction $\Delta_1^{\uparrow\uparrow}$. Suite à cela, à forte épaisseur de Cr(001), la conductance P va être gouvernée par les canaux de conduction $\Delta_5^{\uparrow\uparrow}, \Delta_5^{\downarrow\downarrow}$.

En se limitant aux seuls effets de structure électronique des matériaux purs pour un système parfait, la forte augmentation de conductance à faible tension ne peut plus être le fruit d'états de surface résonants du *bcc* Fe(001) pour ce qui concerne G_{AP} puisque le *bcc* Fe(001) est désormais en contact avec le *bcc* Cr(001). La présence d'états de surface résonants ayant une symétrie d'orbitale d est cependant une caractéristique générale des surfaces *bcc* (001) à laquelle le *bcc* Cr(001) n'échappe pas. L'état de surface résonant du

bcc Cr(001) a été mis expérimentalement en évidence entre autres par J.A. Stroscio lors de mesures de conductance tunnel via un microscope à effet tunnel [28]. La mesure a été effectuée sur une surface de Cr(001) obtenue après la croissance de 6 ML de Cr(001) sur Fe(001). La contribution de l'état de surface résonant au point $\bar{\Gamma}$ engendre un pic dans la conductance tunnel proche du niveau de Fermi pouvant ainsi modifier les caractéristiques tunnel relatives aux JTM Fe/Cr/MgO/Fe(001).

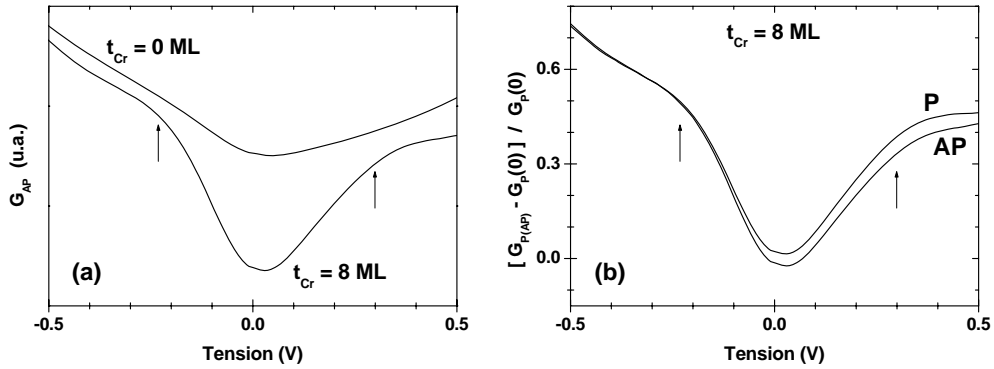


Figure 2.10 : (a) Evolution de G_{AP} à basse tension pour $t_{Cr} = 0$ et 8 ML. Les courbes ont été traduites pour plus de clarté. (b) Evolution à basse tension des conductances P et AP pour une JTM où $t_{Cr} = 8$ ML. Les flèches indiquent les points d'inflexion démarquant la contribution des états de surface résonants au point $\bar{\Gamma}$ conjointement à la fermeture des canaux de conduction $\Delta_5^{\uparrow\uparrow}$, $\Delta_5^{\uparrow\downarrow}$ et $\Delta_5^{\downarrow\uparrow}$.

Hormis l'influence de la structure électronique, d'autres mécanismes sont également à envisager. L'apparition du creux aux basses tensions peut en effet faire penser à une anomalie à tension nulle (abrégée ZBA pour *zero bias anomaly*) bien connue pour être le fait d'excitation d'ondes de spin à l'interface et qui peut s'étaler sur 200 mV dans les jonctions tunnel [39].

A ce jour, l'interprétation ne peut être poussée à un stade plus avancé. Des mesures à basse température (4 K) sont prévues afin de suivre l'évolution en température de ces signatures. Les seules mesures à température ambiante ne permettent pas d'interpréter clairement les résultats.

2. 3. 3. Calculs *ab-initio*

Pour conforter l'interprétation des données expérimentales, des calculs *ab-initio* ont été effectués dans le formalisme du modèle des liaisons fortes (voir § 1.2.1). Les propriétés de transport ont été évaluées dans la formulation de Kubo qui est équivalente à la formule de Landauer dans le régime de la réponse linéaire c'est-à-dire à basse tension.

Le système étudié est Fe / Cr (t_{Cr}) / MgO (10 ML) / Fe, les électrodes de *bcc* Fe(001) étant considérées comme semi-infinies. Etant donnée la faible conductance théorique à large épaisseur de *bcc* Cr(001), l'épaisseur de la barrière tunnel de MgO a été réduite en conséquence à 10 ML soit 2.1 nm au lieu des 3 nm expérimentaux.

Les cercles vides sur la figure 2.11(a) représentent la variation calculée de la TMR avec l'épaisseur de Cr(001) insérée à l'interface. La figure 2.11(b) montre le résultat des calculs pour les conductances relatives à chaque canal de spins (\uparrow , \downarrow) et pour chaque configuration magnétique (P, AP).

Concernant l'évolution de la valeur de TMR, les calculs reproduisent grossièrement la décroissance observée expérimentalement (cercles pleins fig. 2.11(a)). La TMR étant calculée à partir de la variation relative des conductances, le moteur principal de l'atténuation de la TMR est reliée à la décroissance quasi-exponentielle de G_P^\uparrow , les autres conductances G_P^\downarrow , G_{AP}^\uparrow et G_{AP}^\downarrow restant sensiblement constantes. Dès $t_{Cr} = 5$ ML, la valeur de G_P^\uparrow rejoint les valeurs des autres canaux de conduction, épaisseur où la TMR calculée est nulle.

Ces calculs, en accord qualitatif avec les résultats expérimentaux, montrent l'existence d'un obstacle aux mécanismes de transport qui régissent le canal de conduction P^\uparrow .

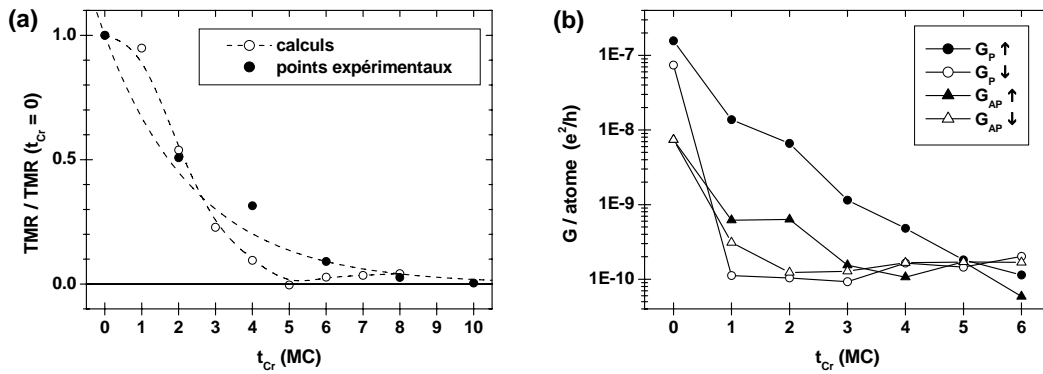


Figure 2.11 : (a) Variations expérimentale (cercles pleins) et calculée (cercles vides) de TMR normalisées en fonction de l'épaisseur de Cr(001). (b) Conductances calculées pour chaque canal de spins (\uparrow , \downarrow) et configuration magnétique (P ou AP) en fonction de l'épaisseur de Cr(001) (échelle logarithmique en ordonnée). Toutes les courbes sont des guides visuels.

A titre de remarque, la chute brutale de G_P^\downarrow à $t_{Cr} = 1$ ML provient de la perte du signal lié aux états de surface résonants du bcc Fe(001). Ces calculs étant effectués à l'équilibre et à température nulle, cette signature ne correspond pas à la perte du signal de l'état de surface résonant situé à 0.2 eV au-dessus du niveau de Fermi au point $\bar{\Gamma}$ mais aux états de surface résonants situés le long des lignes $\bar{\Gamma} - \bar{X}$ de la zone de Brillouin de surface (voir § 1.5).

Afin de comprendre plus en détails cet effet de filtrage d'un point de vue des symétries, nous nous sommes intéressés aux probabilités de transmission résolues en $k_{//}$ à tension nulle pour le canal dominant P^\uparrow à $t_{Cr} = 0$ ML (fig. 2.12(a)) et $t_{Cr} = 6$ ML (fig. 2.12(b)).

Conformément à ce qui a été présenté au chapitre premier, la principale contribution à $t_{Cr} = 0$ ML provient du point $\bar{\Gamma}$ ($k_{//} = 0$) de la zone de Brillouin de surface. Selon les calculs développés par W.H. Butler *et al.* [7] et J. Mathon *et al.* [8], ce maximum de transmission correspond aux électrons de symétrie Δ_1^\uparrow . Lorsque $t_{Cr} = 6$ ML, la transmission reste concentrée en ce même point $\bar{\Gamma}$ mais avec une probabilité de transmission nettement

réduite. Cette atténuation de la contribution des électrons Δ_1^\uparrow indique l'absence de cette symétrie au niveau de Fermi dans le *bcc* Cr(001).

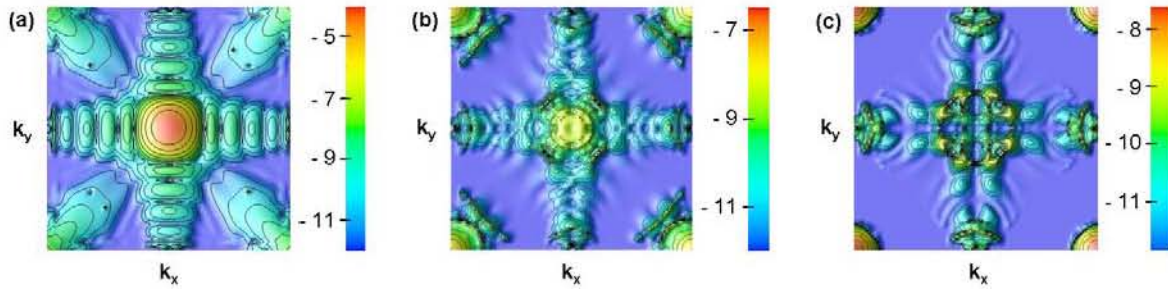


Figure 2.12 : Probabilités de transmission résolues en $k_{//}$ à tension nulle pour les canaux (a) P^\uparrow à $t_{Cr} = 0$ ML, (b) P^\uparrow à $t_{Cr} = 6$ ML et (c) AP^\uparrow à $t_{Cr} = 6$ ML.

Par ailleurs, on peut noter la forte ressemblance entre les probabilités de transmission résolues en $k_{//}$ pour les canaux de conduction P^\uparrow et AP^\uparrow (fig. 2.12(c)) à $t_{Cr} = 6$ ML. En accord avec nos observations expérimentales des valeurs de G_P et G_{AP} , le Cr(001) entraîne une modification de la « carte » de transmission en P qui tend à s'aligner sur celle en AP. Le « trou » de transmission que l'on observe en AP au point Γ reflète l'absence de transmission d'états de symétrie Δ_1 pour cette configuration magnétique. La transmission est principalement concentrée sur un anneau situé autour du point Γ correspondant à des valeurs de k_x et k_y non nulles. Cet anneau de transmission commence à apparaître en configuration P suite à l'ajout de Cr(001). Seule la réminiscence d'électrons de conduction Δ_1 au point Γ pour $t_{Cr} = 6$ ML apporte encore des différences entre ces deux cartes de transmission.

2. 3. 4. Interlude transitionnel

L'insertion de *bcc* Cr(001) à l'interface Fe/MgO de JTM Fe/MgO/Fe(001) entraîne une perte de conductance en configuration P alors qu'en première approximation, la conductance AP reste constante. En restant dans des considérations liées à la structure électronique des différentes couches, cet effet est dû au *filtrage en symétrie* des électrons Δ_1 dans le *bcc* Cr(001). A la base de ce comportement se trouve la conservation de la symétrie à travers la multicouche qui nous laisse dans un mode de transport balistique et cohérent.

Profitant de la conservation de la cohérence des ondes électroniques, un moyen de définitivement trancher sur l'existence ou non d'un filtrage en symétrie dans ces JTM est d'utiliser la propriété isolante du métal *bcc* Cr(001) envers les électrons de symétrie Δ_1 . En poussant le raisonnement plus loin, il apparaît en effet possible de confiner « uniquement » les électrons de symétrie Δ_1 dans une fine couche de *bcc* Fe(001) prise en sandwich entre une barrière de MgO et de Cr(001).

2. 4. Construction d'états de puits quantiques

Cette étude a été effectuée sur des JTM : MgO // MgO (10 nm) / Fe (26 nm) / Cr ($t_{Cr} = 6$ ML) / Fe (t_{Fe}) / MgO (3 nm) / Fe (4.5 nm) / Co (20 nm) / couche de protection.

Expérimentalement, l'échantillon a été élaboré suivant une procédure standard décrite brièvement au § 2.3. Le dépôt de la couche intermédiaire de Fe s'est fait à l'aide d'un cache motorisé permettant d'obtenir des zones de différentes épaisseurs tout en conservant les autres couches identiques. Les conventions utilisées pour les mesures électriques sont les mêmes à savoir qu'en tension négative, on sonde les états disponibles de l'électrode inférieure. Les mesures sont effectuées à température ambiante (300 K).

L'utilisation d'un empilement Fe / Cr / Fe instaure un couplage magnétique entre les couches de Fe par l'intermédiaire des électrons de conduction dans le Cr. L'épaisseur de Cr utilisée engendre, dans notre système expérimental, un couplage antiferromagnétique. La figure 2.13 présente un cycle magnéto-résistif typique de la multicouche complète avec, à droite, les orientations relatives des différentes couches ferromagnétiques suivant le champ magnétique extérieur appliqué.

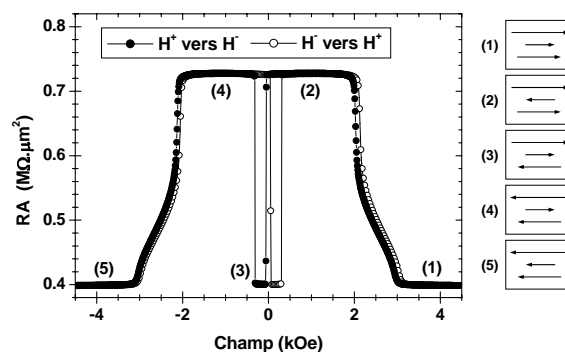


Figure 2.13 : Cycle magnéto-résistif d'une JTM Fe/Cr/Fe/MgO/Fe/Co pris à 10 mV. A droite, les orientations relatives de l'aimantation des couches magnétiques, respectivement du bas vers le haut, Fe, Fe intermédiaire et Fe/Co.

L'amplitude du changement de résistance entre les différentes configurations magnétiques rend compte uniquement de l'amplitude de l'effet TMR. Un système isolé Fe/Cr/Fe peut montrer un effet GMR en géométrie perpendiculaire à 2 K allant de 20 à 30 %. Seulement, la résistance électrique de ce système reste de l'ordre du milliohm [40]. Aussi, cette contribution infime est-elle totalement noyée dans le signal provenant du système TMR où la résistance électrique est de l'ordre de plusieurs centaines d'ohms. Il est par conséquent attendu qu'en termes de résistance électrique, les configurations magnétiques (1)/(5) et (3) soient équivalentes. Dans la suite, les mesures en AP correspondent aux configurations (2)/(4) et celles en P aux configurations (1)/(5) ou (3), ces dernières montrant strictement les mêmes caractéristiques tunnel.

En figure 2.14 sont présentées les conductances dynamiques, G_P et G_{AP} , normalisées par rapport à la valeur de G_P à tension nulle, pour les systèmes « standards » Fe/MgO/Fe(001) (trait en pointillés) et Fe / Cr / Fe ($t_{Fe} = 7$ ML) / MgO / Fe(001) (trait plein) que l'on nommera « $QW_{t_{Fe}}$ » dans la suite.

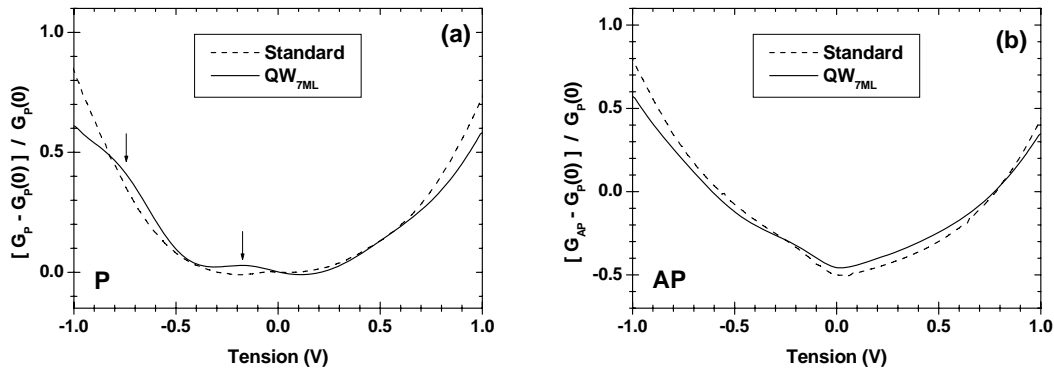


Figure 2.14 : Conductances dynamiques P (a) et AP (b) normalisées par $G_P(V = 0)$ d'une JTM Fe/MgO/Fe(001) standard (courbes en pointillées) et d'une JTM Fe/Cr/Fe/MgO/Fe(001) où $t_{Fe} = 7$ ML (courbes pleines). Les flèches indiquent la position des épaulements qui apparaissent dans la conductance dynamique P en tension négative.

Le premier effet remarquable de l'insertion d'une fine couche de Fe(001) entre le Cr(001) et le MgO(001) est le rétablissement presque total de la valeur initiale de TMR relative au système standard qui vaut approximativement 100 %. On note en effet la similarité entre les valeurs de $G_{AP}(V = 0)$ normalisées par $G_P(V = 0)$ des deux échantillons en figure 2.14(b). D'autre part, l'insertion de 7 ML de Fe(001) à l'interface Cr/MgO(001) entraîne la réouverture du canal de conduction majoritaire $\Delta_1^{\uparrow\uparrow}$ que 6 ML de Cr(001) à l'interface Fe/MgO avaient fermé (voir § 2.3) ; les valeurs de $G_P(V = 0)$ augmentent et retrouvent leur niveau standard.

Par ailleurs, la variation en tension des deux courbes $G_{AP}(V)$ est équivalente : on retrouve dans l'échantillon QW_{7ML} les caractéristiques « classiques » des échantillons standards. En contraste, en configuration P, la conductance des JTMs QW_{7ML} montre l'apparition d'épaulements en tension négative (flèches sur fig. 2.14(a)) alors que les courbes sont similaires en tension positive.

A $t_{Cr} = 6$ ML, les électrons Δ_1^{\uparrow} sont majoritairement réfléchis. La couche intermédiaire de bcc Fe(001) est propice à l'apparition d'effet de puits quantiques pour les états de symétrie Δ_1^{\uparrow} puisque ces derniers peuvent être confinés entre les deux barrières de potentiel que représentent le bcc Cr(001) et le MgO(001). C'est ce que symbolise l'apparition de ces pics de conductance.

Le fait que ces pics ne soient apparents qu'en tension négative est schématisé sur la figure 2.15 qui représente les profils de potentiel perçus par les électrons Δ_1^{\uparrow} . Suite aux conventions utilisées, en tension négative, les électrons sont injectés de la couche supérieure de Fe(001) dans la couche intermédiaire de Fe(001).

En considérant que la chute de tension se fait principalement sur la barrière de MgO(001), les différents niveaux de puits quantiques situés au-dessus du niveau de Fermi, dans la couche de Fe(001) intermédiaire, ne pourront être sondés qu'en augmentant la

tension négative appliquée. En tension positive, en première approximation, seuls les états du niveau de Fermi de la couche intermédiaire seront sondés par les électrons tunnel.

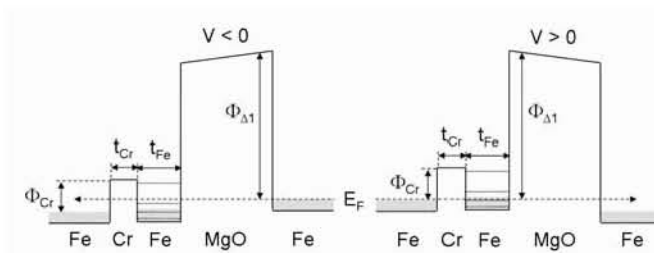


Figure 2.15 : Profils de potentiel perçus par les électrons Δ_1^\uparrow en tension positive ($V > 0$) et négative ($V < 0$). Les niveaux de puits quantiques sont matérialisés par les traits discontinus horizontaux dans la couche de Fe(001) intermédiaire. Les flèches en pointillés indiquent le sens de parcours des électrons tunnel.

Les dérivées des conductances dynamiques vont permettre de mettre en évidence cet effet de manière plus apparente pour les différentes épaisseurs de Fe(001) intermédiaire testées. La figure 2.16 regroupe toutes les dérivées P et AP pour des JTMs avec 7 ML, 14 ML et 21 ML de Fe(001) à l'interface nommées respectivement QW_{7ML} (b), QW_{14ML} (c) et QW_{21ML} (d). En guise de comparatif, la figure 2.16(a) représente les dérivées des conductances pour des JTMs standards.

Toutes les dérivées de G_{AP} sont semblables ; aucune signature supplémentaire n'apparaît en tension positive ou négative. En revanche, les modifications sont flagrantes dans les dérivées de G_P comparé aux JTMs standards. Les flèches sur les figures indiquent la position des épaulements qui apparaissent en tension négative. Ces augmentations soudaines de conductance montrent de façon non ambiguë l'existence d'états de puits quantiques dans la couche de Fe(001) intermédiaire. Par ailleurs, la position de ces épaulements se déplace vers les basses tensions lorsque l'épaisseur t_{Fe} augmente. Ce comportement est typique d'effets de puits quantiques : dans un calcul classique de mécanique quantique pour un puits de potentiel infini, l'énergie du niveau n est inversement proportionnelle à la largeur du puits ($E_n \propto n^2 / t_{Fe}^2$). Par conséquent, plus t_{Fe} augmente, plus les niveaux se resserrent vers les basses énergies.

En remarque, en tension positive, les systèmes QWs semblent montrer une légère augmentation de la conductance comparée au système standard. Ceci peut être dû aux états de puits quantiques situés en-dessous du niveau de Fermi dans la couche de Fe(001). En première approximation, il est supposé que seul le niveau de Fermi est sondé mais, la tension augmentant, il se peut que les niveaux inférieurs soient sollicités. Ces niveaux sont beaucoup plus proches en énergie que les états sondés en tension négative. Aussi se peut-il qu'on ne puisse pas clairement distinguer leur séparation à 300 K. Ceci résulterait en une augmentation de la conductance étendue en tension comme semble l'indiquer la largeur de l'épaulement en tension positive.

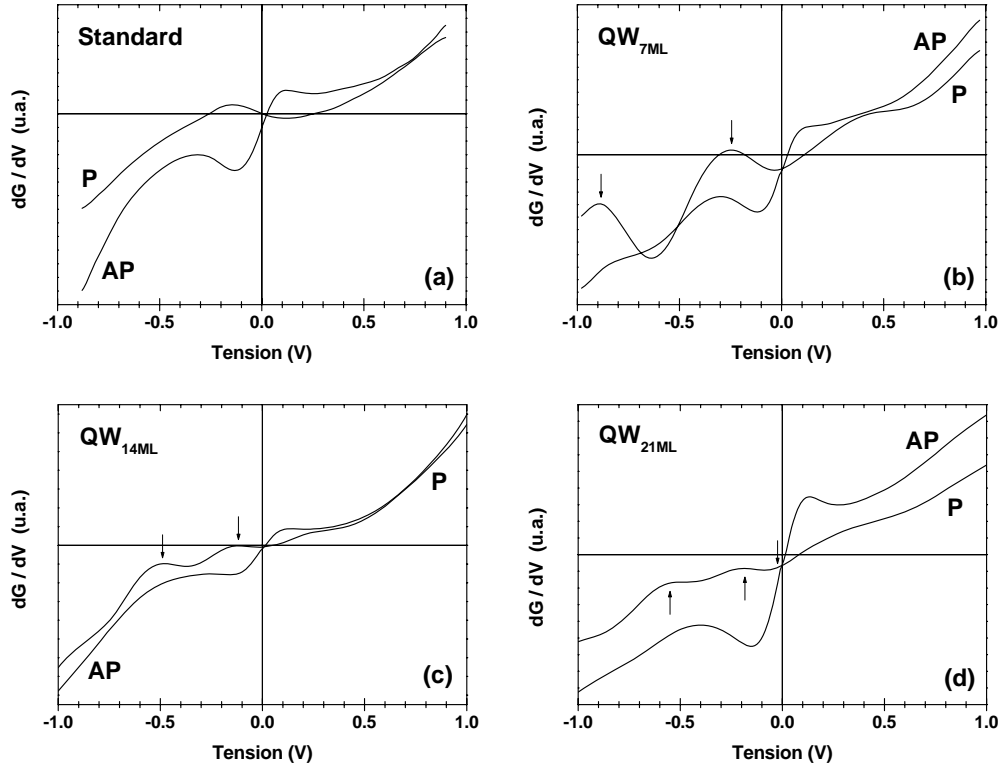


Figure 2.16 : Dérivées des conductances dynamiques dG/dV pour (a) des JTMs $Fe/MgO/Fe(001)$ standards, (b), (c) et (d) des JTMs $Fe/Cr/Fe(t_{Fe})/MgO/Fe(001)$ avec, respectivement, $t_{Fe} = 7, 14$ et 21 ML. Les flèches indiquent la position des épaulements visibles à l'œil nu en configuration P et tension négative.

Ces états de puits quantiques n'étant visibles qu'en configuration P, avec injection dans $Fe/Cr/Fe$, ils sont une preuve du confinement des électrons Δ_1^\uparrow . Cette étude montre à la fois que le bcc $Cr(001)$ est un métal isolant pour les électrons Δ_1^\uparrow mais, également, que le filtrage en symétrie est un mécanisme réel. Si par exemple la couche de $Cr(001)$ avait été remplacée par une barrière de $MgO(001)$, des états de puits quantiques seraient également apparus en configuration AP puisque le $MgO(001)$ est une barrière de potentiel pour toutes les symétries d'états. Il aurait alors été impossible de démontrer la validité du filtrage en symétrie.

L'apparition d'états de puits quantiques résultant en une augmentation de la conductance P, elle entraîne, par ailleurs, une chute moins rapide de la TMR en tension négative. La figure 2.17 est un comparatif de la variation en tension de la TMR dans les JTMs QWs et une JTM standard. Les TMRs ont été normalisées

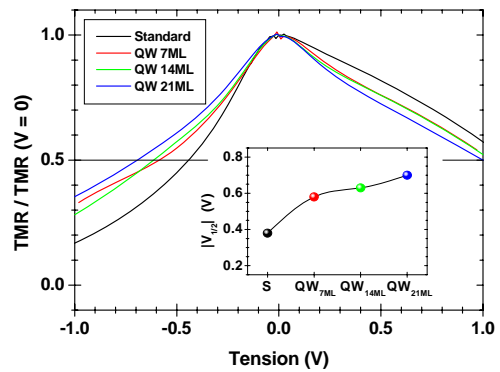


Figure 2.17 : Variation en tension des TMRs normalisées par leur valeur respective à tension nulle pour des JTMs standard (S), QW_{7ML} , QW_{14ML} et QW_{21ML} . En encart : valeur de $V_{1/2}$ pour chaque JTM.

par rapport à leur valeur respective à tension nulle. La perte du signal est nettement moins accentuée en tension négative pour les systèmes QWs. Comme point de comparaison, l'encart de la figure 2.17 représente les valeurs $|V_{1/2}|$ de toutes les JTM en tension négative. $V_{1/2}$ correspond à la valeur de tension à laquelle le signal de TMR est réduit de moitié. De 0.38 V pour une JTM standard, $V_{1/2}$ passe à 0.7 V pour une JTM QW_{21ML}. Ceci peut présenter des intérêts technologiques puisque les dispositifs fonctionnent à tension non nulle. Avec l'augmentation du signal TMR, on conserve un signal facilement décelable à tension finie.

2. 5. Conclusion du chapitre

Depuis les prédictions théoriques sur les mécanismes du transport tunnel dans le système épitaxié Fe/MgO/Fe(001), nombre de résultats expérimentaux ont été interprétés en supposant ce modèle exact. Les amplitudes de TMR naissent de deux effets conjoints : le filtrage en symétrie dans les électrodes ferromagnétiques et les taux d'atténuations relatifs à chaque symétrie dans la barrière tunnel. Ainsi, l'effet TMR géant observé dans les JTM Fe/MgO/Fe(001) devrait-il être dû à la combinaison d'une polarisation totale des états de symétrie Δ_1 dans le *bcc* Fe(001) et d'un faible taux d'atténuation de cette symétrie dans le MgO(001), relativement aux autres états de symétrie (Δ_5 , Δ_2 et Δ_2').

L'amélioration des techniques de dépôts permet l'élaboration de multicouches se rapprochant des systèmes parfaits (faible rugosité, conservation de la symétrie de l'empilement). Cela donne la possibilité de tester les modèles théoriques car, même si des effets TMR d'une amplitude remarquable à tension nulle y ont été mesurés, cette mesure unique ne suffit pas à prouver le bien-fondé du modèle. Un seul point, aussi haut soit-il dans l'échelle de TMR, peut-il satisfaire à démontrer l'existence d'un filtrage en symétrie ? Bien entendu, ce modèle est très attirant car il est, au final, le seul modèle existant pour les systèmes totalement épitaxiés, pouvant justifier les données expérimentales.

Dans ce chapitre, nous avons supposé le modèle exact et, en ajoutant une brique au système Fe/MgO/Fe(001) standard, nous avons voulu voir si on allait se heurter à une contradiction. Dans un premier temps, l'insertion d'une fine couche de *bcc* Cr(001) à l'interface Fe/MgO(001) entraîne une perte du signal magnétorésistif de la jonction qui est directement corrélée à une forte diminution des valeurs de conductance parallèle. Le *bcc* Cr(001) présentant, entres autres, l'avantage de ne pas avoir d'états de symétrie Δ_1 au niveau de Fermi peut donc supposément agir comme une barrière de potentiel pour les électrons Δ_1^\uparrow injectés par les électrodes de *bcc* Fe(001). Comme la conductance parallèle est régie par la propagation des états de symétrie Δ_1^\uparrow , la chute de conductance observée est en accord avec le modèle. D'autant plus, qu'en première approximation, la conductance antiparallèle ne subit pas une dépréciation aussi drastique ; elle reste plus ou moins constante jusqu'à l'insertion de 6 ML de Cr(001) là où la conductance parallèle a déjà perdue 40 % de sa valeur initiale. Les résultats des calculs *ab-initio* que nous avons effectués montrent effectivement que l'effet majeur de l'insertion de Cr(001) à l'interface consiste en une chute quasi-exponentielle de la conductance parallèle majoritaire et que cette dernière est corrélée à une perte de transmission au point $\bar{\Gamma}$.

En utilisant cette propriété, nous avons vu que l'insertion d'une couche supplémentaire de Fe(001) à l'interface Cr/MgO(001) induisait l'apparition d'épaulements dans la conductance parallèle alors que la conductance antiparallèle restait conforme à celle des jonctions standards Fe/MgO/Fe(001). Le déplacement vers les basses tensions de la position des épaulements lorsque l'épaisseur de la couche intermédiaire de Fe(001) augmente est le fruit de l'existence d'états de puits quantiques dans cette dernière. Cette expérience montre alors, sans ambiguïté, que les états de symétrie Δ_1 sont confinés dans la couche fine de Fe(001) prise en sandwich entre deux barrières de potentiel pour cette symétrie.

