

THESE DE L'UNIVERSITE PARIS NORD-PARIS XIII

SPECIALITE PHYSIQUE

*présentée par*

Hanife TUZCUOGLU

*pour obtention du titre de*

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS NORD - PARIS XIII

---

*Corrélation entre les propriétés structurales et magnétiques des couches minces  
et nanostructures de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$*

---

Soutenue le 26 novembre 2014 devant le jury composé de:

M. Mohamed Belmeguenai	Directeur de thèse	Université Paris 13
M. Lotfi Bessais	Rapporteur	Université Paris 12
M. Salim Mourad Chérif	Directeur de thèse	Université Paris 13
M. Abdeslem Fnidiki	Examineur	Université de Rouen
M. Vincent Lorent	Examineur	Université Paris 13
Mme Laurence Méchin	Rapporteur	ENSICAEN
M. Franck Vidal	Examineur	Université Paris 6



*N° attribué par la bibliothèque*

|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|

**THESE**

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS 13

*Discipline : PHYSIQUE*

présentée et soutenue publiquement

par

Hanife TUZCUOGLU

*le 26 novembre 2014*

*Corrélation entre les propriétés structurales et magnétiques des couches minces  
et nanostructures de  $Co_2FeAl$*

**JURY**

M. Mohamed Belmeguenai	Directeur de thèse	Université Paris 13
M. Lotfi Bessais	Rapporteur	Université Paris 12
M. Salim Mourad Chérif	Directeur de thèse	Université Paris 13
M. Abdeslem Fnidiki	Examineur	Université de Rouen
M. Vincent Lorent	Examineur	Université Paris 13
Mme Laurence Méchin	Rapporteur	ENSICAEN
M. Franck Vidal	Examineur	Université Paris 6





*Beni bir an bile yalnız bırakmayan, desteklerini hiçbir zaman esirgemeyen canım ailem*

*Annem Gönül'e, Babam Yusuf'a, sevgili kardesim Mehmet'e*

*Ve ...*

*Her zaman yanımda olduğunu hissettiğim*

*biricik kardesim Gamze'ye...*



## Remerciements

---

Je tiens tout d'abord à remercier mes directeurs de thèse, Mohamed Belmeguenai et Mourad Chérif, pour avoir encadrés ce travail de thèse et sans lesquels ce travail de thèse n'aurait pas été possible et je remercie l'ensemble des membres du groupe FINANO.

J'aimerais aussi grandement remercier les membres de mon jury. D'abord, Lotfi Bessais et Laurence Méchin que je remercie d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce travail de thèse, mais également Vincent Lorent qui a accepté d'être président du jury, ainsi que tous les autres membres d'avoir accepté de faire partie du jury. Je vous remercie de tous les compliments et tous vos remarques que vous m'avez exprimé.

J'aimerais remercier les différents chercheurs que nous avons collaboré durant ce travail de thèse en particulière Dominique Berling, du laboratoire de l'institut de science des matériaux de Mulhouse qui m'a permis d'utiliser le montage de TBIIST et Mihai Gabor de l'université technique de Cluj-Napoca qui nous a fourni de tous les échantillons de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$ .

Je remercie très sincèrement ma collègue de bureau Judith Bourguille. J'ai partagé énormément de moments, de conversations avec toi et je te souhaite un bon fin de thèse. Je voudrais également remercier tous les doctorants de LSPM, à commencer par Thiago Santos, Béucia Bermene, Tarik Sadat, Stéphane Dufrenoy, Pauline Canaud, Kévin Ardon, Sabine Ayadi, Mouhamadou Gueye, Walid Ben Salah, Romain Savina et tous les autres.

J'aimerais remercier également Sumeyye, Akif, Arzu, Meryem, Zeynep, Semra, Hureyre, Rumeyza et Betül. Je vous considère comme ma famille de France et je vous remercie de me supporter et de veiller sur moi depuis que j'ai eu le plaisir de vous rencontrer.

Je conclus ces remerciements en saluant ma famille : Canim ailem, süphesiz sizin verdiginiz destek ve cesaret olmasa bugunlere kadar gelemezdim. Koskoca bir dokuz yilin ardindan yuzum hala gulebiliyorsa ve hala sevildigimi hissedebiliyorsam bu ruya sizin sayenizde gercek oldu. Canim babam, bu tezi sana ithaf ediyorum. Senin yol gostericiligin olmasa simdi muhtemelen ilk noel tatilinde dayanamayip eve coktan donmustum. Bana guvendigin icin sana cok sey borcluyum babacigimm. Canim annem, bu tezi sana ithaf ediyorum. Sizden uzakta gecirdigim senelerde anladim ki, sizin sevgin, merhametin, destegin sonsuz ve bu dunyada bunun yerini hicbir sey tutamaz. Canim kardesim bu tezi sana ithaf

ediyorum. Gecen seneler her ne kadar uzak olsak da bizi birbirimize daha çok bagladi, destegin için sana çok sey borcluyum. İyi ki varsiniz...

# Table des matières

<b>Introduction générale.....</b>	<b>1</b>
<b>Chapitre I : Dynamique Hyperfréquence de l'aimantation .....</b>	<b>7</b>
1.1 Introduction .....	8
1.2 Concepts de magnétisme .....	8
1.2.1 Le moment magnétique .....	8
1.2.2 Energies magnétiques d'une couche mince ferromagnétique .....	9
1.3 Dynamique de l'aimantation .....	16
1.3.1 Equation de Landau-Lifshitz-Gilbert .....	16
1.4 Excitations magnétiques .....	18
1.4.1 Mode uniforme .....	19
1.4.2 Les ondes de spins .....	19
1.5 Techniques expérimentales de la dynamique de l'aimantation .....	23
1.5.1 Techniques temporelles .....	24
1.5.2 Techniques en domaine fréquentielle .....	25
1.5.3 Comparaison entre FMR et BLS .....	29
1.6 Mécanismes de relaxation de l'aimantation .....	29
1.6.1 Mécanismes intrinsèques (ou Gilbert) .....	30
1.6.2 Mécanismes extrinsèques .....	31
Bibliographie .....	34
<b>Chapitre II : Les alliages Heusler .....</b>	<b>39</b>
2.1 Introduction .....	40
2.2 Généralités sur les alliages Heusler .....	41
2.3 Structure cristallographique des alliages Heusler à base de cobalt .....	42
2.4 Demi-métallicité des alliages Heusler .....	44
2.4.1 Origine de gap des alliages Heusler à base de cobalt .....	46

2.4.2	Effets du désordre atomique sur certaines propriétés des alliages Heusler .....	48
2.4.3	Effets de surface et d'interface sur la demi-métallicité des alliages Heusler ..	50
2.4.4	Effets de température de recuit sur la demi-métallicité des alliages Heusler ..	51
2.5	Les propriétés magnétiques des Heusler à base de cobalt .....	52
2.5.1	Magnétisme .....	52
2.5.2	Le comportement de Slater-Pauling .....	53
2.6	Application des alliages Heusler pour les dispositifs magnétorésistances .....	55
2.7	Motivation du travail de thèse .....	56
	Bibliographie .....	58
<b>Chapitre III : Techniques Expérimentales .....</b>		<b>65</b>
3.1	Introduction .....	66
3.2	Résonance Ferromagnétique (FMR) .....	66
3.2.1	Montage expérimental .....	66
3.3	Spectroscopie Brillouin (BLS) .....	72
3.3.1	Banc de mesure BLS .....	72
3.4	Magnétométrie à