De fait, cette étude confirme l'existence du *filtrage en symétrie* dans les systèmes épitaxiés. Cela justifie par ailleurs l'utilisation d'un modèle de transport balistique et cohérent puisque la présence d'états de puits quantiques pour la symétrie Δ_1 sous-entend que les ondes électroniques conservent phase, symétrie et vecteur d'onde. Hormis l'apparition de fortes valeurs de magnétorésistance, l'existence du filtrage en symétrie trouve également son intérêt dans le fait qu'un métal, comme le Cr(001), puisse dans certains cas être utilisé comme isolant.

La validité de ce modèle a de plus été confirmée par la suite dans une étude récente de T. Niizeki *et al.* [41] sur un système similaire. De la même manière, les auteurs ont observé l'apparition d'états de puits quantiques dans une fine couche de Fe(001) à l'interface entre un buffer de Cr(001) et une barrière de MgO(001) dans le système complet MgO // Cr (40 nm) / Fe ($t_{\text{Fe}} = 4$ à 10 ML) / MgO (2 nm) / Fe (5 nm) / $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ (1 nm) / IrMn (15 nm) / Ta (5 nm). L'étude des caractéristiques tunnel à basse température (6 K) a révélé la présence d'états de puits quantiques en tension positive et négative dans la conductance P montrant également la contribution des états au-dessous du niveau de Fermi. De plus, dans leur mesure basse température, ils sont parvenus à mettre en évidence un changement de régime dû à l'ouverture du canal de conduction direct $\Delta_1^{\uparrow\uparrow}$ lorsque la barrière énergétique dans le Cr(001) pour cette symétrie est dépassée : au-delà de 1 V, on atteint le bas de bande Δ_1 dans le Cr(001).

Chapitre Troisième – « Noise is Signal »

On associe souvent la notion de bruit principalement aux sources parasites qui faussent les mesures : toutes ces contributions qui masquent/noyent le signal mesuré. Pourtant, il y a une trentaine d'années, Rolf Landauer, l'un des pères fondateurs de la physique mésoscopique s'écriait « *The noise is the signal* » (*le bruit est le signal*, pour les non-anglophones) : les fluctuations temporelles d'une mesure peuvent être une source d'informations supplémentaires dont la mesure moyennée dans le temps s'affranchit. Les fluctuations de courant proviennent des natures statistique et quantique du transport électronique et leur étude peut s'avérer un outil puissant pour caractériser les mécanismes de conduction.

Plus particulièrement, le bruit *électronique* revêt plusieurs facettes. La première partie de ce chapitre, sorte d'introduction au bruit électronique, sera donc dédiée à l'exposé de la philosophie des mesures de bruit et l'énumération de ses différentes composantes. Après la présentation de notre système d'étude : des jonctions Fe/MgO/Fe(001) légèrement modifiées, nous présenterons les informations fournies par les mesures de bruit quant aux mécanismes de transport. La plupart des mesures exposées dans ce chapitre ont été réalisées à l'Universidad Autonoma de Madrid suite à une étroite collaboration entre notre laboratoire et le département de Física de la Materia Condensada de la Facultad de Ciencias.

3. 1. Les bruits électroniques basse fréquence dans les JTMs

Des fluctuations sont présentes dans tout signal électrique. Ces fluctuations aléatoires du signal en fonction du temps présentent souvent une distribution gaussienne de leur amplitude qui est centrée autour du signal moyen. La largeur de la distribution détermine la déviation standard du signal et en conséquence, l'amplitude du bruit. Un moyen de caractériser le bruit est d'en faire une étude dans le domaine fréquentiel. On utilise alors couramment la densité spectrale de bruit (S) qui n'est autre que la transformée de Fourier de la fonction d'(auto-)corrélation des fluctuations dans le temps du signal électrique mesuré. Lorsqu'on se restreint à l'étude dans le domaine des basses fréquences, deux types de bruit se distinguent de la densité spectrale : un bruit indépendant de la fréquence appelé *bruit blanc* et un bruit dépendant de la fréquence comme le *bruit en 1/f*. Un spectre blanc est la conséquence de bruits qui ne sont pas corrélés dans le temps. Un bruit dépendant de la fréquence résulte d'un ou plusieurs ou même une distribution continue de temps caractéristiques différents. Pour une revue complète, le lecteur est invité à consulter le livre de Sh. Kogan [120].

3. 1. 1. Le bruit blanc

Dans les jonctions tunnel magnétiques, la densité spectrale du bruit blanc (S_V^{BB}) s'exprime comme suit :

$$S_V^{BB} = 2eIR_d^2 \coth\left(\frac{eV}{k_B T}\right)$$

où e est la charge électronique, I l'intensité du courant électrique à travers la jonction tunnel, R_d la résistance différentielle de la jonction tunnel, V la tension appliquée à la jonction, k_B la constante de Boltzmann et T la température.

Cette équation a deux limites. A tension nulle ou pour $eV \ll k_B T$, on parle de *bruit thermique*. Pour $eV \gg k_B T$, on parle de bruit de grenaille encore appelé *shot noise*.

Le *bruit thermique* est également appelé bruit Johnson-Nyquist des noms de J.B. Johnson qui a mis cet effet en évidence en 1927 [42] et de H. Nyquist qui l'a quantifié en 1928 [43]. Il résulte du mouvement aléatoire des électrons soumis à l'agitation thermique ; les électrons situés à $\pm k_B T$ autour du niveau de Fermi contribuent au courant. Ces électrons peuvent subir des collisions avec le réseau cristallin, d'autres électrons, etc. Ce déplacement aléatoire des électrons à tension nulle engendre des fluctuations du courant ou de tension. Aussi le bruit thermique apparaît-il dans tout matériau conducteur ayant une résistance. Sa densité spectrale se note :

$$S_V^{BT} = 4k_B T R_d$$

Les effets du bruit thermique ne se font ressentir qu'à très haute fréquence ou à très basse température. En effet, le mouvement des électrons n'est corrélé que dans le temps entre deux collisions. Par conséquent, à température ambiante, il ne devient dépendant de la fréquence qu'à très hautes fréquences de l'ordre de plusieurs milliers de gigahertz.

Dans les jonctions tunnel, à tension nulle, le bruit thermique est dû au mouvement thermique des électrons qui passent par effet tunnel d'une électrode à l'autre. Il correspond au plus bas niveau de bruit que l'on peut atteindre lorsqu'aucune tension n'est appliquée à la jonction.

Le *shot noise*, quant à lui, vient du fait que le courant n'est pas un flux continu mais la somme de pulses de courant discrets correspondant chacun au transfert d'un électron et, dans notre cas, au transfert d'un électron à travers la barrière tunnel.

A l'équilibre, le courant net qui circule dans la jonction correspond à la différence entre le flux d'électrons allant de gauche à droite et celui allant de droite à gauche. Pour des tensions plus importantes que $k_B T/e$, on parle de full shot noise (FSN) car seul le flux d'électrons allant de droite à gauche ou de gauche à droite (suivant le signe de la tension appliquée) participe au courant. La densité spectrale du FSN s'écrit :

$$S_V^{SN} = 2eIR_d^2$$

A l'inverse du bruit thermique, le shot noise dépend du courant à travers l'échantillon. Le FSN est observé lorsque le transfert des électrons à travers la barrière tunnel se fait de manière non corrélée, c'est-à-dire qu'il est représenté par une distribution de Poisson : chaque électron passe à travers la barrière de manière indépendante et aléatoire. La présence de corrélation électronique dans la barrière entraîne généralement une diminution ou une augmentation du shot noise mesuré comparativement à la valeur du FSN. Nous reviendrons plus en détails sur ce point au § 3.3.1.1.

3. 1. 2. Le bruit en 1/f

Dans tout spectre de bruit mesuré dans le régime des basses fréquences dans un métal, on note l'apparition d'une contribution qui décroît en fonction de la fréquence. Sur une double échelle logarithmique représentant la densité spectrale en fonction de la fréquence, cette contribution ($S_V^{1/f} \propto 1/f^\beta$) décroît selon une pente β proche de 1 et généralement comprise dans l'intervalle $0.8 < \beta < 1.2$, d'où l'appellation de *bruit en 1/f*.

L'existence du bruit en 1/f, même si elle n'est plus à démontrer, fait encore débat dans la littérature suite à la persistance d'une incompréhension ou tout du moins d'une forte incertitude sur son origine physique. L'origine la plus communément évoquée, mais qui reste somme toute très mathématique, tend à dire que le bruit en 1/f provient de la somme d'une infinité de fluctuations individuelles et indépendantes ayant des temps caractéristiques différents.

F.N. Hooge en 1981 introduisit une équation phénoménologique pour décrire ce type de bruit dans des films métalliques [44] où les fluctuations sont provoquées par une variation de la densité de porteurs N_p et α est appelé paramètre de Hooge :

$$S_V^{1/f} = \alpha \frac{V^2}{N_p f^\beta}$$

Le bruit en 1/f serait dû à un effet de volume dans les métaux puisqu'il dépend de ce dernier par le biais de N_p .

Dans le cas de JTM, le bruit en 1/f apparaît lorsqu'un courant constant traverse la jonction. Dans ce cas, on associe les fluctuations à des fluctuations de résistance. Le courant permet de détecter ces fluctuations de résistance mais n'en explique pas leur origine. Pour caractériser le bruit dans toutes les jonctions étudiées, on utilise le modèle phénoménologique de Hooge, dans lequel la densité spectrale du bruit en 1/f s'écrit :

$$S_V^{1/f} = \alpha \frac{V^2}{A f^\beta}, \text{ où } A \text{ est l'aire de la jonction tunnel.}$$

Des fluctuations de résistance peuvent avoir différentes origines dans des JTMs. Elles peuvent être dues à la présence de défauts à l'interface métal/isolant ou dans la barrière tunnel. Ces défauts peuvent localement modifier l'épaisseur de barrière ou, s'ils se déplacent, produire des variations locales de la hauteur de barrière. Les fluctuations de résistance peuvent également avoir une origine magnétique puisque résistance et aimantation sont intimement liées dans les JTMs.

Pour comparer le niveau du bruit en 1/f dans différentes jonctions, on utilise communément sa forme normalisée à laquelle nous ferons appel dans la suite :

$$\alpha = \frac{S_V^{1/f} A f^\beta}{V^2}$$

3. 2. Système d'étude

Les mesures de bruit basse fréquence ont été effectués sur différentes JTMs : des JTMs standards Fe/MgO/Fe(001) et d'autres légèrement modifiées où l'interface inférieure a été dopée au carbone. Aux vues des résultats expérimentaux, ce chapitre va être principalement axé sur les JTMs dopées-carbone. Les différents échantillons testés montrent des niveaux de bruit bien inférieurs à ce qui a été jusqu'ici reporté dans la littérature. Néanmoins, les caractéristiques tunnel spécifiques des JTMs dopées-carbone entraînent *de facto* des réponses en bruit particulières qui réciproquement peuvent donner quelques éclaircissements sur les mécanismes de transport tunnel associés.

3. 2. 1. Qu'entend-on par « interface dopée-carbone » ?

Parler de système dopé-carbone est certainement un abus de langage, contamination chimique de l'interface serait probablement plus appropriée. Les travaux de M. Sicot *et al.* [45] ont mis en évidence que le traitement thermique du substrat de MgO(001) avant croissance n'était pas suffisant pour désorber le carbone. Après dépôt et recuit d'une électrode de Fe(001) directement sur le substrat, une reconstruction typique C(2x2) apparaît sur les clichés RHEED dans l'azimut [11] (fig. 3.1(b)) ; elle témoigne de la ségrégation de carbone en surface. Pour prévenir la présence de carbone en surface, les auteurs ont montré que le dépôt d'une couche de MgO directement sur le substrat servait de barrière anti-diffusion et piégeait le carbone ; on peut voir sur la figure 3.1(a), les clichés RHEED relatifs à une surface de Fe(001) propre, c'est-à-dire sans contamination chimique.

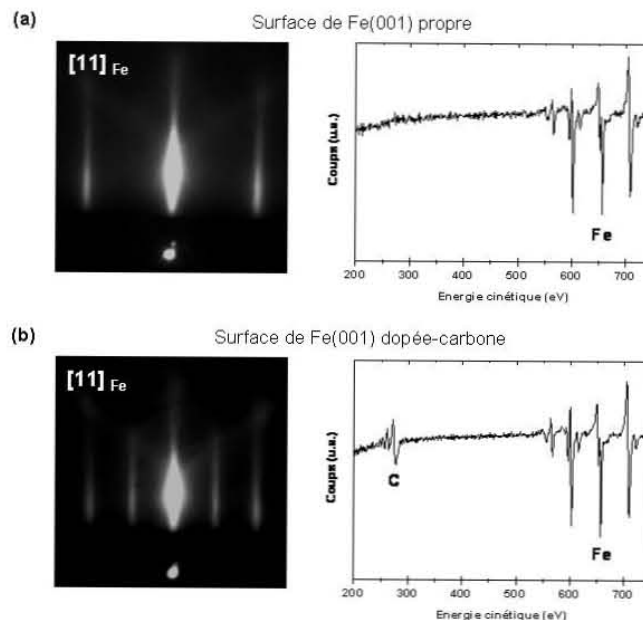


Figure 3.1 : Clichés RHEED de la surface de Fe(001) dans l'azimut [11] et spectres Auger associés pour (a) MgO // MgO / Fe(001) (surface propre) et (b) MgO // Fe(001) (surface dopée-carbone).

La ségrégation du carbone dans le *bcc* Fe(001) a été démontrée dans les années 1970 dans des couches de *bcc* Fe(001) contenant préalablement du carbone et éventuellement d'autres espèces chimiques contaminantes (Al, S, etc.). Les travaux de H.J. Grabke *et al.* [46] et V. Blum *et al.* [47] ont mis en évidence que la reconstruction C(2x2) correspondait à la présence d'atomes de carbone dans les sites interstitiels de la maille cubique de *bcc* Fe(001) (fig. 3.2).

Hormis la présence supposée de lacunes de carbone, il est possible, par ségrégation, d'obtenir une structure ordonnée à longue échelle et d'épaisseur égale à la demi-monocouche atomique sur la surface de *bcc* Fe(001). Par ailleurs, en se rapportant au papier de V. Blum *et al.*, dès la seconde couche atomique de Fe(001) en partant de la surface, la présence de carbone est substantielle et à la quatrième couche atomique négligeable. On peut donc considérer que la contamination chimique est principalement une contamination de surface.

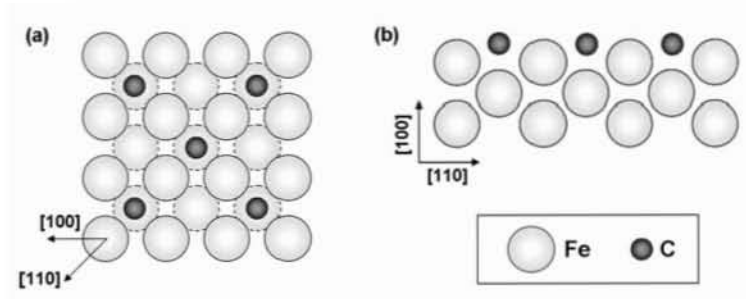


Figure 3.2 : Modèle structural de la reconstruction C(2x2) après ségrégation du C à la surface de Fe(001). (a) vue de dessus, (b) coupe transverse dans la direction [110].

Malgré les faits expérimentaux reportés par la littérature, nous avons vu au laboratoire que la concentration de carbone à l'interface n'était pas facilement contrôlable. Même en suivant un protocole d'élaboration précis (même traitement thermique du substrat, même recuit de la couche de Fe(001)), il arrive de voir en déplaçant le faisceau RHEED sur la surface recuite de Fe(001) soit des zones avec une concentration plus forte en carbone (reconstruction atypique de surface autre que C(2x2)), soit des zones sans carbone (sans reconstruction de surface). Néanmoins, dans notre dispositif expérimental, la longueur de cohérence du RHEED avoisine la centaine de nanomètres. Les échantillons étant structurés en JTMs carrées de l'ordre de plusieurs dizaines de micromètres de taille latérale, ces dernières présentent quoiqu'il en soit une interface dopée-carbone. Aussi, les mesures de magnéto-transport sont-elles très reproductibles et l'impact du carbone sur les caractéristiques tunnel ne fait aucun doute.

La modification chimique de l'interface induit de fortes modifications des caractéristiques tunnel puisque ces dernières dépendent du raccordement des fonctions d'ondes aux interfaces ferromagnétiques/isolant. Ces signatures particulières, qui feront l'objet du prochain paragraphe, ont motivé l'étude des bruits basse fréquence dans le but d'obtenir des informations supplémentaires sur les mécanismes de conduction impliqués. Les caractéristiques tunnel des JTMs dopées-carbone ne sont pas un fait nouveau au

laboratoire. Une description partielle en a été faite dans la thèse de J. Faure-Vincent [14] soutenue au laboratoire en 2004. Le prochain paragraphe est une sorte d'état de l'art sur le transport tunnel dans les systèmes dopés-carbone afin que le lecteur dispose de suffisamment d'informations pour comprendre les différences/similarités d'avec un système standard. De nouvelles mesures de magnéto-transport effectuées à basse température (4 K et 10 K) agrémenteront les résultats préalablement établis, ces dernières ayant révélé l'apparition de nouvelles caractéristiques tunnel.

3. 2. 2. Caractéristiques tunnel des JTMs dopées-carbone

Pour une barrière de MgO de même épaisseur (ici $t_{\text{MgO}} = 3 \text{ nm}$), l'amplitude de TMR d'une JTM dopée-carbone et d'une JTM standard à l'équilibre sont du même ordre de grandeur : aux environs de 160 % - 180 % à température ambiante et au-delà de 300 % à basse température (fig. 3.3(a)). La particularité des JTMs dopées-carbone vient du fait qu'elles reproduisent les caractéristiques tunnel observables dans des JTMs standards ayant une épaisseur de MgO réduite ($t_{\text{MgO}} < 2.2 \text{ nm}$).

Les systèmes dopés-carbone présentent en effet une courbe de TMR fortement asymétrique. La figure 3.3(b) présente la TMR dite dynamique car calculée à partir des conductances dynamiques P et AP. En tension négative, les électrons scannent les états disponibles de l'électrode inférieure ayant une surface dopée-carbone.

Les mesures à forte tension et basse température ($V > 1.5 \text{ V}$) révèlent l'apparition d'inversions successives. Après une chute rapide de la TMR dynamique, qui à tension nulle vaut 300 %, une première inversion intervient en tension négative à -0.72 V où la TMR dynamique devient négative. Elle atteint ensuite un minimum de -26% à -1.15 V avant d'augmenter jusqu'à s'inverser de nouveau à -1.5 V . En tension positive, la chute est moins brutale. La TMR dynamique montre une rupture dans sa décroissance matérialisée par un épaulement aux alentours de 0.8 V avant de s'inverser à une tension de 1.5 V pour atteindre une valeur limite de -26% à forte tension.

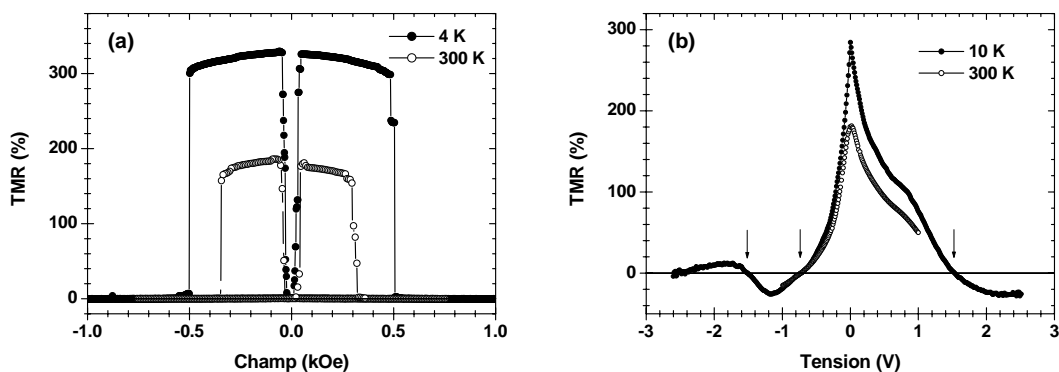


Figure 3.3 : Mesures de magnéto-transport sur une JTM dopée-carbone à 300 K (cercles ouverts) et à basse température (cercles pleins) : (a) TMR basse tension en fonction du champ appliqué, (b) TMR calculée à partir des conductances dynamiques P et AP en fonction de la tension appliquée. Les flèches indiquent les tensions d'inversions de la TMR dynamique.

Les chapitres précédents ont montré que la variation en tension de la TMR était souvent le fait de la variation de la conductance AP. Ceci se vérifie également ici où la figure 3.4 rend compte d'une conductance dynamique P symétrique en tension et variant, en première approximation, de façon parabolique alors que la variation de la conductance dynamique AP montre une évolution plus rythmée. Les premières inversions de TMR dynamique en tension positive (1.5 V) et négative (- 0.72 V) sont, en effet, reliées à l'augmentation soudaine de la conductance dynamique AP qui surpasse la conductance dynamique P. La seconde inversion en tension négative (- 1.5 V) est, quant à elle, reliée à la réduction progressive du canal de conduction AP dont les valeurs de conductances dynamiques redeviennent inférieures à celles de la conductance dynamique P. Ces signatures sont le fruit de la structure électronique des électrodes de *bcc* Fe(001).

L'augmentation brutale de G_{AP} à faible tension est attribuée à un effet de structure électronique de surface : la contribution de l'état résonant de surface situé dans le gap Δ_1

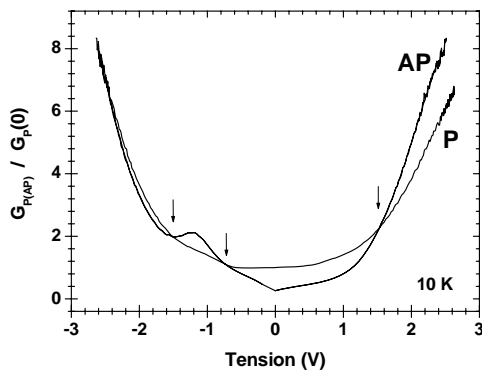


Figure 3.4 : Variation en tension à 10 K des conductances dynamiques P et AP. Les flèches indiquent les tensions pour lesquelles G_{AP} croise G_P .

des spins minoritaires à 0.2 eV au-dessus du niveau de Fermi au point $\bar{\Gamma}$. Dans les JTMs Fe/MgO/Fe(001) standards, sans interface dopées-carbone et de même épaisseur de barrière, cet effet se matérialise par l'apparition d'un point d'inflexion aux alentours de |0.2| V mais il ne donne pas lieu à une augmentation aussi prononcée de la conductance AP. En revanche, lorsque seule l'interface inférieure est dopée-carbone, l'augmentation de G_{AP} en tension négative est beaucoup plus marquée qu'en tension positive et entraîne jusqu'à une inversion de TMR. Etant donné que cette singularité est également

observable sur des JTMs standards d'épaisseur de MgO inférieure à 2.2 nm, le carbone semble se comporter comme un « exhausteur » de sensibilité à la structure électronique de surface du *bcc* Fe(001) à forte épaisseur de barrière.

L'épaule observé dans la TMR en tension positive aux abords de 1 V est soit dû à une diminution de G_{AP} , soit à une augmentation de G_P . En remarque, cet effet est également visible dans les JTMs sans carbone et pour une même épaisseur de barrière. Simplement, l'utilisation de la TMR dynamique permet de faire ressortir plus nettement les effets de la structure électronique. Cet épaulement ne peut être du fait de G_{AP} , qui augmente en tension. Il faut donc en chercher l'origine dans la conductance P. En ce qui concerne la

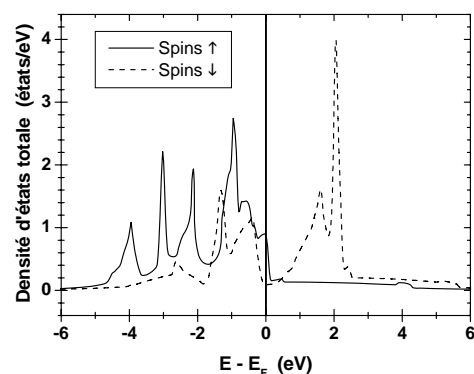


Figure 3.5 : Densité d'états totale du *bcc* Fe(001) pour les spins \uparrow et \downarrow .

structure électronique (massif ou surface) des spins majoritaires, rien ne peut expliquer un épaulement provenant d'au-dessus du niveau de Fermi. En revanche, la densité d'états totale du *bcc* Fe(001) montre un pic à 1 eV au-dessous du niveau de Fermi. L'épaulement s'explique alors par la structure électronique du massif de l'électrode injectrice ; les états situés au-dessous du niveau de Fermi peuvent participer au transport tunnel et le pic présent dans la densité d'états totale du *bcc* Fe(001) dans les spins majoritaires entraîne *de facto* une augmentation de la conductance P (fig. 3.5).

L'augmentation de G_{AP} en tension positive est, quant à elle, reliée à un effet de structure électronique du massif. La tension d'inversion correspond approximativement à l'énergie du bas de bande Δ_1 dans les spins minoritaires, situé à 1.7 – 1.8 eV au-dessus du niveau de Fermi dans les calculs de structure de bandes. Aussi, l'ouverture d'un canal de conduction Δ_1 se révèle-t-il de première importance puisque l'évanescence de ces états est la plus faible dans le MgO(001) comparé aux états de symétrie qui, à faible tension, dominant G_{AP} comme les états Δ_5 par exemple. L'ouverture de ce canal est symbolisée par un pic dans la densité d'état totale du *bcc* Fe(001) (fig. 3.5). En conséquence, l'addition de ce canal de conduction dominant aux canaux de conduction AP, ici pour des tensions supérieures à 1 V entraîne une augmentation progressive de G_{AP} et aboutit à une inversion de TMR.

Ce dernier effet devrait être symétrique en tension. Pourtant, à -1.5 V, G_{AP} devient inférieure à G_p et la TMR repasse en positif. Tous les arguments de structure électronique que ce soit du massif ou de surface vont pourtant dans le sens d'une augmentation attendue de G_{AP} : ouverture du canal de conduction Δ_1 ou contribution d'un état de surface résonant au point $\bar{\Gamma}$. En effet, sans entrer dans les détails, il a été récemment mis en évidence l'existence d'un deuxième état de surface résonant au point $\bar{\Gamma}$ à 1.1 eV au-dessus du niveau de Fermi dans les spins minoritaires du *bcc* Fe(001). Le lecteur curieux peut se référer à la publication [48] ou à la thèse de P.J. Zermatten [49] pour plus d'informations concernant ce dernier point. Pour revenir à notre cas, que l'un ou l'autre de ces mécanismes soit visible, ils n'appuient en aucun cas une diminution de G_{AP} . A ce jour, les mécanismes à l'origine de ce phénomène restent encore à élucider.

L'augmentation de TMR à basse température et tension est due à la diminution de la conductance AP qui perd environ 50 % de sa valeur, la conductance P restant du même ordre de valeur à 300 K et 10 K (fig. 3.6).

Ces mesures ont cependant révélé un comportement dépendant de la température pour la conductivité P. A basse température, on note l'apparition de minima successifs et symétriques en tension : deux premiers à $|0.08|$ V et les seconds à $|0.25|$ eV. L'apparition de minima locaux dans G_p à 300 K et aux alentours de $|0.2|$ V est une signature désormais connue des JTMs Fe/MgO/Fe(001). Ces derniers symbolisent la fermeture du canal de conduction $\Delta_5^{\uparrow\uparrow}$. A l'instar de cette signature, il convient de chercher l'origine des minima à $|0.08|$ eV dans la structure électronique du *bcc* Fe(001) puisque s'ils résultaient de la présence de carbone à l'interface, cette signature n'interviendrait qu'en tension négative.

La structure de bandes des spins minoritaires ou majoritaires du *bcc* Fe(001) ne révèle pourtant pas de structure fine permettant d'expliquer l'apparition de ces minima qui font penser à la fermeture d'un canal de conduction.

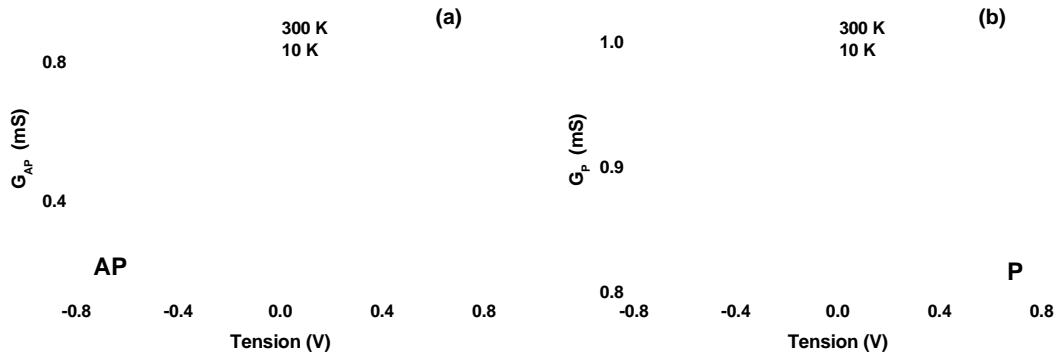


Figure 3.6 : Variation en tension des conductances dynamiques à 300 K et 10 K : (a) G_{AP} et (b) G_P . Les flèches indiquent la position des minima à $|0.08|$ V et $|0.25|$ V dans G_P .

Cependant, cette structure de bandes est calculée pour du Fe(001) supposé cubique. Or, lors de la croissance de Fe(001) sur MgO(001), le désaccord paramétrique entre les mailles peut entraîner une déformation de la maille de Fe(001). Le paramètre de maille du MgO étant supérieur à celui du Fe, le paramètre de maille de ce dernier s'ajuste sur celui du MgO : le paramètre dans le plan augmente et le paramètre hors du plan diminue. On obtient donc une maille tétragonale du Fe(001) (*bct* Fe(001)), ce dernier ne relaxant pas dans le régime d'épaisseur utilisé.

Cela a des conséquences sur la structure électronique et les calculs effectués au laboratoire via le code de calcul Wien2k ont montré notamment un décalage des bandes Δ_5 et Δ_2 dans le *bct* Fe(001) (fig. 3.7) comparée à la structure de bandes du *bcc* Fe(001). Par conséquent, lorsque la tension augmente, les canaux de conduction $\Delta_5^{\uparrow\uparrow}$ et $\Delta_2^{\uparrow\uparrow}$ ne se ferment pas aux mêmes énergies.

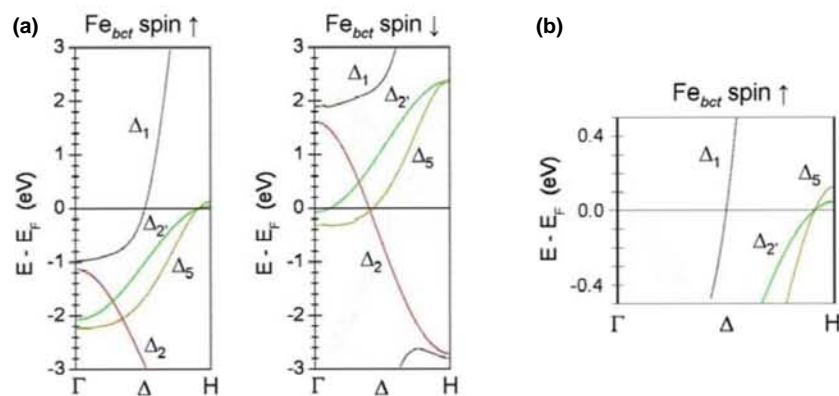


Figure 3.7 : (a) Structure de bandes du Fe(001) tétragonal (*bct*) pour les spins majoritaires (\uparrow) et minoritaires (\downarrow) dans la direction Δ . (b) Agrandissement aux basses énergies de la structure de bandes du *bct* Fe(001) majoritaire.

C'est ce que formalisent les minima visibles dans G_P . Abaisser la température de mesure permet de révéler la structure fine du *bct* Fe(001), les contributions précédentes

étant non dissociables à 300 K. La haute qualité structurale des échantillons permettrait donc de rendre compte par des mesures électriques de la déformation de la maille de Fe(001).

En guise de précision, comme le montre la figure 3.7(a), la déformation de la maille de Fe(001) n'a pas d'effet sur les états de symétries Δ_1 si ce n'est un léger décalage (0.1 eV) vers les hautes énergies. On conserve néanmoins la propriété demi-métallique du *bcc* Fe(001). Ce résultat montre en outre que les canaux de conduction possibles liés à la contribution des états de symétrie Δ_2 ne sont pas fermés à cette épaisseur de barrière. Malgré l'effet filtrant reconnu de la barrière de MgO vis-à-vis des différentes symétries Δ_i , les états possédant un fort taux d'atténuation dans cette dernière continuent à se propager même si leur contribution reste faible comparée aux états Δ_1 . Ceci, par ailleurs, contribue à la valeur expérimentale limitée de la TMR relativement aux prédictions théoriques.

Comme nous l'avons vu précédemment, dans des JTMs de taille latérale de l'ordre de plusieurs dizaines de micromètres, il arrive que des zones soient effectivement dopées-carbone et d'autres non. Il en résulte une dispersion de la tension d'inversion de la TMR indépendamment de l'épaisseur de barrière utilisée. Comme le montre la figure 3.8, pour des JTMs « fortement » dopées-carbone, l'inversion arrive dès 0.3 V et peut aller jusqu'à 0.8 V pour des JTMs « faiblement » dopées-carbone. Cet effet est difficile voire impossible à modéliser par des calculs *ab-initio*. Outre le fait de la persistance de l'état de surface après dopage-carbone de l'interface, les premières tentatives de modélisation ont révélé que la position de l'état de surface du Fe(001) était décalée vers des plus hautes énergies suite à l'ajout de carbone à l'interface [50]. Néanmoins, l'effet du carbone sur la propagation même de l'état de surface du Fe(001) est encore à l'étude.

La concentration de carbone est donc le paramètre pertinent à considérer du point de vue de la tension d'inversion de la TMR. L'épaisseur de la barrière n'influe pas sur la tension d'inversion dans les JTMs dopées-carbone mais dans les JTMs non-dopées. Le fait que sur la figure 3.8, l'inversion soit repoussée en tension pour une barrière de 3 nm de MgO comparativement à la barrière de 2.6 nm n'est que le fruit du hasard expérimental.

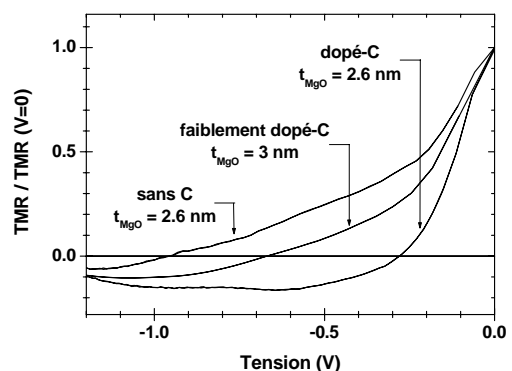


Figure 3.8 : TMR normalisées par rapport à leur valeur à tension nulle pour des JTMs dopées-carbone à 2.6 nm et 3 nm de MgO et une JTM non-dopée à 2.6 nm de MgO.

3. 3. Mesures de bruit basse fréquence

Les mesures de bruit basse fréquence ont été effectuées sur plusieurs séries d'échantillons : dopés-carbone ou non et ayant des épaisseurs de barrière de MgO variables : 2.6 nm et 3 nm. La diminution de l'épaisseur de MgO entraîne principalement une réduction de la valeur de TMR à l'équilibre. Cette dernière passe de plus de 300 % pour $t_{\text{MgO}} = 3 \text{ nm}$ à 250 % pour $t_{\text{MgO}} = 2.6 \text{ nm}$ à 10 K. L'épaisseur de barrière n'affecte en rien les résultats qui ressortent des mesures de bruits.

Nous avons vu au § 3.1.2 que le bruit en $1/f$ était présent dans tous les composants électroniques hors équilibre. Sa valeur va donc déterminer la valeur du rapport signal sur bruit de dispositifs fonctionnant en dc comme les capteurs magnétiques par exemple. Ce paramètre est donc important dans la perspective d'applications.

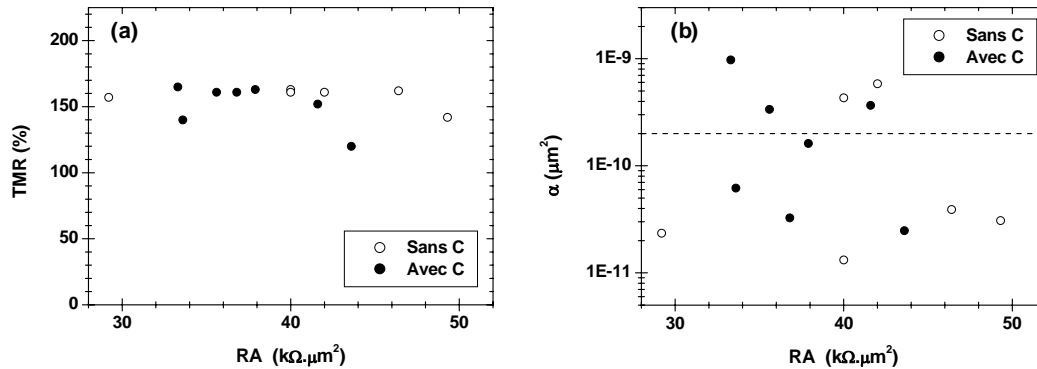


Figure 3.9 : (a) Valeur de TMR à l'équilibre et (b) bruit en $1/f$ normalisé mesuré à 200 mV en fonction du produit RA pour des jonctions avec ou sans carbone à l'interface Fe/MgO(001). Ces mesures ont été effectuées à 300 K. La ligne en pointillés en (b) représente le niveau de bruit le plus bas reporté dans la littérature pour des jonctions de même RA (d'après [51]).

La figure 3.9(a) montre la valeur du signal de TMR à l'équilibre et à 300 K sur plusieurs jonctions avec ou sans dopage de l'interface et ayant 2.6 nm de MgO. La figure 3.9(b), quant à elle, présente la valeur du bruit en $1/f$ normalisé c'est-à-dire le paramètre de Hooge α , sur ces mêmes jonctions pris à un courant fixe équivalant à une tension appliquée de 200 mV. Les valeurs de TMR se situent aux alentours de 160 % que l'interface soit dopée ou non. Par ailleurs, si l'on compare les valeurs de α (fig. 3.9(b)) pour la même gamme de produits RA avec la plus basse valeur connue dans la littérature ($\alpha = 2.10^{-9} \mu m^2$, ligne en pointillés sur la fig. 3.9(b)) [51], plus de 60 % des jonctions mesurées ont un niveau de bruit en $1/f$ d'un ordre de grandeur inférieur. Ces résultats semblent donc être un premier indice de la qualité des JTMs testées.

Dans la suite, nous allons uniquement nous attarder sur les résultats des mesures de bruit des JTMs dopées-carbone suite à leur réponse en tension spécifique.

3. 3. 1. Spectres de bruit de JTMs dopées-carbone

La figure 3.10 présente les spectres de bruit typiques de JTMs dopées-carbone pris à 200 mV et 300 K, pour les états magnétiques P et AP. La ligne pleine sur cette figure correspond à une décroissance en $1/f$ et est utilisée comme guide visuel.

En configuration P, on note la décroissance en $1/f$ du spectre qui laisse place au bruit blanc pour des fréquences supérieures à 100 Hz. En revanche, en AP, la décroissance en $1/f$ persiste dans toute la gamme de fréquences sondées et il apparaît une contribution supplémentaire de type lorentzienne symbolisée par un épaulement à une fréquence proche de 100 Hz (flèche sur fig. 3.10).

Dans les JTM, les contributions lorentziennes sont souvent le fruit de fluctuations aléatoires entre deux états énergétiquement stables. C'est ce que l'on appelle du bruit télégraphique, que l'on abrégera dans la suite par RTN pour *random telegraph noise*. Il semble donc qu'en configuration AP, une contribution supplémentaire se rajoute aux sources déjà identifiées de bruit blanc et en $1/f$, contribution qui n'apparaît pas en configuration P.

Le RTN a deux principales origines connues : la première est électronique et est due à la présence de défauts dans la barrière tunnel ou aux interfaces, la seconde est magnétique et reflète des fluctuations d'aimantation. Dans ce dernier cas, le RTN peut se comprendre comme des sauts aléatoires dans le temps de parois de domaines entre sites de piégeages ou encore des impuretés magnétiques dans la barrière [52-54]. Cependant, la présence d'impuretés magnétiques dans la barrière peut d'ores et déjà être exclue puisque le RTN n'apparaît que pour la configuration d'aimantation AP.

Dans la suite nous allons donc nous intéresser à ces deux sources potentielles de bruit dans nos échantillons, électronique et magnétique. Il faut pour cela être capable de sonder l'une et l'autre indépendamment.

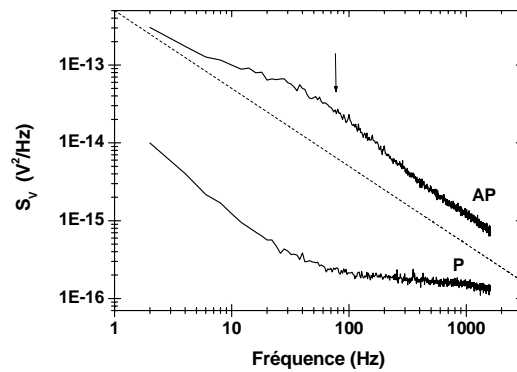


Figure 3.10 : Spectre de bruit basse fréquence de JTM dopées-carbone pris à 200 mV pour les deux configurations extrêmes des aimantations (P et AP) à 300 K. La ligne pleine est un guide visuel d'une décroissance en $1/f$.

3. 3. 2. Bruit d'origine électronique ?

La mesure du shot noise s'avère être un outil puissant permettant de connaître le mode de transport qui prend place dans les JTM. Si les mécanismes de transport sont affectés par la présence de défauts, le shot noise sera modifié en conséquence. Il convient d'étudier pour cela la déviation du shot noise mesuré dans l'échantillon par rapport à la valeur attendue du FSN, ce dernier étant dû au transfert direct d'un électron à travers la barrière c'est-à-dire qu'il n'y a aucune corrélation électronique. Le *facteur de Fano* (F) est généralement utilisé pour rendre compte de la déviation de la mesure par rapport au FSN. Il correspond au shot noise mesuré ($S(f)$) normalisé par la valeur du FSN :

$$F = \frac{S(f)}{2eIR_d^2}$$

Aussi, pour un processus tunnel direct, sans corrélation électronique : $F = 1$.

Pour mesurer le shot noise, il est nécessaire d'abaisser la température afin de réduire au maximum la contribution du bruit en $1/f$ et de se placer dans une plage de fréquences où le bruit blanc domine. Ceci est facilité dans nos jonctions puisqu'en configuration P à 300 K, le bruit en $1/f$ est déjà négligeable dans le spectre de bruit pour des fréquences supérieures à 200 Hz (fig. 3.10). Pour obtenir un point expérimental, on se place dans une fenêtre de

fréquences où le bruit blanc domine pour l'intensité de courant utilisée. On effectue ensuite plusieurs mesures sur lesquelles le spectre sera moyenné puis intégré sur la fenêtre de mesure. Plus le nombre de mesure est important, plus la précision de mesure sera grande et donc les barres d'erreurs petites.

La figure 3.11 montre les résultats obtenus à 10 K sur les JTM dopées-carbone et en tension négative, c'est-à-dire lorsque l'inversion de TMR apparaît.

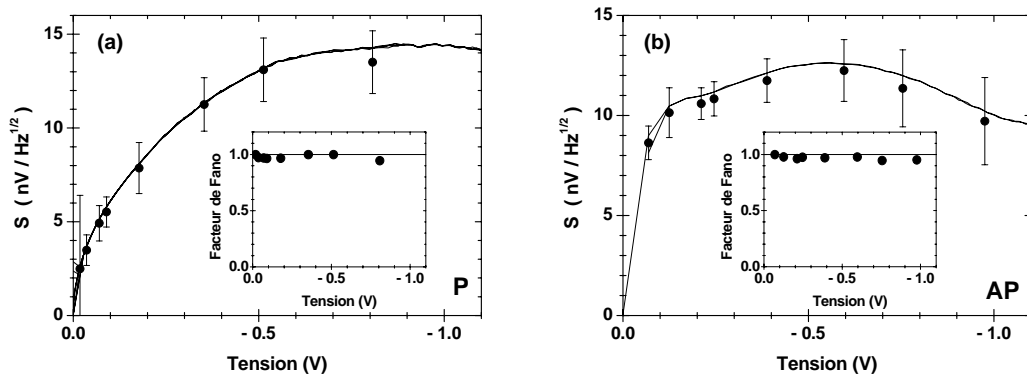


Figure 3.11 : Mesure du shot noise à 10 K en tension négative pour les configurations magnétiques (a) P et (b) AP. En tension négative, les électrons scannent les états disponibles de l'électrode dopée-carbone. Les lignes pleines décrivent ce que l'on attendrait théoriquement pour du FSN : $S = 2eIR_d^2$. En encarts : facteur de Fano (F) en P et AP où la ligne pleine correspond à $F = 1$ (FSN) (voir texte pour détails).

Les courbes pleines sur les figures 3.11(a) et (b) représentent le FSN. Elles ont été calculées en multipliant par $2eR_d^2$ les caractéristiques courant-tension mesurées en configurations P et AP. Le fait que les points expérimentaux se trouvent le long de ces courbes, aux barres d'erreurs près, montre que le mécanisme de conduction est un mécanisme tunnel direct en P et AP : $F = 1$ (encarts fig. 3.11).

On peut donc exclure un mode de transport séquentiel via des défauts localisés dans la barrière. En effet, la présence d'états localisés entraîne l'apparition de corrélations électroniques. Par exemple, lorsqu'un électron passe par effet tunnel sur un état localisé, la répulsion de Coulomb sur ce site empêche tout autre électron de passer par effet tunnel avant que le premier électron n'ait quitté le site. Les effets de corrélation électronique entraînent soit une suppression [55-57] soit une augmentation de la valeur du facteur de Fano [56-58]. Pour des défauts situés au milieu de la barrière tunnel, le facteur de Fano tombe à $1/2$; pour des défauts uniformément répartis, $F = 2/3$.

Cette mesure dynamique confirme sans ambiguïté un mode de transport tunnel cohérent dans nos JTM que les mesures statiques des chapitres précédents laissaient déjà fortement présager. L'absence de transport tunnel résonant dans les mesures de shot noise appuie la haute qualité de la barrière de MgO(001).

Par conséquent, l'origine du bruit dans nos jonctions dopées-carbone ne peut être électronique et en conséquence, le RTN observé en configuration AP ne peut être dû au piégeage de charges dans la barrière de MgO.

3. 3. 3. Bruit d'origine magnétique ?

De la même manière que les mesures de shot noise ont invalidé l'origine électronique du RTN, elles invalident que des fluctuations de résistance suite à la présence de défauts soient à l'origine du bruit en 1/f (voir § 3.1.2). Tout semble donc converger autour d'une

seule et même origine du RTN et du bruit en 1/f : magnétique. Il apparaît donc nécessaire de connaître la variation du bruit en fonction du champ magnétique appliqué et donc des configurations magnétiques de la jonction. Pour ce faire, on étudie la réponse en champ du paramètre de Hooge α .

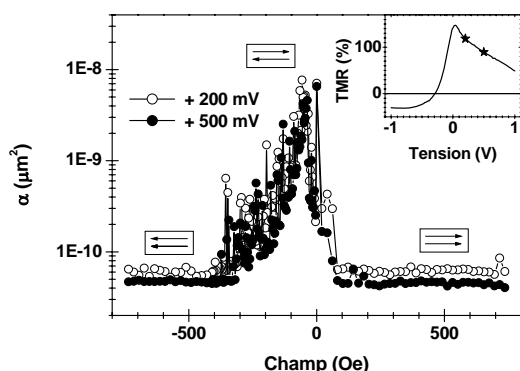


Figure 3.12 : Dépendance en champ de α à 300 K à + 200 mV et + 500 mV. Le champ magnétique a été varié de + 700 Oe à - 700 Oe. Les flèches représentent les configurations magnétiques de la JTM en fonction du champ appliqué. L'ordonnée est en échelle logarithmique. En encart : TMR calculée à partir des conductances dynamiques en fonction de la tension. Les étoiles montrent les tensions de mesures de α .

configuration P. En moyenne, la valeur de α diminue avec le champ appliqué. En effet, à l'inverse du bruit en 1/f en P qui reste aux alentours de $5 \cdot 10^{-11} \mu\text{m}^2$, le bruit en 1/f en AP ne montre pas un niveau stable et sa valeur oscille, faisant des sauts répétés entre des valeurs plus ou moins élevées.

Ce résultat est plutôt contre-intuitif puisque la théorie définit α comme une constante, indépendante du champ magnétique. Pour autant nombre de publications font état d'une nette dépendance de α à l'état magnétique de la jonction [54,59-62]. De plus, dans des systèmes magnétorésistifs en général et tunnel en particulier, les fluctuations magnétiques entraînent des fluctuations de résistance puisque ces deux grandeurs sont intimement liées. Il convient donc de regarder les fluctuations de résistance en fonction du champ appliqué.

Un premier indice de la présence de fluctuations magnétiques dans nos JTMs apparaît d'ores et déjà en regardant de plus près leur cycle magnétorésistif. En effet, la configuration AP n'est pas bien définie puisqu'elle ne se matérialise pas par un plateau sur la plage de champ concernée (encart fig. 3.13(b)). Par ailleurs, il est intéressant de voir la similarité entre la variation en champ de $|dR/dH|$ (fig. 3.13(b)) et celle du paramètre de Hooge (fig. 3.13(a)) sur la fenêtre de champ correspondant à la configuration AP. Cette première montre une diminution continue de sa valeur avec le champ appliqué. On notera, par ailleurs, que la valeur de la dérivée de la résistance en AP est deux ordres de grandeur supérieure à sa valeur en P, comme pour α .

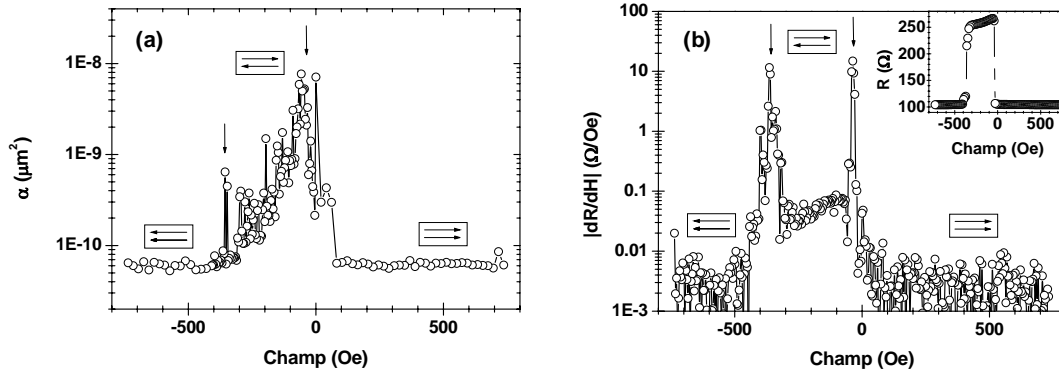


Figure 3.13 : (a) Echo de la figure 3.12 représentant $\alpha(H)$ à + 200 mV et 300 K. (b) Dérivée de la résistance (en valeur absolue) à + 200 mV et 300 K. Les flèches correspondent aux renversements successifs des couches douces et dures de la JTMs, respectivement - 36 Oe et - 360 Oe. Les ordonnées sont en échelle logarithmique. Encart en (b) : réponse en champ de la résistance de la JTM à partir de laquelle $|dR/dH|$ a été calculée.

En revanche, les signatures correspondant aux renversements respectifs des aimantations des couches ne se matérialisent pas aussi nettement dans α que dans la dérivée de la résistance même si des pics de bruit sont également présents à ces valeurs de champ : - 36 Oe (P \rightarrow AP) et - 360 Oe (AP \rightarrow P) (flèches fig. 3.13). Il apparaît alors que la dynamique de retournement des couches ferromagnétiques occasionne un bruit en $1/f$ semblable à la dynamique d'aimantations en configuration AP.

Une étude détaillée de la réponse en champ du bruit en configuration AP a par ailleurs révélé une présence intermittente du RTN dans les jonctions. Outre la dépendance de α à l'état magnétique de la jonction, les valeurs de α sur la plage de champ correspondant à la configuration AP fluctuent sans cesse entre des valeurs plus ou moins élevées. Lorsque le niveau de bruit α est le plus élevé en AP, la lecture directe des spectres de bruit en fréquence montre la présence de RTN. Cette contribution disparaît lorsque le niveau de bruit α prend des valeurs plus faibles (fig. 3.14). Par exemple, lorsque $\alpha \sim 4.10^{-10} \mu\text{m}^2$, le spectre suit une décroissance stricte en $1/f$ (spectres orange et turquoise). Lorsque la valeur de α augmente, du RTN apparaît avec des contributions toujours plus importantes lorsque α est maximal (spectres jaune foncé et rouge). On note même un décalage dans la valeur de fréquence à laquelle le RTN apparaît (spectre noir) soit un

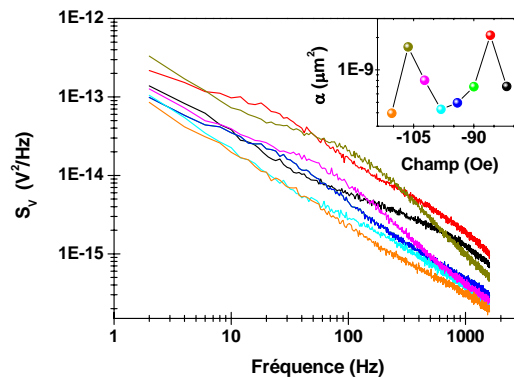


Figure 3.14 : Spectres de bruit pris à + 500 mV et à différents champs sur la plage de configuration AP. L'encart donne la correspondance entre le jeu de couleur utilisé pour les spectres, la valeur du champ magnétique appliqué et la valeur de α . Pour les plus faibles valeurs de α dans cet intervalle de mesure, on ne note aucune contribution du RTN dans le spectre contrairement aux fortes valeurs de α . Pour précision, les spectres vert et bleu marine correspondant respectivement à - 90 Oe et - 95 Oe sont totalement confondus.

décalage dans les temps caractéristiques. Ceci suggère la présence de plusieurs fluctuateurs entre deux niveaux.

Ce comportement particulier peut provenir de la nature même de la couche dure utilisée : une bicouche Fe/Co. Les fluctuations du niveau de bruit en $1/f$ en AP ainsi que l'intermittence du RTN suivant le champ appliqué peuvent révéler une dynamique d'aimantation complexe de la couche dure. Il a été démontré que la couche de Co stabilise dans une structure *hcp* avec l'axe *c* dans le plan. Elle présente deux variants dont les axes de facile aimantation sont orthogonaux entre eux et forment un angle de 45° chacun avec les axes de facile aimantation du *bcc* Fe(001). Au final, les axes de facile aimantation de la bicouche se trouvent être parallèles aux axes faciles de la couche de Fe. Le retournement de la bicouche s'opère suite à une nucléation initiale dans la couche de Fe qui se propage rapidement dans la couche de Co, entraînant le saut abrupt visible au champ coercitif de la bicouche (360 Oe) [14]. Néanmoins, ces couches n'étant pas « parfaites » dans le sens où elles contiennent des défauts structuraux, ces derniers vont être autant de sites de piégeages. Aussi, la structure particulière de la couche dure peut-elle être le siège de la formation de domaines magnétiques autour de ces défauts et le mouvement des parois de domaines dans la couche dure serait à l'origine d'un RTN intermittent.

Outre sa dépendance particulière, l'excès de bruit en $1/f$ en configuration AP peut venir du fait que la conductance dynamique AP est faible par rapport à celle en P ; le niveau de bruit étant très bas dans ces JTM (voir fig. 3.9 et 3.10), les fluctuations magnétiques vont se faire d'autant plus ressentir dans cette configuration. L'utilisation de JTM dopées-carbone s'avère alors particulièrement opportune, puisqu'en tension négative, la conductance AP augmente rapidement jusqu'à entraîner une inversion de TMR. La figure 3.15 représente la mesure de bruit en fonction du champ appliqué pour des tensions négatives de -200 mV et -500 mV à 300 K. A -200 mV, la TMR est encore positive mais ne vaut plus que 27 % ; à -500 mV, la TMR est négative (-23 %) (encart fig. 3.15). A l'instar des mesures en tensions positives, pour une tension négative où la TMR est positive et donc la conductance AP inférieure à la conductance P, un excès de bruit en $1/f$ est toujours présent en configuration AP. En revanche, conjointement à l'augmentation de la valeur de la conductance AP pour cette tension, la valeur de α n'est plus que d'un ordre de grandeur supérieure à sa valeur en configuration P comparé aux deux ordres de grandeur observés à la même tension positive. Le point le plus étonnant reste cependant qu'en TMR négative, à une tension de -500 mV, le bruit en $1/f$ est réduit en AP et devient inférieur au bruit en $1/f$ en P qui conserve approximativement la même valeur qu'auparavant ($5 \cdot 10^{-11} \mu\text{m}^2$).

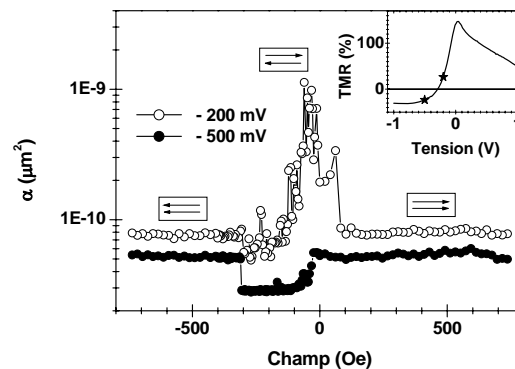


Figure 3.15 : Dépendance en champ de α à 300 K à -200 mV et -500 mV. Le champ magnétique a été varié de $+700$ Oe à -700 Oe. Les flèches représentent les configurations magnétiques de la JTM en fonction du champ appliqué. L'ordonnée est en échelle logarithmique. En encart : TMR calculée à partir des conductances dynamiques en fonction de la tension. Les étoiles montrent les tensions de mesures de α .

Dans des JTMs à faible bruit en $1/f$, comme c'est le cas ici, il est souvent observé un excès de bruit en $1/f$ en configuration AP comparativement à la configuration P. En revanche, pour des JTMs montrant un fort niveau de bruit en $1/f$ ($\alpha \sim 10^{-5} - 10^{-6} \mu\text{m}^2$), une diminution de bruit en $1/f$ en AP peut apparaître même pour une TMR positive.

Cette spécificité du comportement de α intervient dans des JTMs qui possèdent une spécificité dans leur caractéristique tunnel. En effet, la réduction nette de α apparaît dans l'intervalle de tension où le canal de conduction lié à l'état de surface résonant situé au point $\bar{\Gamma}$ dans la bande des spins minoritaires est efficace (voir § 3.2.2). Il semble donc se dessiner un lien étroit entre les canaux de conductance et le niveau de bruit en $1/f$. S'en veut pour preuve la figure 3.16 qui montre la variation de α en P et AP en fonction de la valeur de TMR (a) parallèlement à la variation des conductances dynamiques P et AP (b). La corrélation entre ces deux quantités est flagrante. Sur tout l'intervalle de tension sondé et quelque soit la valeur de TMR, la conductance dynamique P reste, en première approximation, constante tout comme la valeur de α correspondante. Pour de fortes valeurs de TMR où la conductance dynamique AP est très faible et inférieure à la conductance dynamique P : $\alpha_{AP} \ll \alpha_P$. Plus la conductance dynamique AP augmente, plus la TMR diminue et plus le niveau de bruit en $1/f$ associé se rapproche de celui en configuration P. Lorsque l'inversion de TMR prend place à -300 mV : $\alpha_{AP} = \alpha_P$. Enfin, lorsque la conductance dynamique AP dépasse la conductance dynamique P : $\alpha_{AP} > \alpha_P$.

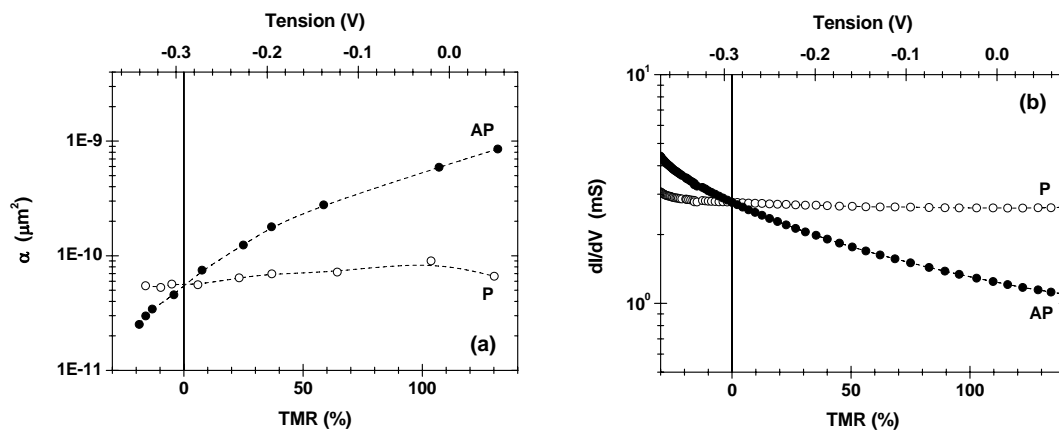


Figure 3.16 : Variation en fonction de la tension (échelle du haut) et la valeur de TMR (échelle du bas) du paramètre de Hooge (a) et de la conductance dynamique de la jonction (b) en configurations P et AP à 300 K. La ligne verticale montre la transition entre une TMR positive et négative aux abords de -0.3 V . Les ordonnées sont en échelle logarithmiques.

Comme nous l'avons vu, la diminution de TMR est directement reliée à la variation de la conductance AP. Le bruit en $1/f$ ayant le plus probablement une origine magnétique puisque les mesures de shot noise ont invalidé un modèle de transport via des défauts, il se peut alors que le niveau de bruit observé soit à rapprocher des canaux de conduction qui génèrent le courant tunnel dans les configurations P et AP. En effet, si la conductance est très faible, cette dernière va être beaucoup plus sensible à toutes fluctuations magnétiques du système et de ce fait les rendre plus aisément décelables. Toute fluctuation magnétique engendre des variations de conductance par le rapport étroit qu'il existe entre ces deux quantités. Cependant, une forte conductance tend à minimiser leur impact. On va donc

désormais s'intéresser aux canaux de conduction qui interviennent dans les configurations P et AP des aimantations en fonction de la tension.

3. 3. 4. Discussion

Comme cela a déjà été décrit dans ce chapitre au § 3.2.2 et dans les chapitres précédents, suite au filtrage en symétrie existant dans les électrodes de *bcc* Fe(001) en $k_{//} = 0$, la conductance P est gouvernée par le canal de conduction $\Delta_1^{\uparrow\uparrow}$ et la conductance AP par les canaux $\Delta_5^{\uparrow\downarrow}$ et $\Delta_5^{\downarrow\uparrow}$. A ces contributions en $k_{//} = 0$ viennent s'ajouter de multiples canaux en $k_{//} \neq 0$ dont l'effet sera plus important en configuration AP suite à une probabilité de transmission plus importante autour du point Γ qu'au point Γ lui-même pour cette configuration (voir chapitre premier).

La barrière de MgO exerce également un rôle de filtre en symétrie et en k et octroie des taux d'atténuations différents à chaque symétrie électronique. Les états en $k_{//} = 0$ ont une probabilité plus grande de passer à travers la barrière et les états de symétrie Δ_5 sont fortement atténués par rapport aux états de symétrie Δ_1 .

En conséquence, le canal $\Delta_1^{\uparrow\uparrow}$ donne lieu à une forte conductance P, les canaux $\Delta_5^{\uparrow\downarrow}$, $\Delta_5^{\downarrow\uparrow}$ à une très faible conductance AP et les canaux en $k_{//} \neq 0$ à une très faible conductance « parasite » pour les deux états magnétiques de la jonction, le tout étant symbolisé par de fortes valeurs de TMR.

La conductance P n'est, en première approximation, que le fruit d'un seul canal de conduction fort en $k_{//} = 0$, les canaux relatifs à $k_{//} \neq 0$ étant noyés dans ce premier signal. Par conséquent, la conductance P va être moins sensible aux fluctuations d'aimantation potentielles et, par extension, peut être qualifiée de canal très peu bruité. De plus, la configuration magnétique P est beaucoup plus stable que la configuration AP ; les fluctuations d'aimantations sont donc potentiellement moins importantes dans cette configuration. Ceci est cohérent avec les mesures de bruit qui révèlent :

- un niveau de bruit en $1/f$ remarquablement bas pour la gamme de produits RA sondée (fig. 3.9),
- une valeur de α constante sur l'intervalle de champ correspondant à l'état magnétique P (figs. 3.12 et 3.15).

En configuration AP, la conductance résulte d'une multitude de canaux de très faibles conductances. Les fluctuations d'aimantation en AP, visibles dans la dérivée de la résistance en fonction du champ (fig. 3.13(b)), entraînent *de facto* l'ouverture ou la fermeture de canaux de conduction ayant des conductances associées relativement basses. Par conséquent, le canal AP peut être qualifié de bruité suite à une sensibilité accrue à la dynamique d'aimantation. Cela expliquerait l'excès de bruit en $1/f$ que l'on observe dans cette configuration magnétique. La forte augmentation du bruit en $1/f$ en configuration AP qui peut aller jusqu'à deux ordres de grandeurs au-delà de sa valeur en P, peut provenir du fait que le niveau de bruit est tellement bas dans ces JTMs que la sensibilité aux fluctuations magnétiques existantes va être exacerbée.

Pour des tensions supérieures à -300 mV, la valeur de α est fortement réduite en AP et devient même inférieure à la valeur mesurée en P. Cette diminution de bruit en $1/f$ intervient lorsque la conductance AP n'est plus gouvernée que par un seul canal de

conduction en $k_{//} = 0$: le canal provenant de la structure électronique de l'interface Fe/MgO. En effet, nous avons vu au § 3.3.2 que la présence de carbone à l'interface Fe/MgO n'altère pas la structure électronique de surface du Fe dans le sens où l'état de surface résonant situé au point $\bar{\Gamma}$ est toujours présent même s'il est décalé en énergie. De plus, les caractéristiques tunnel des JTMs dopées-carbone montrent que le carbone renforce en quelque sorte l'efficacité de ce canal de conduction résonant puisqu'à forte épaisseur de barrière on observe une forte augmentation de la conductance AP qui résulte en une inversion de TMR. En conséquence, tout comme pour la configuration P, lorsque l'état de surface résonant est activé, les fluctuations magnétiques se ressentent beaucoup moins suite à la forte conductance existante. Pourtant, la configuration AP n'apparaît pas plus stable à ces fortes tensions négatives puisque les courbes de résistances en fonction du champ montrent la même variation continue de la valeur de résistance en AP que sur l'encart de la figure 3.13. Cela suppose donc que les fluctuations magnétiques sont toujours présentes. Par conséquent, ce fait vient étayer notre hypothèse d'une diminution de sensibilité à la dynamique d'aimantation lorsque le canal de conductance en $k_{//} = 0$ est important et d'autant plus lorsque le canal résonant d'interface en $k_{//} = 0$ est activé.

Le calcul de la dispersion normalisée du bruit va également dans le sens de l'interprétation proposée (fig. 3.16) pour les tensions négatives (lorsque la conductance AP augmente rapidement). Cette mesure correspond à l'écart à la moyenne de α normalisé, soit :

$$\Delta\alpha / \alpha = \sqrt{\langle (\alpha - \langle \alpha \rangle)^2 \rangle} / \langle \alpha \rangle$$

Elle ne renseigne donc pas sur le niveau de bruit mais sur le *bruit du bruit*. Conjointement à la nette et rapide réduction de α_{AP} en tension négative qui devient inférieur à α_P , on observe une réduction de sa dispersion. Cette dernière devient égale à celle observée en P qui est presque indépendante de la tension appliquée à la jonction :

- $\forall V$, $\Delta\alpha_P / \alpha_P \approx 0$,
- pour $V > -0.3V$, $\Delta\alpha_{AP} / \alpha_{AP} \approx 0$.

Ceci n'est pas surprenant si on s'en tient à notre petit modèle. Une forte conductance provenant d'un canal de conduction dominant en $k_{//} = 0$ masque les fluctuations temporelles du courant dues à la dynamique d'aimantation : le bruit du bruit est « silencieux ». Ce qui reste en revanche beaucoup plus surprenant est l'évolution de la dispersion de α_{AP} en tension positive. Lorsque la tension augmente, la conductance AP fait de même entraînant une réduction de α_{AP} . Pourtant, la dispersion de ce dernier augmente de façon drastique. Ce résultat ouvre des perspectives intéressantes puisque les mécanismes de conduction générant la conductance AP en tension positive et négative sont différents. En tension négative, la conductance est gouvernée par un canal dominant de conduction d'interface résonant en

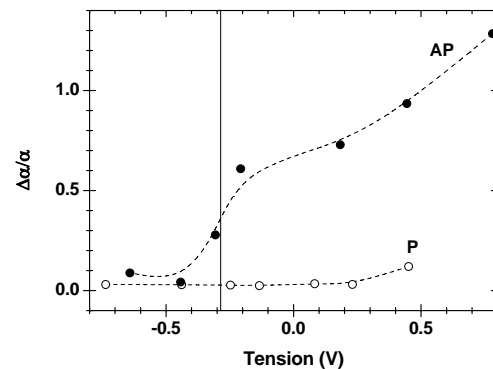


Figure 3.16 : Dispersion du paramètre de Hooge en fonction de la tension appliquée et des configurations P et AP. La ligne verticale montre la transition entre une TMR positive et négative aux abords de $-0.3 V$.

$k_{//} = 0$. En tension positive, elle est au contraire la résultante d'une multitude de canaux de conduction du massif en $k_{//} \neq 0$. Dans ce dernier cas, les fluctuations d'aimantation qui sont très importantes en configuration AP entraînent continuellement la fermeture/ouverture de canaux de conduction. Aussi, l'augmentation de la dispersion du bruit pourrait-elle refléter ces changements continus de conductance. Pour autant, l'augmentation effective de conductance en tension entraîne la diminution du niveau du bruit.

3. 4. Conclusion et perspectives

Les mesures de bruit basse fréquence sont un outil puissant permettant d'obtenir une connaissance profonde de la dynamique intrinsèque du système étudié. Toutefois, les résultats restent difficiles à analyser. Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à des JTMs dont une des interfaces Fe/MgO est dopée-carbone pour leur spécificité tunnel. Ces dernières présentent une forte augmentation de conductance en configuration AP qui entraîne une inversion de TMR à basse tension lorsque les électrons sondent les états disponibles de l'électrode dopée-carbone en surface. Ce phénomène est associé à l'ouverture du canal de conduction due à l'état de surface résonant situé dans la bande des spins minoritaires au point $\bar{\Gamma}$. A forte épaisseur de barrière, sa contribution se trouve amplifiée par la présence de carbone à l'interface comparée à des JTMs standards.

Les mesures de bruit en $1/f$ ont révélé un niveau de bruit remarquablement faible pour des jonctions situées dans cette gamme de produits RA . Les spectres de bruit ont, par ailleurs, montré la présence d'un bruit télégraphique en configuration AP. En recherchant les origines possibles de cette contribution supplémentaire, les mesures de shot noise en ont invalidé une origine électronique et ont, par ailleurs, confirmé un mode de transport tunnel balistique et cohérent. En recherchant une origine magnétique, il s'est avéré que le niveau de bruit en $1/f$ dépendait de l'état magnétique de la jonction. Suivant la valeur de conductance AP comparativement à celle de la conductance P, on observe soit un excès soit une réduction du niveau de bruit en $1/f$. Par ailleurs, il apparaît que la dépendance en champ du bruit en $1/f$ soit similaire à la dépendance de la dérivée de la résistance de la jonction. De même, la variation en tension des valeurs de conductance est corrélée à la variation de α .

Pour expliquer ces résultats, nous avons établi un petit modèle qui prend en compte la relation étroite existant entre conductance et aimantation : une conductance gouvernée par un unique fort canal de conduction en $k_{//} = 0$ masque la dynamique d'aimantation du système alors qu'une conductance résultant de l'addition de nombre de faibles canaux de conduction en $k_{//} \neq 0$ la fait ressortir.

Il reste cependant à comprendre pourquoi l'activation de l'état de surface résonant en AP entraîne un niveau de bruit fortement réduit par rapport au niveau de bruit en configuration P. Les conductances de ces deux états magnétiques sont toutes deux gouvernées par un canal unique en $k_{//} = 0$. La seule différence est, qu'en configuration P, on a affaire à un canal du massif ($\Delta_1^{\uparrow\uparrow}$) et, en AP, à un canal résonant d'interface (Δ_1^{IRS}). Aussi serait-il intéressant de savoir s'il existe une différence entre les temps caractéristiques des fluctuations d'aimantation de l'interface et du massif pouvant expliquer ce résultat.

Un moyen de mettre notre modèle à l'épreuve et d'en tester la validité serait de connaître la variation du paramètre de Hooge avec le produit RA . Si, sur une large gamme de produits RA , il n'apparaît aucun lien avec α , cela montrerait que la diminution de la résistance tunnel ne joue pas un rôle important sur la diminution du bruit en $1/f$.

Chapitre Dernier – Premier pas vers les demi-métaux

Au cours des chapitres précédents, nous avons vu que le *bcc* Fe(001) pouvait être considéré comme demi-métal suite au filtrage en symétrie des états de symétrie Δ_1 qui n'existent au niveau de Fermi que dans les spins majoritaires. Dans les systèmes épitaxiés Fe/MgO(001), ce filtrage est d'autant plus efficace que l'évanescence des états de symétrie Δ_1 dans la barrière de MgO(001) est la plus faible comparativement aux autres états de symétries. L'alliance de ces deux effets est à la base des larges valeurs de TMR obtenues. Néanmoins, la théorie prédit l'existence de matériaux « naturellement » demi-métalliques, c'est-à-dire des matériaux pour lesquels seule une population de spins existe au niveau de Fermi indépendamment de la symétrie électronique. Cette asymétrie parfaite amène des perspectives intéressantes quant aux valeurs de TMR puisque ces dernières seraient infinies.

Ce chapitre résume les premiers résultats obtenus en intégrant un matériau demi-métallique dans une structure type JTMs avec une barrière de MgO(001). Ces résultats se veulent prometteurs et représentent le premier pas d'une étude beaucoup plus approfondie qu'il n'a malheureusement pas été possible de finaliser durant cette thèse. Cette étude a été réalisée en étroite collaboration avec le centre d'élaboration de matériaux et d'études structurales (CEMES) de Toulouse.

Nous nous sommes intéressés au cas de la magnétite (Fe_3O_4). Les calculs ont mis en évidence une polarisation 100 % négative au niveau de Fermi [63,64]. Le but final de l'étude que nous avons lancée est d'élaborer des JTMs composées d'une barrière de MgO(001) et de deux électrodes ferromagnétiques à base de Fe_3O_4 (001) et de comprendre les mécanismes de transport tunnel inhérents.

Néanmoins, avant de réaliser la structure complète $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{MgO}/\text{Fe}_3\text{O}_4$ (001), il convient de comprendre l'influence de la structure électronique du Fe_3O_4 (001). C'est dans cet esprit que nous avons choisi de mettre à profit notre expertise sur les barrières MgO(001) épitaxiées. Pour débiter cette étude, nous nous sommes focalisé sur l'empilement suivant : Fe(001) / Fe_3O_4 (001) / MgO(001) / Co. Ses caractéristiques tunnel seront comparées aux résultats obtenus sur un système Fe(001) / MgO(001) / Co similaire.

Dans ce chapitre, nous allons tout d'abord nous intéresser aux propriétés de la magnétite Fe_3O_4 (001). Après l'étude structurale des échantillons utilisés, nous aborderons les premiers résultats de magnéto-transport que nous avons obtenus où il sera mis en évidence des signatures communes aux deux empilements.

4. 1. Propriétés de la magnétite Fe_3O_4

4. 1. 1. Structure cristalline

La magnétite cristallise dans une structure type spinelle AB_2O_4 de paramètre de maille 0.84 nm (fig. 4.1). Dans la maille usuelle composée de 56 atomes, les 32 ions oxygène (O^{2-}) forment un sous-réseau cubique faces centrées et les 24 ions Fe^{2+} et Fe^{3+} sont logés dans les sites interstitiels. Les sites A, tétraédriques, sont occupés exclusivement par 8 ions Fe^{3+}

(Fe_A) alors que les sites B, octaédriques, contiennent à la fois des ions Fe²⁺ et Fe³⁺ en quantité égale (16 au total) (Fe_B). De ce fait, la magnétite est une spinelle dite *inverse* et se note (Fe³⁺)[Fe²⁺Fe³⁺](O²⁻)₄.

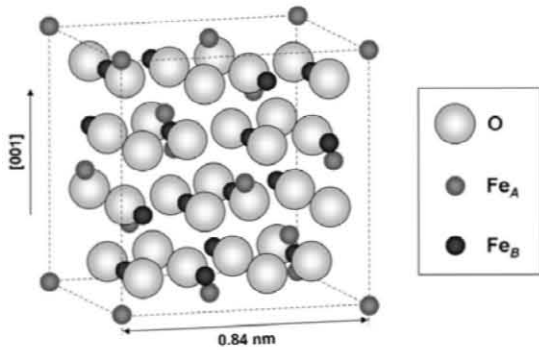


Figure 4.1 : Structure cristalline de la spinelle inverse Fe₃O₄.

On notera que le paramètre de maille de Fe₃O₄ ($a_{\text{Fe}_3\text{O}_4} = 0.84 \text{ nm}$) est deux fois supérieur à celui du MgO ($a_{\text{MgO}} = 0.421 \text{ nm}$). Le désaccord paramétrique n'est donc que d'environ 0.3%. Cette faible valeur est propice à une bonne épitaxie suivant la relation Fe₃O₄(001)[100] || MgO(001)[100] et présage des interfaces électrode/barrière de haute qualité.

4. 1. 2. Structure électronique et demi-métallicité

Dans une structure de type spinelle, les cations sont séparés les uns des autres par des anions. Dans le cas de la magnétite, la symétrie de l'environnement oxygène du cation de fer (octaèdre ou tétraèdre) va donner lieu à des liaisons particulières entre les orbitales 3d du cation et 2p de l'anion. Un cation dans un environnement octaédrique va voir ses orbitales t_{2g} (d_{xy}, d_{xz}, d_{yz}) former une liaison π et ses orbitales e_g ($d_{z^2}, d_{x^2-y^2}$) une liaison σ avec les orbitales 2p de l'oxygène. Les liaisons σ étant fortement hybridées donc plus énergétiques, cela va induire une levée de dégénérescence des niveaux 3d du cation en un triplet (t_{2g}) et un doublet (e_g). A noter que pour un cation en environnement tétraédrique, les considérations précédentes s'inversent.

Les hybridations entre les orbitales des cations et des anions donnent lieu, par ailleurs, à de nouvelles interactions d'échange : le *double-* et le *super-échange*. Ce dernier sera discuté plus en détails au paragraphe suivant. Le principe du *double-échange* repose sur un transfert d'électrons entre cations de valences différentes via l'oxygène. Cet effet a été introduit par C. Zener en 1951 [65]. Dans son article, C. Zener s'est intéressé à la conductivité électrique des pérovskites (La_{1-x}A_x)MnO₃ avec A : Ca, Sr ou Ba. Dans ces composés, afin de conserver la neutralité électrique, lorsque des ions La³⁺ sont remplacés par des ions A²⁺, la même proportion d'ions Mn³⁺ est remplacée par des ions Mn⁴⁺. La conductivité électrique apparaît lors du transfert simultané d'électrons entre les ions Mn³⁺ et Mn⁴⁺ via l'anion O²⁻. Par ailleurs, puisque les orbitales 2p de l'oxygène sont pleines, le spin de l'électron est conservé pendant l'échange entraînant un couplage ferromagnétique entre les cations considérés. Le double-échange induit donc une relation entre conductivité électrique et ordre ferromagnétique.

Le même mécanisme se produit dans la magnétite : la conductivité électrique est due au transfert d'un électron entre les cations Fe_B de valence différente (Fe²⁺ et Fe³⁺) par l'intermédiaire d'un ion oxygène. Un premier saut d'électron se produit d'un ion Fe²⁺ sur un anion O²⁻ suivi d'un autre saut « simultané » du même anion O²⁻ vers un cation Fe³⁺. Comme

on l'a vu précédemment, le spin de l'électron est conservé lors des sauts ce qui signifie que seule une population de spin va contribuer à la conductivité électrique. Le mécanisme de double-échange est donc à la base de la demi-métallicité de la magnétite.

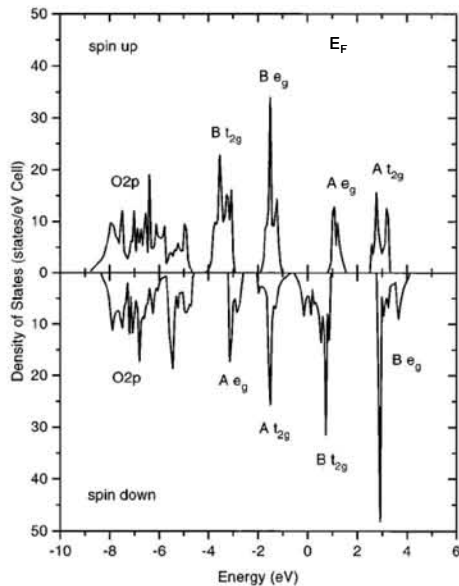


Figure 4.2 : Densité d'états de Fe_3O_4 . Source [64].

Les calculs de structure électronique effectués par Z. Zhang *et al.* [63] ou encore V.I. Anisimov *et al.* [64] prédisent une polarisation 100% négative de la magnétite puisque seuls les spins minoritaires sont présents au niveau de Fermi (fig. 4.2). La conductivité électrique est assurée par les électrons de spin \downarrow en sites B et plus particulièrement ceux appartenant aux orbitales t_{2g} .

Expérimentalement, les mesures de polarisation par photoémission résolue en spin s'accordent en général à en démontrer sa valeur négative. Cependant, le fait de la demi-métallicité réelle de la magnétite reste encore en débat. Il apparaît, par ailleurs, que la polarisation soit sensible à la méthode d'élaboration, à l'orientation des

films mais également au choix du substrat. Les plus fortes valeurs obtenues par photoémission donnent une polarisation de $-(80 \pm 5) \%$ pour des films de $Fe_3O_4(111)$ sur $W(110)$ [66] et $-(55 \pm 10) \%$ pour $Fe_3O_4(100)$ sur $MgO(001)$ [67,68]. De plus, les mesures de polarisation type Tedrow et Meservey ont un intérêt limité pour la magnétite étant donné que ces dernières impliquent des températures de mesure très en-dessous de la *transition de Verwey* (voir § 4.1.4).

4. 1. 3. Magnétisme

Le paragraphe précédent a fait état de l'existence d'un couplage ferromagnétique entre les cations Fe_B dû au double-échange. Pour autant, ce n'est pas ce mécanisme qui va dominer l'ordre magnétique dans la magnétite et plus généralement dans les ferrites. L'hybridation des orbitales 2p de l'oxygène avec les orbitales d de la magnétite donne lieu à une autre interaction d'échange indirect appelée super-échange et qui contrairement au double-échange intervient entre cations de même valence. L'existence de cet effet a été suggéré par H.A. Kramers en 1932 [69] et fût largement développé par P.W. Anderson dans les années 1950 [70,71]. Il fût nuancé par

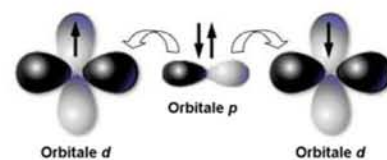


Figure 4.3 : Représentation schématique du principe de super-échange pour un angle de 180° . La mise en commun des électrons lors de l'hybridation des orbitales d et p entraîne un couplage anti-ferromagnétique des cations.

J.B. Goodenough en termes d'« échange semicovalent » dans le cas des liaisons $\text{Fe}^{3+}\text{-O}^{2-}\text{-Fe}^{3+}$ par exemple [72].

Simplement, si on considère un anion O^{2-} entouré par deux cations identiques aux orbitales à moitié remplies (cas des ions Fe^{3+}), l'hybridation de leurs orbitales va mettre en commun deux électrons de spins antiparallèles. Comme les électrons de l'anion sont eux aussi antiparallèles, l'interaction totale va résulter en un couplage antiferromagnétique des cations (fig. 4.3). Il a de plus été montré que l'intensité de ce couplage est maximale pour des ions proches et formant un angle de 180° . En guise de précision, le signe du couplage induit par super-échange dépend de l'angle entre les liaisons Fe-O. Les considérations précédentes s'appliquent au cas de la magnétite mais par exemple pour un angle de 90° , le couplage est ferromagnétique.

En considérant comme négligeables toutes interactions possibles entre les ions Fe_A [73], la structure magnétique de Fe_3O_4 provient essentiellement du couplage ferromagnétique entre les ions Fe_B^{2+} et Fe_B^{3+} (double-échange) et du fort couplage antiferromagnétique des ions Fe_A et Fe_B^{3+} , comme illustré sur la figure 4.4. Du fait de la répartition des ions dans la maille, la contribution magnétique des ions Fe^{3+} en sites A et B se compense (8 Fe^{3+} en sites A et B). Seuls les ions Fe^{2+} , 8 en sites B, contribuent à l'aimantation résultante de Fe_3O_4 . La magnétite est alors un composé ferromagnétique ou

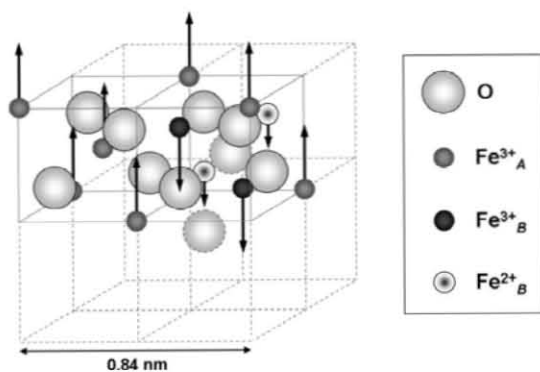


Figure 4.4 : Contribution magnétique des ions Fe^{2+} et Fe^{3+} dans la spinelle inverse Fe_3O_4 . Un fort couplage antiferromagnétique entre les cations Fe^{3+}_A et Fe^{3+}_B domine les interactions magnétiques complexes de Fe_3O_4 .

plus précisément ferrimagnétique, terme hérité de la théorie que Louis Néel développa en 1948 lorsqu'il étudia les propriétés magnétiques des ferrites spinelles [74].

En-deçà de sa température de Curie $T_C \sim 858 \text{ K}$, la magnétite présente donc une aimantation spontanée. La valeur élevée de T_C comparée à celles d'autres oxydes magnétiques ($T_C \sim 360 \text{ K}$ pour $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ et $\sim 395 \text{ K}$ pour CrO_2) est un des intérêts d'utiliser la magnétite dans des structures types JTMs pour son potentiel à donner de larges valeurs de TMR à température ambiante. Il est à préciser que l'axe de facile aimantation de la magnétite

correspond à la direction $[111]$ du cristal au-dessus de la transition de Verwey et $[100]$ en-dessous. Par conséquent dans nos mesures sur films minces, le champ magnétique extérieur ne sera pas appliqué selon l'axe facile de la magnétite puisqu'on s'intéresse aux films minces (001).

4. 1. 4. Transition de Verwey

La description de la magnétite, macroscopiquement parlant, ne serait pas complète si on omettait de parler d'un phénomène particulier appelé transition de Verwey. Pour une température critique T_V , la magnétite subit une transition brutale correspondant à un

changement spontané de conductivité électrique (et autres caractéristiques) concomitant avec un changement de structure cristalline.

Si on se fixe sur la conductivité électrique (fig. 4.5), à température ambiante sa valeur avoisine les $200 \Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$. Elle diminue progressivement lorsque l'échantillon est refroidi suivant un comportement semi-conducteur mais à $T_V \sim 120 \text{ K}$ s'opère une chute brutale de sa valeur de plusieurs ordres de grandeur.

Dans son article de 1939 [76], E.J.W. Verwey attribua la perte de conductivité à l'apparition d'un ordre de charge longue distance pour $T \leq T_V$. A savoir qu'à $T \geq T_V$, la relativement haute conductivité électrique de la magnétite est attribuée aux sauts rapides d'électrons entre cations Fe^{2+} et Fe^{3+} aléatoirement distribués sur les sites B (voir § 4.1.2). Il est d'ailleurs supposé que la rapidité des sauts ne permet pas au final de distinguer les cations 2+ et 3+ entre eux, sorte de désordre de charge. Il en résulte une distribution statistique où les cations seraient affectés d'une charge intermédiaire 2.5+. A basse température en revanche, un ordre de charge s'établirait : la maille « basse température » alors supposée trigonale serait composée d'une succession de plans où les cations de valence différente appartiendraient chacun à des plans distincts par contraste avec la distribution aléatoire des cations dans la phase « haute température ». Cet ordonnancement périodique localiserait les électrons induisant par la même une chute de conductivité.

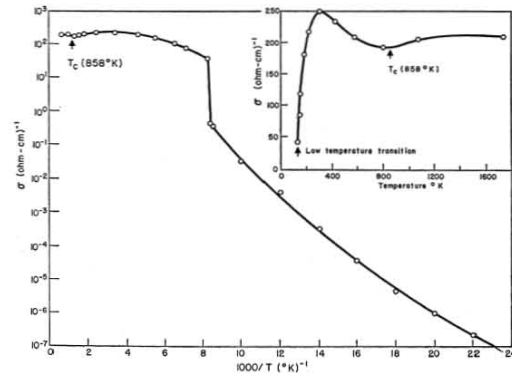


Figure 4.5 : Dépendance en température de la conductivité électrique de Fe_3O_4 . Source [75].

Expérimentalement, la transition structurale de la magnétite a été assez rapidement identifiée [77] et le passage d'une symétrie cubique de la maille à une symétrie plus basse, monoclinique, est largement accepté.

En revanche, le « modèle de Verwey » pour la transition électronique prônant un ordonnancement de charge au-dessous de T_V , même s'il fût considéré comme acquis sans souffrir de justifications supplémentaires, a peu à peu fait naître la controverse. Un arsenal de techniques expérimentales a été déployé pour tester la validité du modèle. Mais, même après 60 ans de publications fécondes sur le sujet, la polémique persiste : on trouve autant d'arguments en faveur d'un ordre de charge [78-81] que d'arguments réfutant jusqu'à son existence [82-85].

Cependant, les récentes publications théoriques sur le sujet montrent que l'ordre de charge même s'il existe, ne serait pas le mécanisme gouvernant la transition électronique. Comme il a été suggéré dès les années 1975, le couplage électron-phonon doit jouer un rôle prépondérant dans la transition tant au niveau structural qu'électronique [86]. Pour plus de détails sur cette interprétation, le lecteur est invité à consulter la publication récente de P. Pierkarz *et al.* [87].

4. 1. 5. Particularité des couches minces

L'intégration dans des dispositifs types JTMs suppose l'utilisation de Fe_3O_4 en couches minces. Le passage du monocristal aux couches épitaxiées va induire des changements/nouveautés dans les propriétés physiques de la magnétite. Parmi eux/elles, les plus remarquables portent sur le magnétisme et la transition de Verwey.

4. 1. 5. 1. Parois d'antiphase

Aux premières études de couches minces de magnétite, des déviations par rapport aux propriétés physiques connues des monocristaux sont apparues. Au niveau magnétique par exemple D.T. Margulies *et al.* [88] font état de l'apparition d'anomalies avec en premier plan une approche à saturation très difficile ; l'application d'un champ magnétique extérieur de 70 kOe peut se révéler insuffisant à saturer l'échantillon alors que le champ d'anisotropie du massif n'est que de 310 Oe. Les auteurs ont, par ailleurs, mis en évidence que cet effet semble indépendant de la technique d'élaboration, du substrat choisi pour la croissance des films et ne notent à l'époque qu'une faible voire négligeable dépendance en température du comportement magnétique anomal des couches minces. Une des hypothèses émise et qui sera confirmée par la suite, repose sur une origine structurale de ce phénomène et plus particulièrement sur la présence de parois d'antiphase (abrégé APBs pour *antiphase boundaries*).

Ces défauts structuraux proviennent directement de fautes d'empilement durant la croissance. Par exemple, dans les premiers stades de croissance de $\text{Fe}_3\text{O}_4(001)$ sur $\text{MgO}(001)$, des îlots se forment. Le paramètre de maille de Fe_3O_4 (0.84 nm) est deux fois supérieur à celui de MgO (0.421 nm). Le décalage entre les différents îlots ne coïncide pas forcément avec le vecteur de translation de la maille considérée. Aussi, la coalescence de ces îlots donne-t-elle lieu à l'apparition d'APBs.

En 2003, lors de sa thèse, W. Eerenstein fit une étude complète sur les APBs dans les films de magnétite (001) déposées sur MgO [89]. Au niveau structural tout d'abord, ses résultats ont montré que la densité d'APBs était sensible à tout traitement thermique effectué pendant ou après la croissance. La taille des domaines d'antiphase augmente comme la racine carrée de l'épaisseur (fig. 4.6(b) et (c)) et pour une épaisseur donnée avec le temps de recuit de la couche ou sa température de dépôt (fig. 4.6(a)).

Cette étude démontre donc que les APBs, du moins leur densité, n'est pas fixée aux premiers stades de croissance mais qu'au contraire les APBs peuvent migrer par un processus de diffusion thermiquement activé. Des résultats similaires ont été obtenus sur les films de $\text{Fe}_3\text{O}_4(111)$ déposés sur saphir par A.M. Bataille au cours de sa thèse [91]. Cette variation de la densité d'APBs est un résultat particulièrement important puisqu'il suggère qu'en trouvant les bonnes conditions d'élaboration des films minces, on peut réduire la densité d'APBs dans les couches et *de facto* minimiser l'impact des anomalies magnétiques. Il montre de plus que l'optimisation des conditions de croissance ne peut à elle seule permettre de mesurer une jonction tunnel correspondant à un seul domaine d'antiphase : on ne peut espérer gagner plus d'un facteur 2 ou 3 sur la taille des domaines qui restera donc toujours très inférieure aux tailles des motifs de lithographie optique. En revanche, l'augmentation attendue des tailles de domaines permet d'espérer définir un pilier monodomaine par lithographie optique.

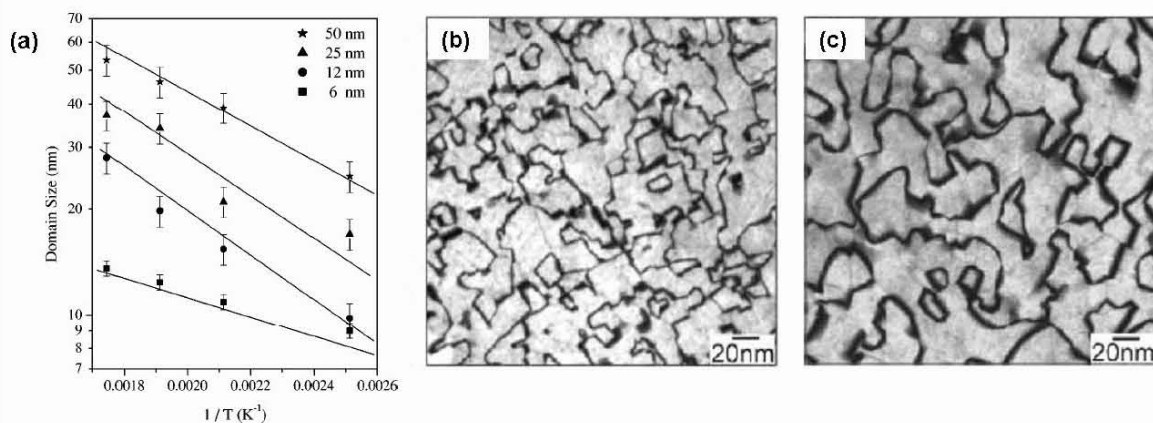


Figure 4.6 : (a) Taille des domaines en fonction de la température de dépôt et de l'épaisseur des couches de Fe_3O_4 . Source [90]. (b) et (c) Images TEM en champ sombre obtenues à partir de la réflexion (220) d'une couche de, respectivement, 12 nm et 25 nm de Fe_3O_4 sur MgO déposée à 250°C. Source [89].

Reste à savoir comment un défaut structural peut engendrer des anomalies magnétiques. Simplement, l'apparition d'APBs entraîne la création de nouvelles liaisons cation-anion ou cation-cation non présentes dans le massif. Ces dernières vont être le lieu de nouvelles interactions magnétiques (échange direct ou super-échange) (voir § 4.1.3) résultant en un couplage entre les domaines. Ce couplage, au départ supposé exclusivement antiferromagnétique par D.T. Margulies *et al.* [92] apparaît pouvoir être également ferromagnétique [89]. Même s'il reste impossible de faire une statistique sur la nature du couplage entre domaines, la présence effective de domaines antiferromagnétiquement couplés va fortement jouer sur le magnétisme des couches minces et explique l'approche à saturation difficile comparé au massif. Un modèle semi-analytique a été proposé par J.B. Moussy *et al.* qui décrit bien l'approche à saturation des films [93]. Ce modèle a par la suite été affiné par A.M. Bataille *et al.* [94] qui ont montré qu'effectivement seule une partie des APBs contribue aux anomalies magnétiques de Fe_3O_4 .

Par ailleurs, il a été montré que la présence d'APBs affecte également les propriétés électriques des films minces puisque l'apparition de domaines couplés antiferromagnétiquement limite le transfert de charges par sauts d'électrons entre sites octaédriques [95]. La conséquence directe est une perte de conductivité qui sera d'autant plus importante que l'épaisseur du film est fine.

4. 1. 5. 2. Transition de Verwey

L'étude du comportement magnétique anomal a aussi mis en lumière une autre particularité des couches minces. En s'attachant à la dépendance en température du comportement magnétique, il s'est avéré que, passée une certaine épaisseur, la transition de Verwey semble s'absenter.

Les travaux expérimentaux sur le matériau massif ont montré que la transition de Verwey est extrêmement sensible, entre autres, à la bonne stœchiométrie des échantillons [96], aux contraintes appliquées sur l'échantillon [97,98] ou encore à la technique d'élaboration. Sur les couches minces, un effet supplémentaire lié à la taille finie des couches peut de plus être envisagé. Il faut distinguer ici les études portant sur les films

déposés sur MgO (de loin les plus nombreuses), pour lesquels les films de Fe₃O₄ du fait du faible désaccord paramétrique, sont contraints dans les gammes d'épaisseurs qui nous intéressent, de celles évoquant des films déposés sur saphir pour lesquels les films sont relaxés dès que leur épaisseur dépasse 3 nm. Les premières où l'épaisseur avant relaxation est approximativement 600 nm, montrent une diminution progressive de T_V avec l'épaisseur et ne rapportent la plupart du temps aucune transition pour les films plus minces que 50 nm. Au contraire, les échantillons déposés sur saphir ont une T_V constante jusqu'à 20 nm, épaisseur à laquelle la transition disparaît [99].

4. 2. Croissance et étude structurale des empilements

Les échantillons à base de magnétite ont été élaborés par la main experte d'Etienne Snoeck au CEMES à Toulouse dans un bâti de pulvérisation cathodique ultra-vide. Les échantillons comparatifs, sans magnétite, ont quant à eux été effectués à Nancy en combinant un bâti d'épitaxie par jets moléculaires (croissance de la bicouche Fe/MgO(001)) avec un bâti de pulvérisation cathodique (électrode supérieure de Co). Tous les échantillons ont été élaborés sur des substrats monocristallins de MgO(001). Nous allons dans ce paragraphe détailler la qualité structurale des différents empilements.

4. 2. 1. Echantillons Fe / MgO / Co

4. 2. 1. 1. Croissance

La croissance de la bicouche Fe/MgO(001) s'effectue via un bâti de MBE de la même manière que pour des échantillons standards Fe/MgO/Fe(001) (voir Annexe). Brièvement, après le dépôt d'une couche protectrice de MgO sur le substrat, la couche de Fe est déposée à température ambiante et recuite à 450°C pour aplanir la surface. Le dépôt de la barrière de MgO se fait ensuite à température ambiante. La bicouche est ensuite placée dans un bâti de pulvérisation cathodique où l'électrode supérieure de Co est déposée à température ambiante par pulvérisation magnétron ainsi que la suite de l'empilement. La structure complète de la multicouche est : MgO(001) // MgO (10 nm) / Fe (45 nm) / MgO (3 nm) / Co (2 nm) / Ta (0.5 nm) / Co (2 nm) / IrMn (10 nm) / Pt (3 nm). La séquence d'empilement de l'électrode supérieure a été motivée par l'expertise du laboratoire en pulvérisation sur barrière d'alumine amorphe. Du Co déposé directement sur alumine n'est pas texturé et ne présente pas un champ coercitif suffisant pour se dissocier de celui du Fe. Une couche de Ta amorphe sert alors à initier la texture de la couche de Co suivante servant elle-même à texturer la couche d'IrMn. Les deux couches de Co et d'IrMn sont *fcc* et texturées (111) ce qui permet d'obtenir un système ferromagnétique / antiferromagnétique générant un champ d'échange suffisant pour avoir deux électrodes magnétiquement indépendantes [100]. Enfin, un recuit sous champ est effectué pour maximiser le champ d'échange [101]. On garde cependant à l'esprit que la couche active de Co sera dans notre cas déposée sur une barrière monocristalline et non amorphe. La barrière de MgO est susceptible d'initier un empilement cristallin spécifique du Co contrairement à une barrière d'alumine amorphe.

4. 2. 1. 2. Caractérisation structurale

La figure 4.7 montre les images obtenues par microscopie électronique en transmission (abrégé TEM en anglais) de la structure complète, en haute résolution (HRTEM) sur la figure 4.7(b). La barrière de MgO est continue (fig. 4.7(a)) ; les interfaces abruptes et peu rugueuses (fig. 4.7(b)). L'image HRTEM rend compte de la qualité d'épitaxie de la multicouche.

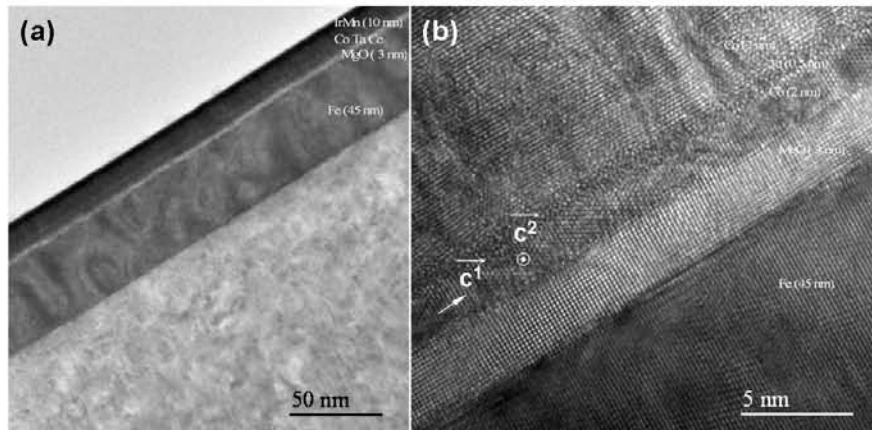


Figure 4.7 : Images obtenues par TEM en (a) champ clair et (b) haute résolution (HRTEM) pour l'empilement Fe/MgO/Co. La notation c^1 et c^2 dénote les deux variants du Co hcp (voir texte).

La couche active de Co à l'interface avec la barrière de MgO est relaxée dans la structure stable hexagonale compacte (*hcp*). Elle présente deux variants où l'axe hexagonal c est dans le plan des couches, parallèle soit à la direction $[100]$ et noté c^1 , soit à la direction $[010]$ et noté c^2 . Ce comportement est conforme aux résultats expérimentaux de la thèse de J. Faure-Vincent pour du Co sur Fe(001) [14] ainsi qu'aux travaux plus antérieurs de H. Wormeester *et al.* en 1996 [102] pour du Co sur W(001).

En prenant en compte ces deux variants, la relation d'épitaxie pour l'empilement est alors : MgO-substrat(001)[100] || Fe(001)[110] || MgO(001)[100] || Co¹(11-20)[0001] et Co²(11-20)[1-100].

On notera que sur la couche amorphe de Ta, les couches de Co et d'IrMn sont toutes deux *fcc* et présentent une séquence d'empilement de type ABCABCA... des plans (111). Les conditions de croissance nécessaires à l'obtention d'un champ d'échange maximum pour l'électrode supérieure sont donc remplies.

4. 2. 2. Echantillons à base de magnétite : Fe / Fe₃O₄ / MgO / Co

4. 2. 2. 1. Choix de l'électrode inférieure

Le choix d'utiliser une bicouche Fe(001)/Fe₃O₄(001) comme électrode inférieure a été motivé par les études relativement récentes de N. Spiridis *et al.* sur la structure en surface de couches de magnétite épitaxiées. En 2004, ces auteurs ont montré que la surface des films de magnétite déposés directement sur MgO(001) était plus stable après traitement thermique. En première hypothèse, cela a été associé à la présence de lacunes de Fe en

surface. En contrepartie, des recuits ou dépôts à température trop élevée entraînent d'une part, de l'interdiffusion à l'interface MgO/Fe₃O₄ et d'autre part, la ségrégation en surface du Mg provenant du substrat [103]. En 2006, ces mêmes auteurs présentent une alternative en déposant un buffer de Fe au préalable sur le substrat. L'idée était d'offrir un réservoir de Fe à la magnétite pour compenser sa déficience en Fe observée précédemment. Il s'en est suivi une reproductibilité topographique (reconstruction ($\sqrt{2} \times \sqrt{2}$)R45°) de la surface qui s'apparente à celle des monocristaux Fe₃O₄(001) [119]. En outre, par ce biais, on s'affranchit également de la diffusion du Mg à travers le film de magnétite [104], le Fe jouant le rôle de barrière anti-diffusion. Pour autant, le désaccord paramétrique d'environ 3.5 % entre le Fe et Fe₃O₄ va assurément induire de fortes contraintes dans la couche de magnétite comparé à un film déposé directement sur MgO. On s'attend donc en contrepartie à l'apparition de dislocations à l'interface Fe/Fe₃O₄.

4. 2. 2. 2. Croissance

Les multicouches que nous avons étudiées ont été faites entièrement dans un bâti de pulvérisation ultra-vide (basse pression de l'ordre de 10⁻⁸ Torr). Les substrats de MgO(001) sont portés à 800°C pendant une heure avant tout dépôt. Le buffer de Fe(001) est déposé à température ambiante par pulvérisation magnétron en tension continue (DC) dans une atmosphère d'argon de 5.10⁻³ Torr. Les films de Fe₃O₄ sont obtenus suite à la pulvérisation réactive en mode radio-fréquence (RF) de 100 W de deux cibles de Fe₂O₃ en vis-à-vis dans une atmosphère d'argon de 5.10⁻³ Torr, le dépôt se faisant à 400°C. La vitesse de dépôt de la couche de Fe₃O₄ est de 0.4 nm par minute. Ces paramètres d'élaboration se sont déjà révélés optimaux pour obtenir des films de magnétite sur MgO(001) d'une stœchiométrie équivalente à celle du massif [105]. Après le dépôt de la barrière de MgO à 100°C, la couche de Co formant l'électrode supérieure est élaborée à température ambiante. En tenant compte d'une couche d'or protectrice, l'empilement complet est : MgO(001) // Fe (8 nm) / Fe₃O₄ (8 nm à 12 nm) / MgO (2 nm) / Co (10 nm) / Au. L'épaisseur de la barrière de MgO a été volontairement réduite de 3 à 2 nm, comparé aux échantillons Fe/MgO/Co, du fait de l'apparition d'APBs (voir § 4.1.5.1) dans les films minces de magnétite et donc de l'augmentation attendue de sa résistivité intrinsèque.

4. 2. 2. 3. Caractérisation par microscopie électronique en transmission

La figure 4.8 montre les images TEM sur un échantillon avec une électrode en magnétite. Il est à noter que plusieurs échantillons avec chacun des épaisseurs différentes de Fe(001) et de Fe₃O₄(001) ont été testés (entre 8 ou 12 nm) ; aucun changement significatif dans la qualité structurale n'est apparu. L'échantillon imagé ici a 8 nm de Fe et 12 nm de Fe₃O₄.

De la même manière que précédemment (voir § 4.2.1.2), la barrière de MgO est continue (fig. 8(a)) et les interfaces semblent abruptes avec une rugosité faible (fig. 4.8(b)). L'intensité des points de la transformée de Fourier de l'image HRTEM (fig. 4.8(c)) reproduisant le cliché de diffraction est un gage de l'existence d'une structure périodique. Elle appuie la haute qualité d'épitaxie des couches.

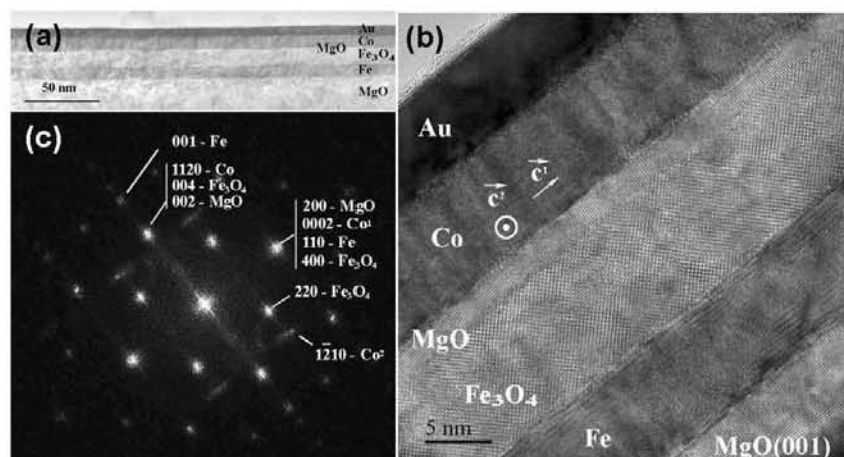


Figure 4.8 : Images obtenues par TEM en (a) champ clair et (b) haute résolution (HRTEM) pour l'empilement Fe / Fe₃O₄ / MgO / Co. La notation c^1 et c^2 dénote les deux variants du Co hcp. (c) Transformée de Fourier de (b).

La couche de Co est hcp et présente également deux variants (voir § 4.2.2.1), nous amenant à la relation d'épitaxie suivante pour la multicouche : MgO-substrat(001)[100] || Fe(001)[110] || Fe₃O₄(001)[100] || MgO(001)[100] || Co¹(11-20)[0001] et Co²(11-20)[1-100].

La table 4.1 regroupe les paramètres de maille et les désaccords effectifs entre couches voisines tirés de l'analyse des images TEM. Les désaccords effectifs ne dépassent pas les 3% et celui entre MgO et Fe₃O₄ est extrêmement faible (< 1 %) suggérant une qualité de l'interface particulièrement élevée.

Table 4.1 : Désaccords paramétriques effectifs entre couches adjacentes.

	Direction cristallographique	Paramètre de maille (nm)	Désaccord effectif
MgO (subst.)	[200]	0.21	
Fe (bcc)	[110]	0.203	+ 3.3 %
Fe ₃ O ₄ (fcc)	[400]	0.21	- 3.4 %
MgO (fcc)	[200]	0.21	< 1 %
Co ¹ (hcp)	[0002]	0.203	+ 3.3 %
Co ² (hcp)	[1-100]	0.19	+ 9.5 %

4. 2. 2. 4. Caractérisation par réflectivité X

La caractérisation RX de la multicouche s'est effectuée via un diffractomètre Seifert $\theta-2\theta$ utilisant la raie $K\alpha$ du Cu. Le profil de réflectivité expérimental a été simulé via un programme commercial appelé X'PERT REFLECTIVITY de PANalytical. Ce dernier permet de jouer sur la densité des matériaux, l'épaisseur des couches ou encore la rugosité.

Pour effectuer les simulations, chaque couche a été définie par la densité correspondant au matériau massif et par l'épaisseur attendue des couches lors de la croissance de l'échantillon. La simulation lancée, les valeurs de ces paramètres sont libres de changer. Seule a été fixée la borne supérieure de la densité comme étant celle du paramètre rentré (densité du massif) pour rester dans des considérations physiques. La figure 4.9 et la table 4.II montrent les résultats que nous avons obtenus sur un échantillon composé de 12 nm de Fe et 8 nm de Fe₃O₄. On obtient un très bon accord entre les profils de réflectivité expérimental et simulé.

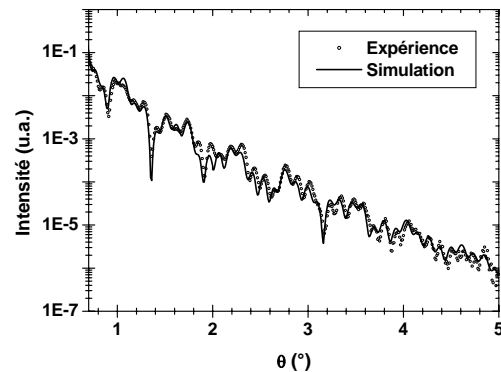


Figure 4.9 : Profils de réflectivité RX expérimental et issu de la simulation effectués sur une multicouche MgO // Fe / Fe₃O₄ / MgO / Co / Au.

Les valeurs extraites de la simulation du spectre de réflectivité (Table 4.II) montrent que les densités ainsi que les épaisseurs sont en très bon accord avec celles attendues. Par ailleurs, la faible rugosité obtenue confirme encore une fois la qualité remarquable des interfaces et particulièrement aux interfaces avec la barrière de MgO (environ 0.3 nm) validant définitivement cette multicouche comme bonne candidate pour des mesures de transport tunnel.

Table 4.II : Densité, épaisseur et rugosité des couches tirées de la simulation RX (fig.4.9).

	Densité massif	Densité simulée	Épaisseur simulée (nm)	Rugosité simulée (nm)
Fe	7.83	7.75	11.9	0.5
Fe ₃ O ₄	5.18	4.76	7	0.25
MgO	3.58	3.27	2	0.3
Co	8.9	8.8	9.9	0.34
Au	19.3	19.3	7.1	0.23

4. 3. Mesure de magnéto-transport : résultats et discussion

Le premier volet de cette partie est dédié uniquement aux échantillons contenant de la magnétite. Les propriétés physiques de nos films minces qui ressortent des cycles de magnétorésistance seront discutées en comparant nos observations avec la littérature (voir § 4.1.5). Le deuxième volet portera sur les résultats obtenus dans les échantillons sans magnétite. La dernière partie quant à elle consistera en une étude comparative des résultats obtenus lorsque l'on fait varier la tension aux bornes des JTMs avec et sans magnétite et les résultats seront discutés suivant l'analyse de la structure électronique de la contre-électrode de Co développée dans le troisième volet.

4. 3. 1. Spécificités des films minces de magnétite réalisés

Dans le § 4.1.5, il est fait état de deux particularités des films minces épitaxiés de magnétite, l'une étant l'apparition d'APBs, l'autre, la diminution de la température de la transition de Verwey (T_V) sinon sa disparition pour des épaisseurs de l'ordre de la dizaine de nanomètres. Regardons ce qu'il en est dans nos couches tout en sachant qu'il s'agit là de mesures indirectes puisqu'elles ne sont pas faites sur des films minces seuls mais incorporés dans des JTMs.

4. 3. 1. 1. Transition de Verwey

Se placer dans un régime d'épaisseur inférieur à 10 nm (ici 8 nm) pour les films de magnétite avait pour but de s'affranchir de la transition de Verwey. En abaissant la température de 300 K à 80 K, le produit RA des JTMs passe de $64 \text{ M}\Omega \cdot \mu\text{m}^2$ à $128 \text{ M}\Omega \cdot \mu\text{m}^2$. Le fait que le produit RA ne fasse que doubler avec la chute de la température semble indiquer l'absence d'une transition « métal-isolant » dans notre système. Ceci est en accord avec les résultats publiés dans la littérature.

On pourrait alors imaginer, non pas que la transition ait disparue mais qu'elle se passe à une température en-dessous de l'intervalle sondé. La diminution de la température de transition est souvent reliée à une qualité discutable des échantillons. Pourtant, la caractérisation structurale des échantillons a montré que nos films de magnétite sont très proches du massif (voir § 4.2.2). Par ailleurs, des études antérieures sur la méthode d'élaboration utilisée conjointement à l'empilement choisi confirment la bonne qualité des films [104,105]. On peut donc exclure toute déviation à la stœchiométrie comme étant à la base de l'absence de transition dans nos couches. Cependant, nos films de magnétite sont probablement contraints à cause de leur épitaxie sur Fe(001). Cela peut avoir une influence sur la transition de Verwey quoiqu'une distorsion du réseau aille dans le sens d'un ordonnancement des charges. L'hypothèse la plus plausible reste alors celle avancée par W. Eerenstein *et al.* d'une perte de l'ordre de charge à longue distance dû à l'apparition d'APBs.

4. 3. 1. 2. Parois d'antiphase

Comme cela a été souligné, nous n'avons pour seule base de discussion que les résultats des mesures faites sur l'empilement complet et en géométrie perpendiculaire aux plans des couches. La résistivité intrinsèque du film de magnétite n'a donc pas pu être évaluée. Les valeurs du produit RA de l'ordre de la centaine de $\text{M}\Omega$ sont certes très élevés mais ne reflètent pas l'influence d'APBs qui ne doit pas être significative en géométrie perpendiculaire mais planaire. De telles valeurs peuvent s'expliquer par de simples considérations de mécanismes de conduction dus au couple

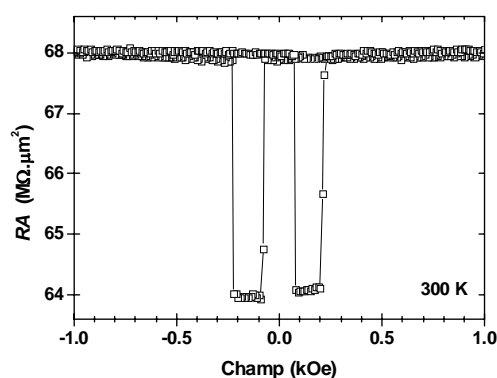


Figure 4.10 : Cycles magnétorésistifs des JTMs Fe/Fe₃O₄/MgO/Co à 300 K.

$\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{MgO}(001)$. Nous reviendrons sur ce point au § 4.3.3.3.

Maintenant si on s'attache aux cycles magnéto-résistifs que nous avons effectués, on note un retournement abrupt de la bicouche $\text{Fe}/\text{Fe}_3\text{O}_4(001)$ pour des faibles champs appliqués (~ 70 Oe) suivi d'un large plateau allant jusqu'à 500 Oe à 80 K (voir § 4.3.2.) où l'aimantation de la magnétite reste homogène. Le second retournement correspond à la couche de Co (fig. 4.10).

Ce comportement est remarquable puisque la présence d'APBs est reconnue pour rendre la saturation des films de magnétite extrêmement difficile. Cette amélioration des propriétés magnétiques suggère une densité d'APBs plus faible dans la couche de magnétite comparée à ce qui est rapporté dans la littérature.

Au vu de ces résultats, une étude minutieuse a été menée au CEMES de Toulouse quant à l'impact d'un buffer métallique sur la densité d'APBs dans les couches de magnétite [106]. Plusieurs épaisseurs de magnétite ont été testées, 8 nm et 20 nm, déposées soit directement sur le substrat de $\text{MgO}(001)$ soit sur des buffers métalliques, $\text{Fe}(001)$ ou $\text{Cr}(001)$, à épaisseur fixe, respectivement 8 nm et 4 nm.

En sondant les propriétés magnétiques de ces différents échantillons à 300 K, il apparaît que l'approche à saturation est facilitée lorsqu'un buffer métallique est déposé préalablement à la couche de magnétite. Les cycles d'aimantations révèlent que les échantillons comportant du $\text{Fe}(001)$ ou du $\text{Cr}(001)$ atteignent la saturation pour des champs largement inférieurs (10 – 15 kOe) que ceux nécessaires à la saturation d'une

couche de magnétite seule (plus de 70 kOe) quelque soit l'épaisseur de cette dernière. Par ailleurs, en comparant l'impact des deux buffers métalliques testés, le $\text{Fe}(001)$ apparaît plus propice que le $\text{Cr}(001)$ à une saturation précoce de la bicouche puisque pour 8 nm de magnétite, cette dernière atteint 95 % de son aimantation maximale à 1 kOe (fig. 4.11).

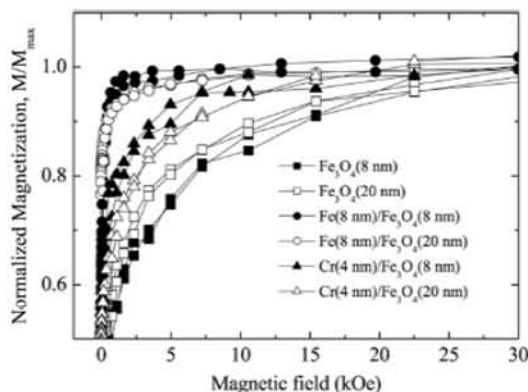


Figure 4.11 : Approche à saturation d'échantillons avec et sans buffer métalliques à 300 K.

Afin de vérifier si cet effet est lié à la densité d'APBs dans les films de magnétite, des études par TEM en champ

sombre ont été effectuées sur les bicouches métal-magnétite avec 20 nm de magnétite puis comparées à une couche de magnétite seule (fig. 4.12). Les images montrent sans ambiguïté une densité plus faible d'APBs lorsqu'un buffer métallique est utilisé. Un nombre de parois diminué implique une réduction des interactions antiferromagnétiques entre domaines (voir § 4.1.5.1) et peut expliquer en conséquence une approche à saturation plus aisée.

L'origine de ce phénomène reste cependant à déterminer. Les APBs étant des défauts d'origine structurale, l'importance du désaccord paramétrique entre $\text{Fe}_3\text{O}_4(001)$ et $\text{Fe}(001)$ ou $\text{Cr}(001)$, 3.5 %, suggérerait une augmentation des défauts dans la couche de magnétite comparé à un film directement déposé sur $\text{MgO}(001)$ où le désaccord entre mailles avoisine 0.3 %. Ceci est pourtant en désaccord avec les résultats précédents où une réduction nette

de la densité d'APBs dans une couche pourtant fortement contrainte a été mise en évidence. Une piste proposée par les auteurs serait alors de comprendre l'influence de la méthode de croissance de la magnétite sur buffers métalliques qui diffère de la croissance de la magnétite sur MgO(001).

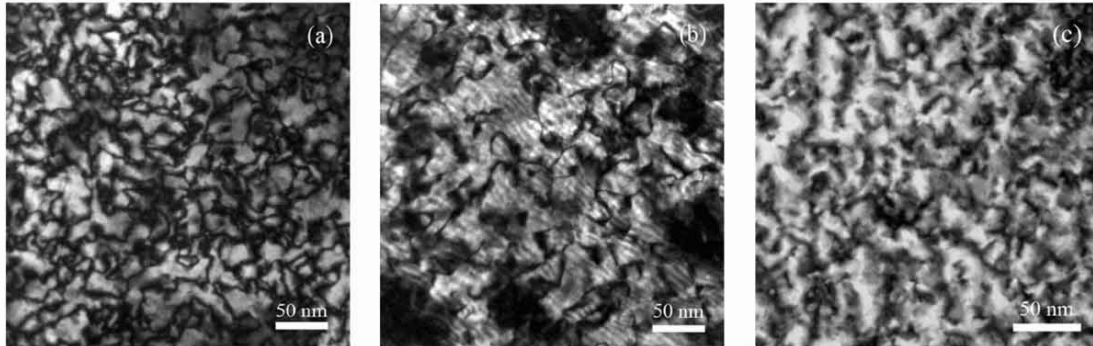


Figure 4.12 : Images TEM en champ sombre d'une couche de magnétite obtenues à partir de la réflexion (440) : (a) MgO //Fe₃O₄(20 nm), (b) MgO // Fe(8 nm) / Fe₃O₄(20 nm) et (c) MgO // Cr(4 nm) / Fe₃O₄(20 nm). Source [106].

Par ailleurs, les interactions magnétiques potentielles entre buffer métallique et films de magnétite ont jusqu'ici été négligées. Pourtant, un couplage magnétique à l'interface buffer/Fe₃O₄ est à envisager. Récemment, M. Zajac *et al.* [107] ont d'ailleurs montré une tendance à un faible couplage ferromagnétique à l'interface Fe/Fe₃O₄(001) qui se manifeste par une augmentation du coercitif de la bicouche comparé à celui d'une simple couche de Fe(001) sur MgO(001). Ces mêmes auteurs envisagent une diminution de la densité d'APBs suite à leur étude qui montre que l'utilisation d'un buffer de Fe(001) supprime totalement le superparamagnétisme des films minces de Fe₃O₄(001), superparamagnétisme provenant également des APBs [108].

En conséquence, les interactions magnétiques à l'interface peuvent également jouer un rôle sur la densité d'APBs dans les films minces de magnétite. La nature des interactions magnétiques aux interfaces Fe/Fe₃O₄ ou Cr/Fe₃O₄ pourrait induire une densité différente d'APBs dans les films de magnétite.

4. 3. 1. 3. Valeur de magnétorésistance tunnel des JTMs avec magnétite

Autant la littérature est-elle florissante sur les films minces de magnétite, autant leur intégration comme électrode(s) dans des JTMs reste-t-elle rare. On ne compte en effet qu'une douzaine d'articles où la magnétite a été utilisée comme électrode(s) de jonctions. A cela, la principale raison reste les faibles valeurs de TMR observées par rapport à celles attendues en tenant compte de la demi-métallicité calculée de ce matériau. Ces résultats suggèrent, par ailleurs, que les propriétés intrinsèques des films minces de magnétite ainsi que la modification éventuelle de leurs interfaces suite au dépôt d'une barrière isolante sont encore un questionnement actuel.

En se bornant à des articles ne faisant état que de TMR provenant sans ambiguïté de la jonction en elle-même, n'ont été mesurées que des valeurs inférieures à 2 % pour des systèmes Fe₃O₄/MgO/Fe₃O₄ [109,110]. Dans des JTMs à barrière d'alumine et contre-électrodes de Co [111,112] ou CoFe [113,114], les valeurs de TMR peuvent atteindre 15 % à température ambiante avec toutefois un record à 43 % rapporté par P. Seneor *et al.* à 4.2 K.

Des structures plus exotiques ont montré des valeurs de TMR négatives de -25% à 60 K dans $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{CoCr}_2\text{O}_4/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ [115] et allant jusqu'à -30% en-dessous de 135 K pour des empilements $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SrTiO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ [116].

La figure 4.13 montre les valeurs de TMR obtenues à 300 K et à 80 K sur un échantillon Fe (12 nm) / Fe_3O_4 (8 nm) / MgO (2 nm) / Co (10 nm) structuré en jonctions carrées allant de $10\text{ }\mu\text{m}$ à $40\text{ }\mu\text{m}$ de taille latérale. La vingtaine de jonctions scannées a montré la même tendance traduisant la reproductibilité des résultats.

On notera une fois de plus la forme particulièrement carrée de ces cycles ainsi que le large plateau de 500 Oe à 80 K où l'aimantation de la magnétite reste homogène.

La tension appliquée pendant la mesure des cycles était de -0.2 V , cette tension correspondant au maximum de TMR atteignable dans ce système (voir § 4.3.4). A tension « nulle », la TMR vaut -6% et -15% à, respectivement, 300 K et 80 K .

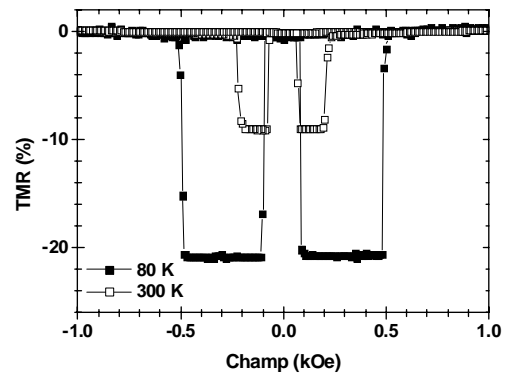


Figure 4.13 : TMR en fonction du champ appliqué pour $\text{Fe}/\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{MgO}/\text{Co}$ à 300 K et 80 K et -0.2 V .

Concernant la valeur de TMR en elle-même, il est vrai que c'est la plus forte valeur rapportée pour des JTMs associant une électrode de $\text{Fe}_3\text{O}_4(001)$ et une barrière de $\text{MgO}(001)$. Cependant, ces valeurs restent particulièrement faibles si on tient compte de la demi-métallicité calculée de la magnétite ou même de la polarisation en spin mesurée par différents groupes (voir § 4.1.2).

Maintenant, cela n'a pas de sens de considérer la magnétite seule mais il faut prendre en compte le fait qu'elle soit associée à la barrière de $\text{MgO}(001)$. L'efficacité d'injection va en effet dépendre du couple ferromagnétique/isolant comme dans le système modèle $\text{Fe}/\text{MgO}/\text{Fe}(001)$. Certes, on ne peut plus ici parler de symétrie Δ_i , il n'en reste pas moins que le $\text{MgO}(001)$ filtre différemment les électrons suivant le caractère orbital auquel ils sont rattachés. Les électrons de conduction de la magnétite sont de spins minoritaires et appartiennent aux orbitales $t_{2g}(d_{xy}, d_{xz}, d_{yz})$, seule population au niveau de Fermi (voir § 4.1.5.1). Les électrons d ont, de manière générale, une plus faible probabilité de transmission à travers une barrière tunnel comparés aux électrons s qui sont fortement délocalisés. De plus, l'effet filtrant du MgO octroie une probabilité encore plus faible de transmission des électrons d appartenant aux orbitales t_{2g} (cf. symétries Δ_5 et Δ_2' dans $\text{Fe}/\text{MgO}(001)$). Les électrons appartenant aux orbitales t_{2g} vont donc être fortement atténués dans le $\text{MgO}(001)$.

Il apparaît que l'injection de spins via le couple $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{MgO}(001)$ ne sera pas aussi efficace qu'avec une barrière sans effet filtrant. Les JTMs à barrière d'alumine par exemple peuvent montrer des valeurs de TMR plus importantes à tension nulle et 300 K même si ces valeurs restent en-dessous de ce que l'on peut espérer, surtout pour les JTMs ayant une seconde électrode en magnétite. En effet, indépendamment de l'efficacité d'injection, il est nécessaire que les fonctions d'onde électroniques puissent se propager dans la contre-électrode. Une analyse de la structure électronique du Co *hcp* avec l'axe c dans le plan des

couches selon la direction de haute symétrie correspondant au transport tunnel en géométrie perpendiculaire est donc nécessaire et fera l'objet du § 4.3.3.

4. 3. 2. Magnétorésistance tunnel dans les échantillons sans magnétite

Le cycle magnétorésistif de la figure 4.15 montre la valeur de TMR typique obtenue sur l'échantillon Fe (45 nm) / MgO (3 nm) / Co structuré en jonctions carrées allant de 10 μm à 40 μm de taille latérale.

Le champ d'échange de l'ordre de la dizaine d'oersteds est extrêmement faible comparé aux 200 - 300 Oe attendus suite à l'utilisation de l'antiferromagnétique IrMn pour la couche dure. Ce comportement reste inexplicable surtout lorsque la caractérisation structurale montre que les couches de Co et IrMn sont effectivement texturées (111) (voir § 4.2.1.2). Toutefois, on obtient des champs coercitifs différents pour chaque électrode même si le plateau en configuration antiparallèle ne dépasse pas la vingtaine d'oersteds.

Concernant la TMR à tension « nulle », on note sa valeur faible et positive avoisinant les 5 % à 300 K.

Contrairement au système modèle Fe/MgO/Fe(001), la demi-métallicité du Fe(001) exacerbée par l'utilisation d'une barrière de MgO(001) n'a plus le même impact sur l'effet magnétorésistif dès lors où la contre-électrode n'est pas également du Fe(001) et explique la réduction de la valeur de TMR.

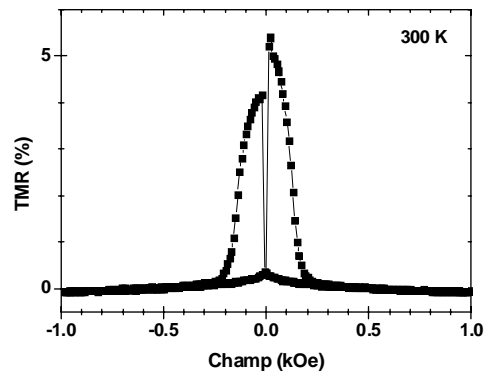


Figure 4.15 : TMR en fonction du champ appliqué pour Fe/MgO/Co à 300 K et 10 mV.

4. 3. 3. Structure électronique du Co *hcp* en $k_{\parallel} = 0$

Afin de simplifier l'approche des mécanismes possibles de transport dans nos échantillons d'étude, nous allons nous limiter à une discussion autour du transport tunnel en $k_{\parallel} = 0$ à l'instar des théories qui ont été développées pour les systèmes totalement épitaxiés et en particulier pour le système Fe/MgO/Fe(001). Aussi, le transport est-il supposé balistique et cohérent à travers l'empilement.

Pour nos deux échantillons, la contre-électrode est en Co *hcp* avec l'axe *c* dans le plan des couches. La direction de haute symétrie pour le transport tunnel en géométrie perpendiculaire correspond alors à la direction $\Sigma = \Gamma - M$ de la zone de Brillouin de la maille hexagonale (fig. 4.16(a)). Les états injectés par le couple électrode inférieure (Fe ou Fe₃O₄) / MgO seront donc analysés dans le Co en termes d'états accepteurs de symétrie Σ_i . La figure 4.16(b) montre le résultat des calculs de structures de bandes du Co *hcp* réalisés au laboratoire avec le code Wien2k pour la direction de propagation Σ et les deux directions de spin. Les différents états de Bloch, notés Σ_i , pouvant participer au transport tunnel sont ceux qui croisent le niveau de Fermi :

- Σ_1 pour les spins \uparrow ,
- Σ_1, Σ_2 et Σ_3 pour les spins \downarrow .

Chaque état électronique est indexé suivant les propriétés de symétrie des orbitales atomiques qu'il occupe. Les états de symétrie Σ_1 regroupent les orbitales s , p_y , $d_{x^2-y^2}$ et d_{z^2} , les états de symétrie Σ_2 correspondent aux orbitales p_x et d_{xy} , les états de symétrie Σ_3 aux orbitales d_{xz} et enfin les états de symétrie Σ_4 aux orbitales p_z et d_{yz} .

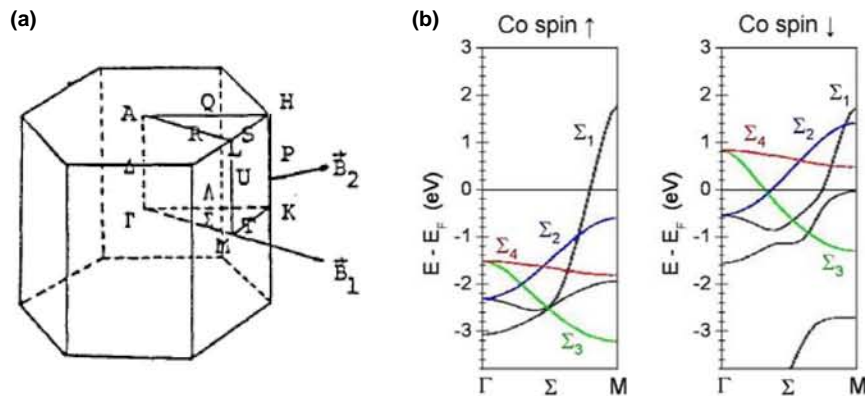


Figure 4.16 : (a) Première zone de Brillouin de la maille hexagonale dans l'espace réciproque. (b) Structure de bandes du Co hcp suivant la ligne de haute symétrie Σ pour les spins majoritaires (\uparrow) à gauche et minoritaires (\downarrow) à droite.

La structure de bandes du Co indique que ce dernier est un demi-métal pour toute autre symétrie que Σ_1 puisque les bandes relatives à cette symétrie sont les seules à croiser le niveau de Fermi des spins majoritaires et minoritaires.

4. 3. 4. Comportement en tension : comparaison et discussion

Nous allons désormais nous intéresser au comportement en tension de nos deux échantillons d'étude : avec et sans magnétite à l'électrode inférieure. La convention en tension est la suivante : en tension positive, les électrons sont injectés de l'électrode inférieure (Fe(001) ou Fe/Fe₃O₄(001)) vers l'électrode supérieure de Co. En tension négative, on scanne donc les états disponibles du Fe(001) ou du Fe₃O₄(001) suivant l'échantillon considéré.

La figure 4.17 montre la variation de la TMR en fonction de la tension appliquée aux bornes de la jonction en (a) pour Fe / MgO / Co et (b) pour Fe / Fe₃O₄ / MgO / Co.

Echantillon sans magnétite (fig. 4.17(a)) : en tension négative, la TMR augmente jusqu'à atteindre un maximum de + 12 % à - 0.15 V. En tension positive, la TMR décroît rapidement et s'inverse à + 0.15 V. La TMR décroît ensuite continument jusqu'à atteindre un minimum de - 11.3 % à + 0.8 V comme en témoigne l'encart.

Echantillon avec magnétite (fig. 4.17(b)) : en tension négative, la TMR décroît et atteint un minimum à - 0.2 V de - 8.5 % à 300 K et - 22 % à 80 K. En tension positive, on note une augmentation rapide de la TMR et un changement net de son signe à 80 K à + 0.3 V, ce

dernier étant plus réservé à 300 K. A + 0.6 V, on atteint un maximum de TMR positive (+ 5 %) comme le montre l'encart.

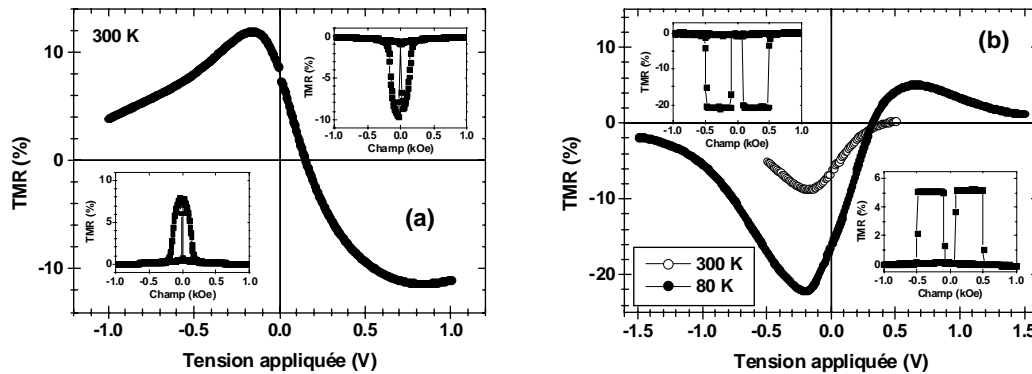


Figure 4.17 : Comportement en tension de la TMR pour (a) Fe / MgO / Co à 300 K et (b) Fe / Fe₃O₄ / MgO / Co à 300 K (cercles vides) et 80 K (cercles pleins). En encart : TMR en fonction du champ appliqué pris aux maxima de TMR positif et négatif pour (a) Fe / MgO / Co à 300 K et respectivement + 0.8 V et - 0.15 V et (b) Fe / Fe₃O₄ / MgO / Co à 80 K et respectivement + 0.8 V et - 0.2 V.

Les points communs à ces deux échantillons et qui nous ont au final amené à en faire une étude comparative sont :

- l'apparition d'une inversion de TMR lorsque les états disponibles au-dessus du niveau de Fermi du Co *hcp* sont sondés,
- la conservation du signe de la TMR en tension négative lorsque les états disponibles au-dessus du niveau de Fermi de l'électrode inférieure sont sondés.

La connaissance des mécanismes de transport via le couple Fe/MgO(001) renseigne sur la polarisation positive du courant tunnel dominée par la propagation des états Δ_1 et regroupant les orbitales s , p_z et d_{z^2} . Aussi, le signe positif de la TMR à l'équilibre dans l'échantillon Fe/MgO/Co (fig. 4.17(a)) suggère-t-il en première approche, une polarisation positive du Co. En tension positive, en revanche, la TMR s'inverse. Cet effet peut être attribué à une inversion en tension de la polarisation du Co puisque cette inversion intervient lorsque les électrons sont injectés dans l'électrode de Co.

Concernant l'échantillon avec magnétite, la polarisation négative de cette dernière est largement acceptée et a été mise en évidence expérimentalement par, entres autres, des mesures de photoémission résolue en spin (voir § 4.1.2.). A l'instar de l'échantillon précédent, le signe négatif de la TMR à l'équilibre encourage dans une première approche à considérer une polarisation positive du Co. De même, l'inversion en tension positive évoque une nouvelle fois une inversion de la polarisation du Co.

Des effets similaires semblent donc se produire en tension et semblent être du fait du Co *hcp* étudié. Nous avons donc cherché à en apprendre plus sur le Co *hcp*, la structure de bandes en l'état (voir § 4.3.3.) étant insuffisante à l'analyse de nos résultats expérimentaux. En effet, dans le système standard Fe/MgO/Fe(001) ou plus généralement dans les JTM

aux électrodes identiques, la conservation de la symétrie (Δ_i , Σ_i ou autre) des états propagatifs permet une analyse plus aisée que dans les systèmes qui nous occupent. En effet, ici on ne peut plus parler en termes de symétrie injectée/analysée Δ_i ou Σ_i puisque les combinaisons linéaires qui sous-tendent ces représentations irréductibles sont différentes. Par ailleurs, dans le cas du Fe_3O_4 , les calculs théoriques ont montré que seuls les électrons appartenant aux orbitales $t_{2g}(d_{xy}, d_{xz}, d_{yz})$ dans les spins minoritaires sont censés prendre part au transport tunnel.

Nous nous sommes donc restreints à une description « atomique » faisant cette fois référence aux caractères orbitaux. Pour ce faire, il est nécessaire de connaître la répartition des caractères orbitaux sur les bandes de symétrie Σ_i afin de voir à quelles énergies ces derniers ont une probabilité non nulle d'intervenir.

Un état électronique $|\psi\rangle$ dans un métal peut être considéré comme une superposition d'états purs $|\varphi_i\rangle$:

$$|\psi\rangle = \sum c_i |\varphi_i\rangle$$

Les coefficients c_i pondèrent le poids de chaque état pur : s , p_x , p_y , etc., encore appelés « charge partielle ».

Il est possible via notre code de calcul Wien2k d'identifier le poids de chaque état pur sur la structure de bandes. La figure 4.18 montre les résultats de calculs pour du Co hcp réduit à la direction de haute symétrie Σ . Nous nous sommes par ailleurs limités à l'analyse des états purs s , d_{z^2} , d_{xz} , d_{yz} et p_z , ces états étant *a priori* les moins atténués dans une barrière de $\text{MgO}(001)$ épaisse (cf. symétries Δ_1 et Δ_5).

Ces calculs ne renseignent en aucun cas sur la densité d'états des états purs ou tout du moins le rapprochement est indirect et sujet à précaution. Ce que l'on peut raisonnablement déduire de ces calculs est :

- états d_{z^2} , d_{xy} et p_z : au niveau de Fermi, une polarisation 100 % négative est attendue. Ces états ne sont présents que dans les spins minoritaires à cette énergie,
- états s : ils sont présents dans les deux populations de spins au niveau de Fermi. Cependant, leur poids est plus important pour les spins majoritaires. De plus, en énergie positive, le poids diminue dans les spins majoritaires et augmente dans les spins minoritaires. En première approximation, la pente de la bande considérée est identique, aussi le nombre d'états disponibles sera-t-il équivalent. Et à nombre d'états égal, la probabilité d'occuper les états disponibles décroît en énergie pour les spins majoritaires et augmente pour les spins minoritaires. Par conséquent, à partir de cette analyse, on peut en déduire que la polarisation s du Co hcp est positive au niveau de Fermi et diminue en énergie positive,
- états p_z : de la même manière, la densité d'états minoritaires p_z va augmenter en énergie positive puisque le poids de ces états augmente.

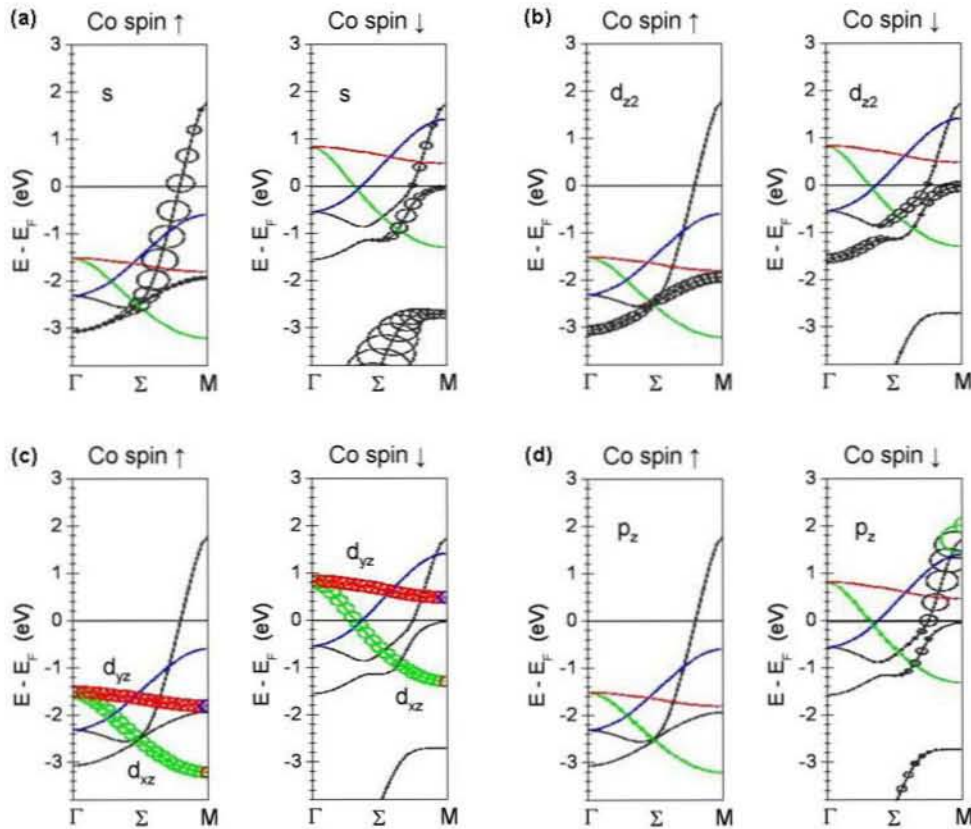


Figure 4.18 : Structure de bandes du Co hcp dans la direction Σ discrétisée en caractère orbital : (a) orbitale s, (b) orbitale d_{z^2} , (c) orbitales d_{yz} et d_{xz} et (d) orbitale p_z . La taille des cercles permet de rendre compte de la charge partielle de chaque état pur en énergie.

4. 3. 4. 1. Discussion 1 : système Fe / MgO / Co

Les états de symétrie Δ_1 du bcc Fe(001) sont polarisés positivement au niveau de Fermi. Ces états de symétrie sont les moins atténués dans la barrière de MgO(001).

La seule polarisation positive existante au niveau de Fermi dans le Co est celle des états s (fig. 4.18(a)), les autres états p_z et d_{z^2} de la représentation irréductible Δ_1 sont polarisés négativement (fig. 4.18(d) et (b)).

Le signe positif de la TMR à l'équilibre suggère donc qu'au niveau de Fermi, la contribution des états s au transport tunnel soit dominante. Cela explique également la conservation du signe positif de la TMR en tension négative lorsque les électrons sondent les états disponibles au-dessus du niveau de Fermi de l'électrode de Fe(001) puisque la polarisation des électrons appartenant à la symétrie Δ_1 ne change pas de signe.

En tension négative, lorsque les électrons sont injectés dans les états disponibles au-dessus du niveau de Fermi du Co, on observe une inversion de signe de la TMR. Les informations dont nous disposons pour le Co sont les suivantes :

- diminution de la polarisation s en tension,
- augmentation de la densité d'états minoritaires p_z en tension,
- absence d'états d_{z^2} au-dessus du niveau de Fermi.

En se référant uniquement à la dispersion des charges partielles des états purs, il est vain de conclure autre chose qu'une diminution de polarisation des états s . Il est impossible de juger d'une inversion éventuelle de polarisation s en tension. En revanche, l'effet combiné d'une diminution de polarisation s et d'une augmentation de densité d'états minoritaires p_z paraît être une piste à suivre pour expliquer l'inversion de TMR en tension positive.

4. 3. 4. 2. Discussion 2 : système Fe / Fe₃O₄ / MgO / Co

L'analyse de la réponse en tension de ces JTM se révèle plus ardue. Nous nous retrouvons face à deux injecteurs/analyseurs que nous ne connaissons que très peu d'un point de vue des mécanismes du transport tunnel. Au premier abord, la similarité des réponses en tension de nos deux échantillons prône l'application des mêmes mécanismes développés précédemment à savoir pour le Co : un transport dominé par la propagation des états s au niveau de Fermi puis en tension positive, l'effet conjoint des états s et p_z qui favorisent une inversion de TMR.

Pourtant, une connaissance théorique de la magnétite indique que ce matériau est purement d et 100 % polarisé négativement sous-entendu que les états d minoritaires sont *a priori* les seuls susceptibles de participer au transport et plus précisément, les états t_{2g} . Par conséquent, envisager les mécanismes de transport tunnel en ne se référant qu'aux propriétés intrinsèques des électrodes révèle une inconsistance ; les états d du Co sont polarisés négativement au niveau de Fermi et occasionneraient une TMR positive à l'équilibre.

Si l'analyse faite précédemment sur le système Fe/MgO/Co était transposable pour le Co au système Fe/Fe₃O₄/MgO/Co, on en arriverait à attendre une polarisation s négative de la magnétite.

4. 3. 4. 3. Discussion globale

Dans cette première approche et par un souci de compréhension des résultats expérimentaux, nous avons mis de côté le paramètre le plus pertinent à prendre en compte pour une connaissance éclairée des mécanismes de transport. Nous nous sommes alors heurtés à des incohérences *potentielles* pour le système avec magnétite.

Les mécanismes de transport sont gérés par le couplage entre les états métalliques des électrodes et les états évanescents de la barrière à l'interface. C'est d'ailleurs ce mécanisme qui est à la base de l'existence d'un filtrage en symétrie dans le MgO(001) dans le système Fe/MgO/Fe(001). Le paramètre pertinent à considérer est la *polarisation du courant tunnel* et non la polarisation intrinsèque des matériaux.

Un exemple saisissant est la mesure d'une polarisation positive du Co (*fcc*, *hcp* ou polycristallin) lorsque ce dernier est associé à une barrière d'alumine (Al₂O₃). Pourtant, les calculs de densité d'états du Co lui octroient une polarisation intrinsèque négative, son niveau de Fermi étant situé au-dessus de la bande d majoritaire et dans la bande d minoritaire. La polarisation positive du couple Co/Al₂O₃ rend compte de la polarisation des états majoritairement transmis c'est-à-dire des états du ferromagnétique fortement couplés aux états de l'isolant qui dans le cas Co/Al₂O₃ s'avèrent être les états s [117].

On ne peut donc du point de vue du transport tunnel, considérer chaque « brique » constituant une JTM comme des entités indépendantes ; au contraire, ces « briques » sont intimement liées par les interfaces et c'est ce couplage qui va gouverner les mécanismes de transport. S'en veulent pour illustration les travaux expérimentaux de J.M. de Teresa *et al.* [118] qui se sont servis du demi-métal $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ (LSMO), 100 % polarisé positivement, dans des jonctions LSMO/SrTiO₃(STO)/Co pour analyser le signe de la polarisation du Co lorsqu'il est couplé à une barrière de STO. La mesure d'une TMR négative (fig. 4.19(b)) dans ce système est interprétée en tant que polarisation négative du courant tunnel suite à l'association Co/STO.

Il apparaît donc que la polarisation à l'interface Co/STO soit de même signe que la polarisation intrinsèque négative du Co contrairement au couple Co/Al₂O₃. Or la polarisation intrinsèque du Co est attribuée à la forte polarisation négative des électrons d. Par conséquent, les auteurs attribuent le signe négatif de la TMR dans LSMO/STO/Co à la propagation dominante des électrons d à travers la structure, propagation possiblement favorisée par les liaisons chimiques créées à l'interface Co/STO. Par ailleurs, en s'intéressant à la variation de la TMR suivant la tension appliquée, on note une inversion de son signe qui intervient dans la gamme d'énergie où la polarisation d du Co s'inverse ($V > 0.8 \text{ V}$) (fig. 4.19(a)).

Pour confirmer ce résultat, les auteurs ont ajouté une fine barrière d'alumine entre le Co et le STO. Comme le montre l'encart de la figure 4.19(b), la TMR est désormais positive sur tout l'intervalle de tension sondé comme dans le système Co/Al₂O₃/LSMO. Cela confirme l'importance du couplage métal / isolant à l'interface dans l'interprétation du signe de la polarisation du courant tunnel puisque cette fois le signe positif de la TMR est dû au signe positif de la polarisation tunnel du couple Co/Al₂O₃ pour lequel le transport est dominé par les électrons s.

Dans notre étude, nous nous retrouvons exactement dans le même cas de figure. En reprenant la discussion du § 4.3.4.1 sur les mécanismes de transport relatif au système Fe/MgO/Co, notre connaissance du couple Fe/MgO polarisé positivement, nous permet de déduire la polarisation positive du courant tunnel issu du couple Co/MgO au niveau de Fermi ainsi que son changement de signe pour des énergies supérieures à E_F .

En conséquence, les résultats de transport obtenus sur le système avec magnétite s'en déduisent de la même manière. Ce qui est désormais établi est le signe de la polarisation du courant tunnel issu du couple Co/MgO. La valeur négative de la TMR au niveau de Fermi montre donc une polarisation négative du courant tunnel issu du couple Fe₃O₄/MgO et qui reste négative sur l'intervalle de tension sondée ; l'inversion de signe en

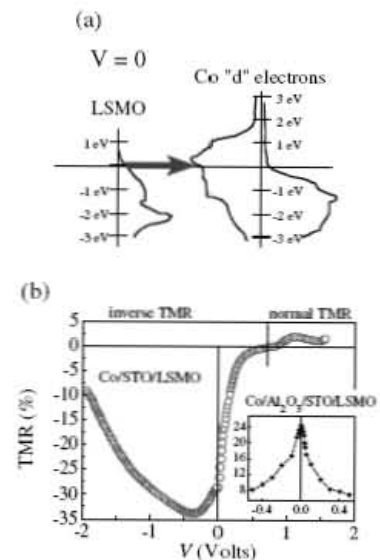


Figure 4.19 : (a) Densité d'états totale de LSMO et densité d'états partielle des états d du Co. (b) Variation de la TMR avec la tension appliquée dans le système LSMO/STO/Co à 5 K. Encart : variation de la TMR en fonction de la tension appliquée dans le système LSMO/STO/Al₂O₃/Co.

tension positive est également due au changement de signe de la polarisation du courant tunnel du couple Co/MgO pour des énergies supérieures à E_F .

La brique manquante à cette étude est la connaissance approfondie de l'origine de cette inversion de polarisation. Les seuls éléments dont nous disposons (voir § 4.3.4 et discussions) ne nous permettent pas de conclure de façon certaine. On note cependant une piste à suivre comme la diminution de la polarisation s concomitante à une augmentation de la densité d'états p_z polarisés négativement au-dessus du niveau de Fermi. Seuls des calculs de densité d'états résolus en $k_{//} = 0$ pourront permettre d'apporter de la lumière sur ce mécanisme. Il faut cependant être dans la possibilité de restreindre ces calculs à la direction Σ du Co *hcp*. En effet, les calculs préliminaires que nous avons effectués jusque là ne nous renseignent que sur la densité d'états totale du Co *hcp* intégrée sur tout l'espace des k . Pour le *bcc* Fe(001), les calculs de densité d'états sur l'espace des k montrent une forte sensibilité à la direction de haute symétrie Δ . En revanche, les résultats de calculs sur le Co *hcp* ne reflètent pas la structure de bandes en Σ .

4. 4. Conclusions et perspectives

L'intégration des films minces de magnétite dans des dispositifs tunnel n'a pas jusqu'à aujourd'hui porté ses fruits en terme d'effet magnétorésistif géant. Nous avons néanmoins montré qu'il est possible d'obtenir des films épitaxiés dans lesquels la densité d'APBs est réduite grâce au dépôt préalable d'un buffer magnétique. Les propriétés magnétiques sont améliorées en conséquence et nous avons montré que le champ de saturation est fortement diminué comparé à des films minces directement déposés sur substrat. Par ailleurs, les cycles magnétorésistifs témoignent d'un faible champ coercitif de la bicouche Fe/Fe₃O₄ ainsi que d'un large plateau d'opération (500 Oe à 80 K) où l'aimantation de la magnétite reste homogène.

Les résultats de magnéto-transport ont révélé une valeur de TMR record (- 22 % à 80 K) pour des JTMs alliant Fe₃O₄ et MgO. Cette valeur reste modeste malgré la haute qualité structurale de nos échantillons. Au-delà de l'amplitude de l'effet TMR, l'analyse des mécanismes de transport dans ce genre de système montre que l'association Fe₃O₄ / MgO entraîne l'apparition de fortes valeurs de résistance électrique de l'ordre du M Ω puisque les états propagatifs de la magnétite sont justement ceux qui ont une faible probabilité de transmission dans le MgO. Dans la géométrie de mesure utilisée, perpendiculaire au plan des couches, on peut négliger l'influence des APBs contenues dans le film mince de magnétite sur la résistance de jonction. Leur seul effet probable est une lente saturation de l'échantillon visible à fort champ mais qui dans notre cas est négligeable car noyé dans le signal magnétorésistif de la jonction tunnel en elle-même.

Par ailleurs, l'étude parallèle que nous avons menée sur le système Fe / MgO / Co où l'injecteur Fe/MgO est connu et où la couche de Co est semblable à celle utilisée dans les échantillons avec magnétite, nous a permis de déduire la polarisation du courant tunnel issu du couple Co/MgO dans la direction de haute symétrie Σ : positive à l'équilibre. Cette dernière devient négative en tension et induit un changement de signe de la TMR. Nous avons ainsi pu montrer que la polarisation du courant tunnel issu du couple Fe₃O₄/MgO est négative sur toute la plage de tension sondée.

Une étude est en cours actuellement afin de mieux comprendre les mécanismes de transport inhérent à la magnétite. Nous souhaitons mettre à profit l'expertise sur le système modèle Fe/MgO/Fe(001). Introduire des couches minces de Fe₃O₄ d'épaisseur variable à l'interface inférieure Fe/MgO(001), permettrait d'avoir une vision plus claire de l'impact de la magnétite sur les mécanismes de conduction bien connus du système modèle et ainsi d'en extraire les signatures spécifiques de la magnétite.

Suite au travail décrit dans ce chapitre, il reste à comprendre l'origine du changement de signe de la polarisation du Co. Une piste raisonnable à suivre qui apparaît dans les calculs de structures de bandes que nous avons effectués est l'effet conjoint de la réduction de polarisation des électrons s et l'augmentation de la densité d'états p_z . Aussi apparaît-il une perspective intéressante. En utilisant les connaissances que nous avons sur le filtrage en symétrie et surtout la façon dont nous pouvons le contrôler, un test expérimental peut nous aider à infirmer ou confirmer cette hypothèse.

Dans le chapitre deuxième, nous avons vu que le *bcc* Cr(001) est un métal qui agit comme une barrière de potentiel vis-à-vis des états de symétrie Δ_1 . En ajoutant une couche mince de Cr(001) à l'interface MgO/Co, il serait alors possible d'empêcher la propagation des états s , p_z et d_{z^2} appartenant à cette symétrie. En conséquence, si l'analyse des mécanismes de transport relatifs au Co s'avère exacte, il est à attendre que la polarisation du courant tunnel issu cette fois de la tricouche Co/Cr/MgO deviendrait négative au niveau de Fermi puisque seuls les états d_{xz} totalement polarisés négativement seraient potentiellement transmis (voir fig. 4.18(c)).

Comme on ne note aucune inversion de polarisation possible pour ces états en tension, ce nouveau système rendrait un signal de TMR positif sur toute la plage de tension sondée. Par ailleurs, l'ajout de Cr(001) aurait pour effet supplémentaire de rendre artificiellement le Co demi-métallique vis-à-vis des états d_{xz} . Ces états étant également ceux qui peuvent se propager dans la magnétite, une augmentation de l'effet magnétorésistif est même à envisager. En revanche, une contrepartie contraignante serait une augmentation de la résistance de jonction déjà très élevée à la base suite à l'ajout de Cr(001) qui pourrait rendre les mesures difficiles à effectuer.

Epilogue

L'amélioration des techniques de croissance ces dernières décennies fût annonciatrice d'un renouveau dans les modèles théoriques dédiés à la formalisation des mécanismes de transport dans les jonctions tunnel magnétiques. Jusque là bornés au cadre des électrons libres, les modèles théoriques se sont émancipés pour donner naissance à des notions beaucoup plus complexes faisant suite à la prise en compte d'une structure cristalline parfaitement ordonnée. Le système Fe/MgO/Fe(001) fût le premier à être totalement théorisé principalement pour deux raisons. D'une part, la similitude entre les paramètres de maille du Fe et du MgO permet la conservation de la symétrie à travers l'empilement et, par extension, la conservation de k_{\parallel} . D'autre part, la structure de bandes calculée du Fe(001) révèle le potentiel de ce dernier à donner des valeurs de polarisation très élevée. Apparaît alors la notion de filtrage en symétrie dans les électrodes ferromagnétiques.

Les mécanismes de transport tunnel dépendent fortement du couplage entre les états métalliques des électrodes et les états évanescents de la barrière : les états de symétrie Δ_1 qui n'existent que dans les spins majoritaires au niveau de Fermi dans le Fe(001) sont justement ceux qui sont le moins atténués dans la barrière, ce qui justifie doublement l'utilisation du MgO. Le filtrage en symétrie est tout puissant puisqu'il permet de créer artificiellement un demi-métal. En conséquence, l'effet TMR résultant devrait être géant.

Pour autant, même si expérimentalement les valeurs de TMR sont élevées (180 % à température ambiante), rien ne montre de manière tranchée la validité du modèle théorique : le filtrage en symétrie n'a jamais souffert d'autre justification que son potentiel à éclairer les résultats expérimentaux. Un des objectifs phares de cette thèse a été de démontrer expérimentalement et sans ambiguïté la validité du filtrage en symétrie dans les électrodes de Fe(001). Mais, dans ce but, il faut être en possession de jonctions tunnel de très haute qualité justifiant l'utilisation des modèles théoriques.

Les mesures de bruit basse fréquence sont un moyen de sonder en profondeur la qualité des jonctions tunnel réalisés. Un premier indice de la qualité des jonctions réalisées réside dans le niveau remarquablement faible du bruit en $1/f$ mesuré. Nous avons vu, par ailleurs, que les mesures de shot noise ont mis en évidence un mode de transport tunnel direct, balistique et cohérent qui met l'accent sur la haute qualité structurale de la barrière : le transport ne se fait pas via des défauts dans la barrière. Parallèlement à cela, l'étude du bruit en fonction de l'état magnétique de la jonction a montré la présence de fluctuations magnétiques dans le système entraînant un excès de la valeur du bruit en $1/f$ dans la configuration antiparallèle. Ces fluctuations magnétiques peuvent être le fruit de la nature même de la couche dure utilisée dans les jonctions. La structure magnétique de la bicouche Fe/Co peut être le siège de phénomènes complexes suite au décalage entre les axes de facile aimantation respectifs des deux couches. Pour confirmer cette hypothèse, il est nécessaire d'utiliser une autre couche dure pour nos échantillons. Il est envisagé d'utiliser l'antiferromagnétique IrMn et d'en mesurer l'impact sur les fluctuations magnétiques. Cela pourrait, par ailleurs, permettre d'apporter la lumière sur l'origine exacte du bruit télégraphique intermittent que nous avons observé en configuration antiparallèle. Si le bruit intermittent disparaît, cela signifierait qu'il était le fait de la couche dure en elle-même.

Une étude plus approfondie du bruit en $1/f$ pour des jonctions à l'interface inférieure dopée-carbone ayant une réponse en tension spécifique a permis de mettre en évidence une corrélation étroite entre les canaux de conductance et la valeur de α . Lorsque la conductance est dominée par un seul fort canal de conduction en $k_{//} = 0$, les valeurs de α sont extrêmement faibles. En revanche si la conductance résulte de multiples canaux de conceptions faibles, un excès dans les valeurs de α est observé. Ceci se comprend très bien en prenant en compte le lien étroit entre fluctuations d'aimantation et fluctuations de résistance qu'il existe dans les systèmes magnéto-résistifs. Plus le canal de conduction sera fort, moins les fluctuations magnétiques vont se faire ressentir. On a vu, par exemple, que le bruit en $1/f$ pouvait être fortement réduit en configuration AP si le canal de conduction d'interface est ouvert alors que les fluctuations magnétiques dans le système sont les mêmes.

Les jonctions tunnel réalisées permettent de se rapprocher au plus près des considérations théoriques et ainsi d'en tester la validité. Grâce à l'insertion de films minces de Cr(001) dans ces systèmes idéaux, il a alors été possible de démontrer l'existence du filtrage en symétrie suite à l'apparition d'états de puits quantiques pour une seule symétrie électronique (Δ_1) dans le système Fe/Cr/Fe/MgO/Fe. Ce résultat phare confirme, par ailleurs, l'existence d'un mode de transport tunnel balistique et cohérent. Une perspective intéressante à ce travail est de remplacer le film de Cr(001) par un autre matériau dont la structure magnétique est moins complexe. Le Cr(001) possède une structure antiferromagnétique couche par couche qui peut influencer sur les mécanismes de transport. Cela n'a pas été le cas dans l'étude que nous avons menée mais il est préférable de s'affranchir de toute source parasite. En cela, le vanadium V(001) apparaît être un très bon candidat dans le sens où ce matériau est (i) cubique centré, (ii) non magnétique et (iii) a un paramètre de maille compatible avec une bonne épitaxie ($a_v = 0.303$ nm). Par ailleurs, du point de vue de la structure électronique, les calculs montrent que le V(001) agirait comme une barrière de potentiel pour les états de symétrie Δ_1 , ces derniers n'apparaissant pas avant 2.4 eV au-dessus du niveau de Fermi dans la structure de bandes, à l'instar du Cr(001). De plus, il se trouve que le V(001) est également dénué d'états de symétrie Δ_5 et Δ_2 au niveau de Fermi (bas de bandes situés à 0.4 eV). On s'attend donc à la création d'états de puits quantiques « multiples » provenant du confinement des états Δ_1 , Δ_5 et possiblement Δ_2 dans la couche intermédiaire de Fe(001). Des tests préliminaires effectués sur un empilement Fe (20 nm) / V (0.8 nm) / Fe (1 nm) / MgO (3 nm) / Fe (10 nm) semblent révéler la présence d'épaulements dans la conductance dynamique parallèle. Une étude plus affinée est en cours.

La validation des concepts théoriques autorise l'étude de l'injection de spin dépendant des symétries dans des matériaux plus complexes, comme des films minces de magnétite. Ces derniers ont fait l'objet d'une étude structurale approfondie qui ont mis en évidence la réduction de la densité de parois d'antiphase suite à l'utilisation d'une couche tampon de Fe(001) ainsi que l'absence de la transition de Verwey dans l'intervalle de température sondé. Les résultats de magnéto-transport, même s'ils ont montré des valeurs de TMR record, restent difficiles à interpréter avec les calculs théoriques que nous possédons. Cependant, une étude parallèle sur un système similaire utilisant l'injecteur Fe/MgO, désormais bien connu, a permis de poser les premières hypothèses sur les mécanismes de

transport inhérents aux structures étudiées. Dans la suite, une étude détaillée est programmée où, cette fois, partant du système Fe/MgO/Fe(001), des films minces d'épaisseur variable et augmentant vont être insérés à l'interface inférieure Fe/MgO. Il sera alors possible de suivre pas à pas l'impact de la structure électronique de la magnétite en regardant la déviation des caractéristiques tunnel par rapport au système standard.

La forte sensibilité des mécanismes de transport aux symétries électroniques offre un vaste plateau de jeux où l'ouverture et la fermeture de canaux spécifiques de conduction sont envisageables par l'insertion de pions supplémentaires dûment choisis suivant l'enjeu de la partie. Le système standard Fe/MgO/Fe(001) restera un système modèle permettant d'utiliser l'injection de spin dépendant des symétries comme sonde de la structure électronique d'autres matériaux.

Annexe – De l'élaboration des jonctions Fe / MgO / Fe (001)

A. 1. Elaboration des multicouches

Au Laboratoire de Physique des Matériaux, les échantillons ont été élaborés dans un bâti d'épitaxie par jets moléculaire (MBE) dessiné par Marc Alnot et Gérard Marchal et réalisé par Méca 2000. Cette technique d'élaboration repose sur l'évaporation de métaux sous ultravide. Le bâti est pourvu de deux types de sources d'évaporation différentes : canons à électrons et cellules de Knudsen. Pour les matériaux qui s'évaporent par le concours des canons à électrons, leur flux de dépôt est contrôlé *in situ* par des microbalances à quartz. Pour les matériaux évaporés via les cellules de Knudsen, l'étalonnage des flux en fonction du courant a été effectué *ex situ* soit par diffraction de RX aux petits angles, soit par Magnétométrie à Echantillon Vibrant (VSM en anglais) pour les couches magnétiques.

Le choix du type de source est fonction du matériau à évaporer et de ses caractéristiques : température d'évaporation, réactivité avec le creuset. Les flux d'atomes issus des différentes sources sont orientés sur un substrat porté à la température de croissance optimale afin de stabiliser le cristal désiré.

Cette technique d'élaboration présente de nombreux avantages. L'enceinte étant maintenue sous ultravide ($10^{-9} - 10^{-10}$ mbar) grâce à un système de pompage efficace, la contamination des matériaux lors du dépôt est fortement limitée. De plus, la présence de panneaux cryogéniques qui doublent l'intérieur du bâti et refroidis à 77 K, permet aux gaz résiduels de se condenser à la surface de l'enceinte. La vitesse de dépôt est de seulement quelques angströms par minute ce qui autorise l'élaboration de monocristaux. Il est en outre possible d'avoir un bon contrôle en épaisseur des matériaux déposés grâce au concours de caches pneumatiques. Le fait que l'enceinte se trouve sous ultravide permet l'utilisation de techniques de caractérisation *in situ* faisant intervenir un transport d'électrons (imagerie et oscillations RHEED). Enfin, l'enceinte est reliée à un spectromètre de masse permettant d'avoir une connaissance précise des espèces chimiques en présence (fig. A.1).

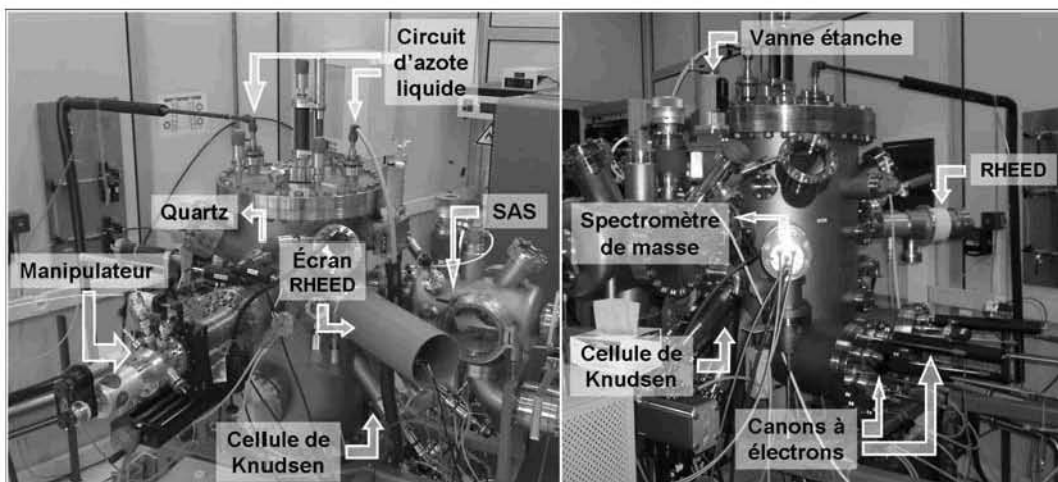


Figure A.1 : Photographies avant et arrière de la chambre d'épitaxie par jets moléculaires avec l'emplacement des différents éléments (cellules de Knudsen, canons à électrons, etc.)

La croissance des multicouches Fe/MgO/Fe(001) s'effectue sur des substrats monocristallins de MgO(001). Ces derniers ne subissent aucun nettoyage avant l'introduction dans le bâti. Preuve a été faite que tout autre nettoyage préliminaire fragilise les substrats [14]. Ils ne sont donc soumis qu'à un flash thermique de 600°C pendant 30 minutes afin d'éliminer la plus grande partie des gaz adsorbés en surface. Pour piéger les contaminants résiduels que le traitement thermique n'aurait pas suffi à éliminer, une couche protectrice de MgO(001) de 10 nm est déposée à 450°C directement sur le substrat [45] par le concours d'un canon à électrons.

Une fois l'échantillon refroidi ($\sim 100^\circ\text{C}$), le dépôt de l'électrode inférieure de Fe d'une épaisseur de 45 nm s'effectue via une cellule de Knudsen maintenue à 1280°C et munie d'un cache automatique. La vitesse de dépôt est constante et d'environ 0.01 nm/s. Dans le but d'homogénéiser le dépôt, l'échantillon tourne continuellement sur lui-même grâce à un moteur situé sur le manipulateur.

Les clichés RHEED pris à la fin du dépôt sont pointés et témoignent d'une forte rugosité de surface (fig. A.2(a)). Il est donc nécessaire d'effectuer un traitement thermique de la couche afin de donner aux atomes une énergie suffisante pour se réarranger. Un recuit à 450°C pendant 25 minutes permet non seulement d'améliorer la cristallinité de la couche mais également d'en aplanir considérablement la surface. En effet, à la fin du recuit, les clichés RHEED ne sont plus pointés mais forment des bâtonnets (fig. A.2(b)). Les clichés permettent par ailleurs de vérifier que la relation d'épitaxie est bien celle attendue : MgO(001)[100] || Fe(001)[110]. De plus, une étude antérieure a montré qu'une telle surface de Fe offre de larges terrasses de l'ordre de 100 nm de large et les rugosités pic à pic et RMS de la couche ne dépassent pas 0.5 nm et 0.06 nm, respectivement [14].

La surface de Fe(001) possède donc les qualités requises à l'élaboration d'une interface Fe/MgO et d'une barrière tunnel de haute qualité. Le dépôt de la barrière est une des étapes primordiales à la réalisation des jonctions tunnel et nécessite un contrôle précis de l'épaisseur déposée afin d'avoir les propriétés tunnel souhaitées. Dans notre cas, la barrière est déposée lorsque la température de l'échantillon avoisine les 100°C. La croissance de la couche de MgO se fait à l'aide d'un canon à électrons et le contrôle du flux via une microbalance à quartz. Une fois le flux stabilisé, on procède à l'ouverture du cache pneumatique et la croissance de la couche est suivie en temps réel par oscillations d'intensité de RHEED selon la raie [00] des clichés RHEED du Fe(001) (fig. A.2(c)). Chaque oscillation correspond au dépôt d'une monocouche atomique. Elles nous permettent de vérifier la croissance couche par couche de la barrière tunnel. Généralement, la croissance n'est plus « surveillée » par RHEED au-delà de 10 ML déposées puisque l'expérience a montré que l'accumulation de charges électriques dans l'isolant suite à l'utilisation d'un faisceau d'électrons peut entraîner une détérioration locale de l'échantillon lors de la décharge [14]. Pour la réalisation de barrières plus épaisses, on se fie donc à la microbalance à quartz qui nous permet de surveiller la stabilité du flux d'évaporation. Comme le montre la figure A.2(c), la vitesse de dépôt est effectivement constante et maintenue à 0.02 nm/s ce qui est un gage de la précision de l'épaisseur déposée.

Les clichés RHEED pris à la fin du dépôt d'une barrière de 3 nm d'épaisseur (~ 14 ML) forment toujours des bâtonnets (fig. A.2(d)), preuve d'une bonne qualité de la surface de MgO. On remarquera au passage la bonne relation d'épitaxie des couches. On note

cependant une rugosité naissante, les bâtonnets étant moins bien définis que sur l'électrode de Fe recuite (fig. A.2(b)). Plus la barrière est épaisse, plus la rugosité augmente ; précédemment, la rugosité RMS d'une barrière de MgO de 2 nm d'épaisseur déposé sur Fe recuit a été évaluée à 0.1 nm par microscopie en champ proche [14]. Il est donc évident que l'interface supérieure MgO/Fe sera de moins bonne qualité que l'interface inférieure Fe/MgO pour des jonctions à fortes épaisseurs de barrière. Par ailleurs, les études en microscopie électronique à transmission ont démontré la continuité de la barrière même pour des épaisseurs de l'ordre de 0.5 nm. Pour de plus fortes épaisseurs en revanche, on note l'apparition de dislocations dans la barrière, produit de la relaxation plastique des contraintes induites par le désaccord paramétrique existant entre les mailles de Fe et de MgO.

La croissance de la seconde électrode de 10 nm de Fe suit la même logique que celle utilisée pour l'électrode inférieure à la différence près que le recuit de la couche est initié dès 5 nm de Fe déposés. Cette technique s'est avérée efficace à améliorer la cristallinité de la couche en donnant une énergie suffisante aux atomes pour que ces derniers deviennent plus mobiles et se réarrangent entre eux. Aussi, la température du substrat est-elle graduellement augmentée jusqu'à atteindre 250°C en fin de dépôt. La température est ensuite augmentée jusqu'à 380°C et laissée ainsi pendant 10 minutes pour améliorer encore la cristallinité de la couche qui se révèle essentielle à l'obtention de valeur de TMR de l'ordre de 180%. Les clichés RHEED montrent par ailleurs l'amélioration de la qualité de la surface après recuit (figs. A.2(e) et A.2(f)). Les mesures de transport se sont révélées particulièrement éloquentes puisque, suite à l'utilisation de cette technique d'élaboration pour l'électrode supérieure, les valeurs de TMR ont été considérablement augmentées passant de 100% à l'époque où aucun recuit n'était effectué [14] à 180% aujourd'hui.

Maintenant que les couches actives pour le transport tunnel sont réalisées, les dernières étapes d'élaboration consistent à déposer la couche de Co qui sert à durcir magnétiquement l'électrode supérieure puis la couche protectrice afin de prévenir l'oxydation des couches actives lors de la sortie à l'air de l'échantillon.

Le dépôt de la couche de 20 nm de Co s'effectue également à 100°C via un canon à électrons muni d'un cache pneumatique. Le flux est également contrôlé par une microbalance à quartz et la vitesse d'évaporation est de l'ordre de 0.05 nm/s. Le Co relaxe dans une structure hexagonale compacte et, comme cela a été détaillé dans la thèse de J. Faure-Vincent, les relations d'épitaxie du Co sur le Fe sont les suivantes : $Fe(001)[110] \parallel Co^1(11-20)[0001]$ et $Fe(001)[110] \parallel Co^2(11-20)[1-100]$, Co^1 et Co^2 faisant référence aux deux variants obtenus du Co *hcp* [14].

Concernant la couche protectrice, il est d'usage d'utiliser une bicouche de Pd / Au pour les échantillons destinés à être structurés en jonctions tunnel. Le dépôt de la couche de Pd s'effectue via une cellule de Knudsen équipée d'un cache et maintenue à 1280°C prodiguant une vitesse de dépôt de l'ordre de 0.004 nm/s. L'évaporation de la couche d'au se fait par canon à électrons dont le suivi par microbalance à quartz indique une vitesse de dépôt de l'ordre de 0.016 nm/s.

Si les multicouches sont destinées à un autre usage, on peut indifféremment utiliser des simples couches de Pd, Au, V ou encore MgO.

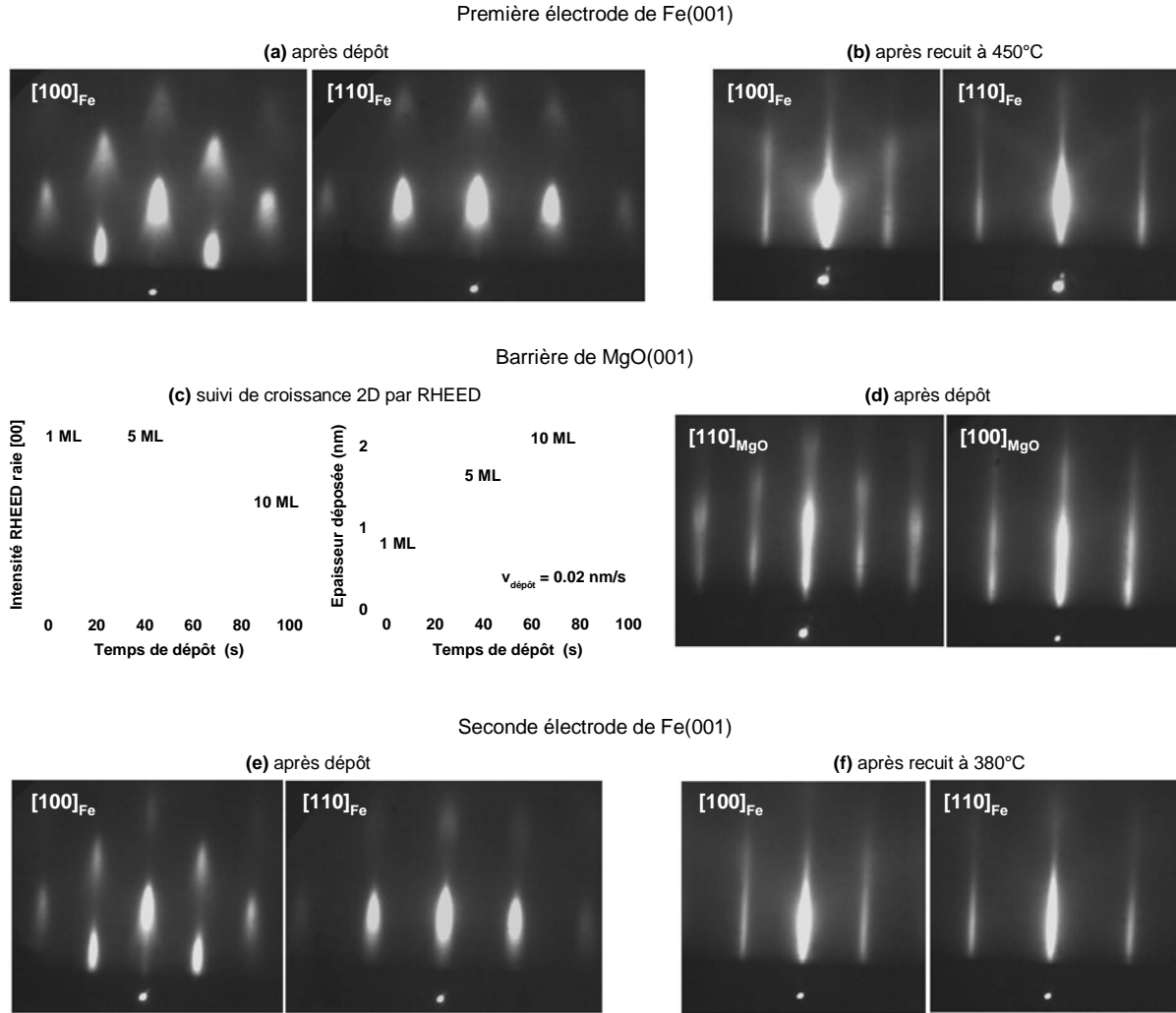


Figure A.2 : Suivi *in situ* par RHEED de la croissance et qualité des couches actives pour le transport tunnel d'une multicouche Fe/MgO/Fe(001). (a) et (b) clichés RHEED de l'électrode inférieure de Fe(001) avant et après recuit à 450°C. (c) oscillations d'intensité de RHEED suivant la raie [00] du Fe(001) pour les 10 premières monocouches de MgO (à gauche) et épaisseur de MgO déposée en fonction du temps de dépôt des mêmes 10 premières monocouches (à droite). (d) clichés RHEED pris à la fin du dépôt d'une barrière de MgO de 3 nm. (e) et (f) clichés RHEED de l'électrode supérieure de Fe(001) en fin de dépôt et après recuit à 380°C.

A. 2. Structuration des multicouches

Pour transformer ces couches continues en jonctions tunnel, plusieurs étapes standards de lithographie UV et de gravure ionique sèche à l'argon sont utilisées. Le procédé de lithographie développé au laboratoire initialement par François Montaigne et, par la suite, minutieusement peaufiné par Gwladys Lengaigne permet la réalisation de jonctions carrées de taille latérale comprise entre 10 μm et 200 μm . Ce procédé doit remplir deux fonctions : les prises de contact dans les électrodes inférieure et supérieure et l'isolation entre ces deux contacts. Une description détaillée de toutes ces étapes est disponible dans la thèse de F. Montaigne [121]. Pour nos besoins, on se limite à des jonctions carrées de tailles latérales de 10, 20, 30 et 40 μm .

Définition de la jonction (fig. A.3)

L'échantillon est tout d'abord nettoyé avec des solvants puis séché à l'azote. Ensuite, la surface est enduite d'une couche de résine photosensible que l'on répartit le plus uniformément possible à l'aide d'une tournette. On recuit cette résine afin d'en enlever les solvants. Les futurs motifs des JTMs sont définis par un masque réalisé avant l'étape technologique. L'ensemble échantillon-résine est mis au contact du masque et est soumis à un rayonnement UV modifiant ainsi les propriétés chimiques de la résine. La résine utilisée est dite positive c'est-à-dire qu'à la suite de l'interaction avec la lumière, les zones de l'échantillon non protégées par les motifs du masque deviennent plus solubles et un bain dans un produit développeur les dissout.

Ensuite, la surface de l'échantillon est bombardée par un faisceau d'ions argon. Tout l'échantillon est alors gravé mais les zones protégées par la résine restent intactes. Cette étape est critique car pour nos systèmes, la gravure doit s'arrêter dans la barrière de MgO afin d'éviter tout problème d'oxydation de l'électrode inférieure de Fe sous peine de court-circuiter les JTMs [14]. Ceci est rendu possible par suivi de la gravure en spectroscopie Auger. Cette technique permet de connaître les espèces chimiques en surface et donc de savoir quand arrêter la gravure. On stoppe le processus une fois qu'on atteint la barrière tunnel de MgO. Après la gravure, l'échantillon est plongé dans un bain de solvant pour éliminer la résine restante puis séché à l'azote.

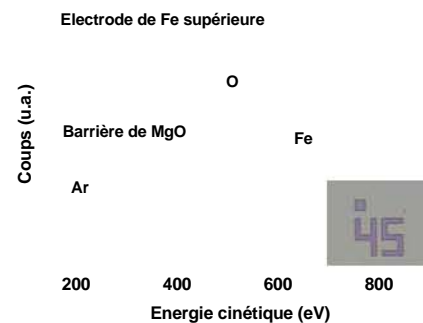
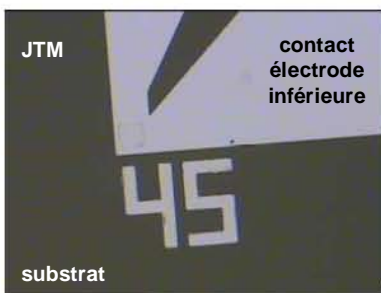


Figure A.3 : Suivi par spectroscopie Auger de la première étape de gravure ionique. En encart : image prise au microscope optique après l'étape de gravure. Les motifs de jonctions sont définis. Voir texte pour détails.

Formation de l'électrode inférieure



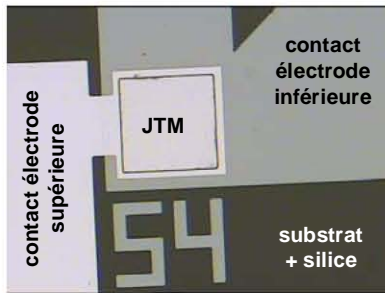
Par une deuxième étape de lithographie UV standard utilisant un autre masque, l'électrode inférieure est définie. Intervient ensuite une autre étape de gravure ionique à l'argon mais moins critique que la précédente puisqu'il s'agit cette fois de graver jusqu'au substrat de MgO. Après la gravure, l'échantillon est de nouveau plongé dans un bain de solvant pour éliminer la résine puis séché à l'azote. L'image ci-contre a été prise au microscope optique après la réalisation de cette étape.

Isolation des électrodes et JTMs et métallisation

Une troisième étape de lithographie UV standard permet de définir les zones de prise de contact sur l'électrode supérieure et inférieure. Après avoir protégé les zones des futurs contacts métalliques sur les électrodes inférieure et supérieure par les motifs de résine dans l'étape de lithographie, une couche de 150 nm de silice est déposée par pulvérisation

cathodique. Cette couche a pour but d'isoler les électrodes supérieure et inférieure, et les jonctions les unes des autres afin de parer à de futurs court-circuits.

Il s'agit ensuite d'ouvrir l'isolant au-dessus des jonctions et des électrodes inférieures. Pour ce faire, on opère un lift-off dans un bain d'acétone : la résine dissolue ouvre ainsi des zones dans l'isolant. Le dépôt d'isolant subsiste uniquement dans les zones non protégées par la résine. Après quoi l'échantillon est rincé et séché à l'azote.



Suite à une ultime étape de lithographie UV standard, une couche de 150 nm d'aluminium est déposée par pulvérisation cathodique. Cette dernière permet de déporter le contact sur le haut de la jonction tunnel et d'assurer un bon contact sur l'électrode inférieure. Un lift-off dans un bain d'acétone permet de s'affranchir de la couche d'aluminium dans les zones protégées par la résine dans l'étape de lithographie.

L'image ci-contre montre le résultat final du procédé de structuration des jonctions tunnel. Après un dernier rinçage et séchage, les échantillons sont prêts à être mesurés.

Bibliographie

- [1] M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff
Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices
Physical Review Letters 61, 2472 (1988)
- [2] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, W. Zinn
Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange
Physical Review B 39, 4828(R) (1989)
- [3] M. Jullière
Tunneling between ferromagnetic films
Physics Letters 54A, 225 (1975)
- [4] J.S. Moodera, L.R. Kinder, T.M. Wong, R. Meservey
Large magnetoresistance at room temperature in ferromagnetic thin film tunnel junctions
Physical Review Letters 74, 3273 (1995)
- [5] D. Wang, C. Nordman, J.M. Daughton, Z. Qian, J. Fink
70 % TMR at room temperature for SDT sandwich junctions with CoFeB as free and reference layers
IEEE Transactions on Magnetics 40, 2269 (2004)
- [6] J.M. MacLaren, X.G. Zhang, W.H. Butler, X. Wang
Layer KKR approach to Bloch-wave transmission and reflection: application to spin-dependent tunneling
Physical Review B 59, 5470 (1999)
- [7] W.H. Butler, X.G. Zhang, T.C. Schulthess
Spin-dependent tunnelling conductance of Fe|MgO|Fe sandwiches
Physical Review B 63, 054416 (2001)
- [8] J. Mathon, A. Umerski
Theory of tunnelling magnetoresistance of an epitaxial Fe/MgO/Fe(001) junction
Physical Review B 63, 220403(R) (2001)
- [9] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki, K. Ando
Giant room-temperature magnetoresistance in single-crystal Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions
Nature Materials, advanced online publication, 1 (2004)
- [10] S.S.P. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P.M. Rice, B. Hughes, M. Samant, S.H. Yang
Giant tunnelling magnetoresistance at room-temperature with MgO tunnel barriers
Nature Materials 3, 862 (2004)
- [11] C. Tiusan, F. Greullet, M. Hehn, F. Montaigne, S. Andrieu, A. Schuhl
Spin tunnelling phenomena in single-crystal magnetic tunnel junction systems
Journal of Physics: Condensed Matter 19, 165201 (2007)
- [12] M. Bowen, M. Bibes, A. Barthélémy, J.P. Contour, A. Anane, Y. Lemaître
Nearly total spin polarization in $La_{2/3}Sr_{1/3}MnO_3$ from tunnelling experiments
Applied Physics Letters 82, 233 (2003)
- [13] S. Ikeda, J. Hayakawa, Y. Ashizawa, Y.M. Lee, K. Miura, H. Hasegawa, M. Tsunoda, F. Matsukura, H. Ohno
Tunnel magnetoresistance of 604% at 300 K by suppression of Ta diffusion in CoFeB/MgO/CoFeB pseudo-spin-valves annealed at high temperature
Applied Physics Letters 93, 082508 (2008)

- [14] J. Faure-Vincent
Transport tunnel polarise en spin dans le système épitaxié Fe/MgO/Fe : interactions magnétiques et symétries électroniques
Thèse de l'université Henri Poincaré, Nancy 1 (2004)
- [15] J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, A. Schuhl
Interlayer magnetic coupling interactions of two ferromagnetic layers by spin polarized tunneling
Physical Review Letters 89, 107206 (2002)
- [16] J.C. Slonczweski
Conductance and exchange coupling of two ferromagnets separated by a tunnelling barrier
Physical Review B 39, 6995 (1989)
- [17] M. Sicot
Des interfaces réelles métal/MgO(001) au transport dans les jonctions tunnel épitaxiées
Thèse de l'université Henri Poincaré, Nancy 1 (2005)
- [18] R.C. Whited, C.J. Flaten, W.C. Walker
Exciton thermoreflectance of MgO and CaO
Solid State Communications 13, 1903 (1973)
- [19] U. Schönberger, F. Aryasetiawan
Bulk and surface electronic structures of MgO
Physical Review B 52, 8788 (1995)
- [20] C. Li, A.J. Freeman
Giant monolayer magnetization of Fe on MgO: a nearly ideal two-dimensional system
Physical Review B 43, 780 (1991)
- [21] A.M. Turner, J.L. Erskine
Surface electronic properties of Fe(100)
Physical Review B 30, 6675 (1984)
- [22] J. Callaway, C.S. Wang
Energy bands in ferromagnetic iron
Physical Review B 16, 2095 (1977)
- [23] M. Klaua, D. Ullmann, J. Barthel, W. Wulfhekel, J. Kirschner, R. Urban, T.L. Monchesky, A. Enders, J.F. Cochran, B. Heinrich
Growth, structure, electronic, and magnetic properties of MgO/Fe(001) bilayers and Fe/MgO/Fe(001) trilayers
Physical Review B 64, 134411 (2001)
- [24] W.H. Butler, X.G. Zhang, T.C. Schulthess, J.M. MacLaren
Reduction of electron tunnelling current due to lateral variation of the wave function
Physical Review B 63, 062402 (2001)
- [25] P.H. Dederichs, Ph. Mavropoulos, O. Wunnicke, N. Papanikolaou, V. Bellini, R. Zeller, V. Drchal, J. Kudrnovsky
Importance of complex band structure and resonant states for tunneling
Journal of Magnetism and Magnetic Materials 240, 108 (2002)
- [26] J.P. Velev, K.D. Belashchenko, D.A. Stewart, M. van Schilgaarde, S.S. Jaswal, E.Y. Tsybal
Negative spin polarization and large tunnelling magnetoresistance in epitaxial Co|SrTiO₃|Co magnetic tunnel junctions
Physical Review Letters 95, 216601 (2005)
- [27] M. Bowen, A. Barthélémy, V. Bellini, M. Bibes, P. Seneor, E. Jacquet, J.P. Contour, P.H. Dederichs
Observation of Fowler-Nordheim hole tunnelling across an electron tunnel junction due to total symmetry filtering
Physical Review B 73, 140408(R) (2006)

- [28] J.A. Stroscio, D.T. Pierce, A. Davies, R.J. Celotta, M. Weinert
Tunneling spectroscopy of bcc (001) surfaces states
Physical Review Letters 75, 2960 (1995)
- [29] C. Uiberacker, P.M. Levy
Role of symmetry on interface states in magnetic tunnel junctions
Physical Review B 64, 193404 (2001)
- [30] K.D. Belashchenko, J. Velez, E.Y. Tsymbal
Effect of interface states on spin-dependent tunnelling in Fe/MgO/Fe tunnel junctions
Physical Review B 72, 140404 (2005)
- [31] S. Yuasa, A. Fukushima, T. Nagahama, K. Ando, Y. Suzuki
High tunnel magnetoresistance at room temperature in fully epitaxial Fe/MgO/Fe tunnel junctions due to coherent spin-polarized tunneling
Japanese Journal of Applied Physics 43, L588 (2004)
- [32] J. Faure-Vincent, C. Tiusan, E. Jouguelet, F. Canet, M. Sajjeddine, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, A. Schuhl
High tunnel magnetoresistance in epitaxial Fe/MgO/Fe tunnel junctions
Applied Physics Letters 82, 4507 (2003)
- [33] S. Yuasa, T. Katayama, T. Nagahama, A. Fukushima, H. Kubota, Y. Suzuki, K. Ando
Giant tunnelling magnetoresistance in fully epitaxial body-centered-cubic Co/MgO/Fe magnetic tunnel junctions
Applied Physics Letters 8, 222508 (2005)
- [34] X.G. Zhang, W.H. Butler
Large magnetoresistance in bcc Co/MgO/Co and FeCo/MgO/FeCo tunnel junctions
Physical Review B 70, 172407 (2004)
- [35] P. LeClair, J.T. Kohlhepp, H.J.M. Swagten, W.J.M. de Jonge
Interfacial density of states in magnetic tunnel junctions
Physical Review Letters 86, 1066 (2001)
- [36] T. Nagahama, S. Yuasa, E. Tamura, Y. Suzuki
Spin-dependent tunnelling in magnetic tunnel junctions with a layered antiferromagnetic Cr(001) spacer: Role of band structure and interface scattering
Physical Review Letters 95, 086602 (2005)
- [37] A. Davies, J.A. Stroscio, D.T. Pierce, R.J. Celotta
Atomic-scale observations of alloying at the Cr-Fe(001) interface
Physical Review Letters 76, 4175 (1996)
- [38] B. Heinrich, J.F. Cochran, D. Venus, K. Totland, D. Atlan, S. Govorkov, K. Myrtle
Interface alloying at Fe/Cr interfaces and its role in exchange coupling, angular resolved Auger electron, magneto-optic Kerr effect, and Brillouin light scattering studies (invited)
Journal of Applied Physics 79, 4518 (1996)
- [39] S. Zhang, P.M. Levy, A.C. Marley, S.S.P. Parkin
Quenching of magnetoresistance by hot electrons in magnetic tunnel junctions
Physical Review Letters 79, 3744 (1997)
- [40] M.C. Cyrille, S. Kim, M.E. Gomez, J. Santamaria, K.M. Krishnan, I.K. Schuller
Enhancement of perpendicular and parallel giant magnetoresistance with the number of bilayers in Fe/Cr superlattices
Physical Review B 62, 3361 (2000)
- [41] T. Niizeki, N. Tezuka, K. Inomata
Enhanced tunnel magnetoresistance due to spin dependent quantum well resonance in specific symmetry states of an ultrathin ferromagnetic electrode
Physical Review Letters 100, 047207 (2008)

- [42] J.B. Johnson
Thermal agitation of electricity in conductors
Physical Review 32, 97 (1928)
- [43] H. Nyquist
Thermal agitation of electric charge in conductors
Physical Review 32, 110 (1928)
- [44] F.N. Hooge, T.G.M. Kleinpenning, L.K.J. Vandamme
Experimental studies on 1/f noise
Reports on Progress in Physics 44, 479 (1981)
- [45] M. Sicot, S. Andrieu, C. Tiusan, F. Montaigne, F. Bertran
On the quality of molecular-beam epitaxy grown Fe/MgO and Co/MgO(001) interfaces
Journal of Applied Physics 99, 08D301 (2006)
- [46] H.J. Grabke,
Surface and grain boundary segregation on and in iron and steels
The Iron and Steel Institute of Japan 29, 529 (1989)
- [47] V. Blum, A. Schmidt, W. Meier, L. Hammer, K. Heinz
Competitive surface segregation of C, Al and S impurities in Fe(001)
Journal of Physics: Condensed Matter 15, 3517 (2003)
- [48] P.J. Zermatten, G. Gaudin, G. Maris, M. Miron, A. Schuhl, C. Tiusan, F. Greullet, M. Hehn
Experimental evidence of interface resonance states in single-crystal magnetic tunnel junctions
Physical Review B 78, 033301 (2008)
- [49] P.-J. Zermatten
Etude du transport tunnel dépendant du spin dans des jonctions tunnel magnétiques épitaxiées Fe/MgO/Fe bcc
Thèse de l'université Joseph Fourier, Grenoble 1 (2008)
- [50] C. Tiusan, M. Sicot, J. Faure-Vincent, M. Hehn, C. Bellouard, F. Montaigne, S. Andrieu, A. Schuhl
Static and dynamic aspects of spin tunnelling in crystalline magnetic tunnel junctions
Journal of Physics: Condensed Matter 18, 941 (2006)
- [51] A. Gokce, E.R. Nowak, S.H. Yang, S.S.P. Parkin
1/f noise in magnetic tunnel junctions with MgO tunnel barriers
Journal of Applied Physics 99, 08A906 (2006)
- [52] S. Ingvarsson, G. Xiao, R.A. Wanner, P. Trouilloud, Y. Lu, W.J. Gallagher, A. Marley, K.P. Roche, S.S.P. Parkin
Electronic noise in magnetic tunnel junctions
Journal of Applied Physics 85, 5270 (1999)
- [53] S. Ingvarsson, G. Xiao, S.S.P. Parkin, W.J. Gallagher, G. Grinstein, R.H. Koch
Low-frequency magnetic noise in micron-scale magnetic tunnel junctions
Physical Review Letters 85, 3289 (2000)
- [54] L. Jiang, E.R. Nowak, P.E. Scott, J. Johnson, J.M. Slaughter, J.J. Sun, R.W. Dave
Low-frequency magnetic and resistance noise in magnetic tunnel junctions
Physical Review B 69, 054407 (2004)
- [55] Y.V. Nazarov, J.J.R. Struben
Universal excess noise in resonant tunnelling via strongly localized states
Physical Review B 53, 15466 (1996)
- [56] Y. Chen, R.A. Webb
Full shot noise in mesoscopic tunnel barriers
Physical Review B 73, 035424 (2006)

- [57] R. Guerrero, F.G. Aliev, Y. Tserkovnyak, T.S. Santos, J.S. Moodera
Shot noise in magnetic tunnel junctions: evidence for sequential tunneling
Physical Review Letters 97, 266602 (2006)
- [58] S.S. Safonov, A.K. Savchenko, D.A. Bagrets, O.N. Jouravlev, Y.V. Nazarov, E.H. Linfield, D.A. Ritchie
Enhanced shot noise in resonant tunnelling via interacting localized states
Physical Review Letters 91, 136801 (2003)
- [59] J. Almeida, R. Ferreira, P.P. Freitas, J. Langer, B. Ocker, W. Maass
1/f noise in linearized low resistance MgO magnetic tunnel junctions
Journal of Applied Physics 99, 08B314 (2006)
- [60] A.F. Md Nor, T. Kato, S.J. Ahn, T. Daibou, K. Ono, M. Oogane, Y. Ando, T. Miyazaki
Low-frequency noise in MgO magnetic tunnel junctions
Journal of Applied Physics 99, 08T306 (2006)
- [61] J. Scola, H. Polovy, C. Fermon, M. Pannetier-Lecoer, G. Feng, K. Fahy, J.M.D. Coey
Noise in MgO barrier magnetic tunnel junctions with CoFeB electrodes: influence of annealing temperature
Applied Physics Letters 90, 252501 (2007)
- [62] S. Kim, H.J. Shim, I.J. Hwang, B.K. Cho, J.H. Seck, J.T. Kim
Magnetic field dependent noise in magnetic tunnel junction
Journal of Applied Physics 91, 8804 (2002)
- [63] Z. Zhang, S. Satpathy
Electron states, magnetism, and the Verwey transition in magnetite
Physical Review B 44, 13319 (1991)
- [64] V.I. Anisimov, I.S. Elfimov, N. Hamada, K. Terakura
Charge-ordered insulating state of Fe₃O₄ from first-principles electronic structure calculations
Physical Review B 54, 4387 (1996)
- [65] C. Zener
Interaction between the d-shells in the transition metals. II. Ferromagnetic compounds of manganese with perovskite structure
Physical Review 82, 403 (1951)
- [66] Y.S. Dedkov, U. Rüdiger, G. Güntherodt
Evidence for the half-metallic ferromagnetic state of Fe₃O₄ by spin-resolved photoelectron spectroscopy
Physical Review B 65, 064417 (2002)
- [67] D.J. Huang, C.F. Chang, J. Chen, L.H. Tjeng, A.D. Rata, W.P. Wu, S.C. Chung, H.J. Lin, T. Hibma, C.T. Chen
Spin-resolved photoemission studies of epitaxial Fe₃O₄(100) thin films
Journal of Magnetism and Magnetic Materials 239, 261 (2002)
- [68] M. Fonin, R. Pentcheva, Y.S. Dedkov, M. Sperlich, D.V. Vyalikh, M. Scheffler, U. Rüdiger, G. Güntherodt
Surface electronic structure of the Fe₃O₄(100): evidence of a half-metal to metal transition
Physical Review B 72, 104436 (2005)
- [69] Kramers
Physica (1932)
- [70] P.W. Anderson
Antiferromagnetism. Theory of superexchange interaction
Physical Review 79, 350 (1950)

- [71] P.W. Anderson
New approach to the theory of superexchange interactions
Physical Review 115, 2 (1959)
- [72] J.B. Goodenough, L. Loeb
Theory of ionic ordering, crystal distortion, and magnetic exchange due to covalent forces in spinels
Physical Review 98, 391 (1955)
- [73] P.G. Bercoff, H.R. Bertorello
Exchange constants and transfert integrals of spinel ferrites
Journal of Magnetism and Magnetic Materials 169, 314 (1997)
- [74] L. Néel
Annals of Physics (1948)
- [75] P.A. Miles, W.B. Westphal, A. von Hippel
Dielectric spectroscopy of ferromagnetic semiconductors
Reviews of Modern Physics 29, 279 (1957)
- [76] E.J.W. Verwey
Electronic conduction of magnetite (Fe_3O_4) and its transition point at low temperatures
Nature 3642, 327 (1939)
- [77] M. Iizumi, T.F. Koetzle, G. Shirane, S. Chikazumi, M. Matsui, S. Todo
Structure of magnetite (Fe_3O_4) below the Verwey transition temperature
Acta Cryst. B 38, 2121 (1982)
- [78] J.P. Wright, J.P. Attfield, P.G. Radaelli
Long range ordering in magnetite below the Verwey transition
Physical Review Letters 87, 266401 (2001)
- [79] F. Walz
The Verwey transition – a topical review
Journal of Physics: Condensed Matter 14, R285 (2002)
- [80] I. Leonov, A.N. Yaresko, V.N. Antonov, M.A. Korotin, V.I. Anisimov
Charge and orbital order in Fe_3O_4
Physical Review Letters 93, 146404 (2004)
- [81] H.T. Jeng, G.Y. Guo, D.J. Huang
Charge-orbital ordering and Verwey transition in magnetite
Physical Review Letters 93, 156403 (2004)
- [82] P. Novak, H. Stepankova, J. Englich, J. Kohout, V.A.M. Brabers
NMR in magnetite below and around the Verwey transition
Physical Review B 61, 1256 (2000)
- [83] J. Garcia, G. Subias, M.G. Proietti, J. Blasco, H. Renevier, J.L. Hodeau, Y. Joly
Absence of charge ordering below the Verwey transition temperature in magnetite
Physical Review B 63, 054110 (2001)
- [84] G. Subias, J. Garcia, J. Blasco, M.G. Proietti, H. Renevier, M.C. Sanchez
Magnetite, a model system for mixed-valence oxides, does not show charge ordering
Physical Review Letters 93, 156408 (2004)
- [85] J. Garcia, G. Subias
The Verwey transition – a new perspective
Journal of Physics: Condensed Matter 16, R145 (2004)
- [86] Y. Fujii, G. Shirane, Y. Yamada
Study of the 123-K phase transition of magnetite by critical neutron scattering
Physical Review B 11, 2036 (1975)

- [87] P. Pierkarz, K. Parlinski, A.M. Oles
Origin of the Verwey transition in magnetite: group theory, electronic structure, and lattice dynamics study
Physical Review B 76, 165124 (2007)
- [88] D.T. Margulies, F.T. Parker, F.E. Spada, R.S. Goldman, J. Li, R. Sinclair, A.E. Berkowitz
Anomalous moment and anisotropy behaviour in Fe₃O₄ films
Physical Review B 53, 9175 (1996)
- [89] W. Eerenstein
Spin-dependent transport across anti-phase boundaries in magnetite films
Thèse de l'Université de Groningen, Pays-Bas (2003)
- [90] W. Eerenstein, T.T.M. Palstra, T. Hibma, S. Celotto
Diffusive motion of antiphase boundaries in Fe₃O₄ films
Physical Review B 68, 014428 (2003)
- [91] A. M. Bataille
Etude des propriétés physiques des films de Fe₃O₄ épitaxiés et de la polarisation en spin à l'interface Fe₃O₄/γ-Al₂O₃
Thèse de l'Université Paris-XI, Orsay (2005)
Consultable sur le site *thèse en ligne* du CNRS : <http://tel.archives-ouvertes.fr/>
- [92] D.T. Margulies, F.T. Parker, M.L. Rudee, F.E. Spada, J.N. Chapman, P.R. Aitchison, A.E. Berkowitz
Origin of the anomalous magnetic behaviour in single crystal Fe₃O₄ films
Physical Review Letters 79, 5162 (1997)
- [93] J.B. Moussy, S. Gota, A.M. Bataille, M.-J. Guittet, M.G.-Soyer, F. Delille, B. Dieny, F. Ott, T.D. Doan, P. Warin, P. Bayle-Guillemaud, C. Gatel, E. Snoeck
Thickness dependence of anomalous magnetic behavior in epitaxial Fe₃O₄(111) thin films: effect of density of antiphase boundaries
Physical Review B 70, 174448 (2004)
- [94] A.M. Bataille, L. Ponson, S. Gota, L. Barbier, D. Bonamy, M. G.-Soyer, C. Gatel, E. Snoeck
Characterization of antiphase boundary network in Fe₃O₄(111) epitaxial thin films: effect on anomalous magnetic behavior
Physical Review B 74, 155438 (2006)
- [95] W. Eerenstein, T.T.M. Palstra, T. Hibma, S. Celotto
Origin of the increase resistivity in epitaxial Fe₃O₄ films
Physical Review B 66, 201101 (2002)
- [96] J.P. Shepherd, J.W. Koenitzer, R. Aragon, J. Spaek, J.M. Honig
Heat capacity and entropy of nonstoichiometric magnetite Fe_{3(1-δ)}O₄: the thermodynamic nature of the Verwey transition
Physical Review B 43, 8461 (1991)
- [97] G. Kh. Rozenberg, G.R. Hearne, M.P. Pasternak, P.A. Metcalf, J.M. Honig
Nature of the Verwey transition in magnetite (Fe₃O₄) to pressures of 16 GPa
Physical Review B 53, 6482 (1996)
- [98] S. Todo, N. Takeshita, T. Kanehara, T. Mori, N. Môri
Metallization of magnetite (Fe₃O₄) under high pressure
Journal of Applied Physics 89, 7347 (2001)
- [99] A.M. Bataille, E. Vincent, S. Gota, M. G.-Soyer
Finite size effects in the Verwey transition of magnetite thin films
Consultable sur cond-mat: arXiv:cond-mat/0610291v1

- [100] D. Lacour, O. Durand, J.-L. Maurice, H. Jaffrès, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, J. Humbert, A. Vaurès
On the use of exchange biased top electrodes in magnetic tunnel junctions
Journal of Magnetism and Magnetic Materials 270, 403 (2004)
- [101] G. Malinowski, M. Hehn, S. Robert, O. Lenoble, A. Schuhl, P. Panissod
Magnetic origin of enhanced top exchange biasing in Py/IrMn/Py multilayers
Physical Review B 68, 184404 (2003)
- [102] H. Wormeester, E. Hüger, E. Bauer
hcp and bcc Cu and Pd films
Physical Review Letters 77, 1540 (1996)
- [103] N. Spiridis, B. Handke, T. Slezak, J. Barbasz, M. Zajac, J. Haber, J. Korecki
Surface structure of epitaxial magnetite $Fe_3O_4(001)$ films: in situ STM and CEMS studies
Journal of Physics and Chemistry B 108, 14356 (2004)
- [104] N. Spiridis, J. Barbasz, Z. Lodziana, J. Korecki
 $Fe_3O_4(001)$ films on $Fe(001)$: termination and reconstruction of iron-rich surfaces
Physical Review B 74, 155423 (2006)
- [105] J.F. Bobo, D. Basso, E. Snoeck, C. Gatel, D. Hrabovsky, J.L. Gauffier, L. Ressler, R. Mamy, S. Visnovsky, J. Hamrle, J. Teillet, A.R. Fert
Magnetic behaviour and role of the antiphase boundaries in Fe_3O_4 epitaxial films sputtered on $MgO(001)$
Eur. Phys. J. B 24, 43 (2001)
- [106] C. Magen, E. Snoeck, U. Lüders, J.F. Bobo
Effect of metallic buffer layers on the antiphase boundary density of epitaxial Fe_3O_4
Journal of Applied Physics 104, 013913 (2008)
- [107] M. Zajac, D. Aernout, K. Freindl, K. Matlak, N. Spiridis, M. Slezak, T. Slezak, J. Korecki
Magnetic properties of Fe_3O_4 films on $Fe(001)$
Acta Physica Polonica A 112, 1319 (2007)
- [108] F.C. Voigt, T.T.M. Palstra, L. Niesen, O.C. Rogojuanu, M.A. James, T. Hibma
Superparamagnetic behaviour of structural domains in epitaxial ultrathin magnetite films
Physical Review B 57, R8107 (1998)
- [109] X.W. Li, A. Gupta, G. Xiao, W. Qian, V.P. Dravid
Fabrication and properties of heteroepitaxial magnetite (Fe_3O_4) tunnel junctions
Applied Physics Letters 73, 3282 (1998)
- [110] P.J. van der Zaag, P.J.H. Bloemen, J.M. Gaines, R.M. Wolf, P.A.A. van der Heijden, R.J.M. van de Veerdonk, W.J.M. de Jonge
On the construction of an Fe_3O_4 -based all-oxide spin valve
Journal of Magnetism and Magnetic Materials 211, 301 (2000)
- [111] P. Seneor, A. Fert, J.L. Maurice, F. Montaigne, F. Petroff, A. Vaurès
Large magnetoresistance in tunnel junctions with an iron oxide electrode
Applied Physics Letters 74, 4017 (1999)
- [112] A.M. Bataille, R. Mattana, P. Seneor, A. Tagliaferri, S. Gota, K. Bouzouhane, C. Deranlot, M.J. Guittet, J.B. Moussy, C. de Nadaï, N.B. Brookes, F. Petroff, M. G.-Soyer
On the spin-polarization at the $Fe_3O_4/\gamma-Al_2O_3$ interface probed by spin-resolved photoemission and spin-dependent tunneling
Journal of Magnetism and Magnetic Materials 316, e963 (2007)
- [113] K. Aoshima, S.X. Wang
 Fe_3O_4 and its magnetic tunneling junctions grown by ion beam deposition
Journal of Applied Physics 93, 7954 (2003)

- [114] K.S. Yoon, J.H. Koo, Y.H. Do, K.W. Kim, C.O. Kim, J.P. Hong
Performance of $Fe_3O_4/AlO_x/CoFe$ magnetic tunnel junctions based on half-metallic Fe_3O_4 electrodes
Journal of Magnetism and Magnetic Materials 285, 125 (2005)
- [115] G. Hu, R. Chopdekar, Y. Suzuki
Observation of inverse magnetoresistance in epitaxial magnetite/manganite junctions
Journal of Applied Physics 93, 7516 (2003)
- [116] Y.F. Chen, M. Ziese
Magnetotransport properties of $Fe_3O_4-La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$ junctions
Journal of Physics D: Applied Physics 40, 3271 (2007)
- [117] E.Y. Tsybal, D.G. Pettifor
Modelling of spin-polarized electron tunnelling from 3d ferromagnets
Journal of Physics: Condensed Matter 9, L411 (1997)
- [118] J.M. De Teresa, A. Barthélémy, A. Fert, J.-P. Contour, F. Montaigne, P. Seneor
Role of metal-oxide interface in determining the spin polarization of magnetic tunnel junctions
Science 286, 507 (1999)
- [119] G. Mariotto, S. Murphy, I.V. Shvets
Charge ordering on the surface of $Fe_3O_4(001)$
Physical Review B 66, 245426 (2002)
- [120] Sh. Kogan
Electronic noise and fluctuations in solids
Cambridge Press University (1996)
- [121] F. Montaigne
Effets tunnel dependant du spin : des simples aux doubles jonctions
Thèse de l'Université Paris VII (1999)
- [122] T. Miyazaki, N. Tezuka
Giant magnetic tunneling effect in $Fe/Al_2O_3/Fe$ junction
Journal of Magnetism and Magnetic Materials 139, L231 (1995)
- [123] D.D. Djayaprawira, K. Tsunekawa, M. Nagai, H. Maehara, S. Yamagata, N. Watanabe, S. Yuasa, Y. Suzuki, K. Ando
230 % room-temperature magnetoresistance in $CoFeB/MgO/CoFeB$ magnetic tunnel junctions
Applied Physics Letters 86, 092502 (2005)

Les jonctions tunnel magnétiques épitaxiées à base de MgO(001) : de l'étude statique et dynamique à l'injection de spin dépendant des symétries.

Les modèles théoriques qui prônent l'existence d'un filtrage en symétrie dans les électrodes ferromagnétiques n'ont jamais souffert d'autre justification que leur potentiel à éclairer les résultats expérimentaux. En la matière, les jonctions tunnel magnétiques Fe/MgO/Fe(001) apparaissent être un outil approprié pour confronter expérience et théorie de par leur haute qualité cristalline, cette dernière étant essentielle pour se rapprocher au plus près des considérations théoriques. Les premières mesures de bruit basse fréquence réalisées sur ce système en démontrent la qualité remarquable, paramètres primordiaux au bon déroulement des mécanismes de transport tunnel. L'étude de la dynamique du courant a permis de montrer l'existence d'un mode de transport tunnel direct d'une électrode à l'autre et d'invalider un mode de transport séquentiel via des défauts dans la barrière. L'intégration de films minces de Cr(001) dans ce système idéal a permis de valider de façon non ambiguë l'existence effective du filtrage en symétrie suite à l'apparition d'états de puits quantiques pour une seule symétrie électronique dans des jonctions Fe/Cr/Fe/MgO/Fe. Ce résultat phare met aussi en évidence un mode de transport tunnel cohérent et balistique. La validation de ces concepts autorise l'étude de l'injection de spin dépendant des symétries dans des matériaux plus complexes, comme des films minces de Fe₃O₄(001). Ces derniers ont fait l'objet d'une étude structurale approfondie et ont amené à des résultats de magnéto-transport encourageants suite à leur intégration dans des dispositifs tunnel à base de MgO(001).

Mots-clés : effet tunnel dépendant du spin, jonction tunnel magnétique épitaxiée, filtrage en symétries, états de puits quantiques, injection de spin dépendant des symétries, fluctuations temporelles du courant, demi-métal, polarisation du courant tunnel.

Epitaxial MgO(001)-based magnetic tunnel junctions : from a static and dynamic study to symmetry-dependent spin injection

The symmetry-filtering into the ferromagnets as predicted by the theoreticians has never suffered of any other justification than its ability to shed the light on the experimental observations. Fe/MgO/Fe(001) junctions are then an appropriate tool to test its validity thanks to their high crystallinity. The first performed low frequency noise measurements have proved the well-suited quality of this kind of junctions and the study of the current's dynamic through the system, its pure direct tunneling. By using Cr(001) thin films, the symmetry-filtering has been unambiguously highlighted with the occurrence of quantum-well states only for one specific electronic symmetry in Fe/Cr/Fe/MgO/Fe(001). Thus, the validity of the theoretical concepts allows investigating the symmetry-dependent spin-injection into more complex systems such as Fe₃O₄(001) thin films which have revealed themselves as promising to integrate into MgO(001)-based tunnel devices.

Keywords : spin-dependent tunneling effect, epitaxial magnetic tunnel junction, symmetry-filtering, quantum-well states, symmetry-dependent spin injection, temporal current's fluctuations, half-metal, tunnel polarisation.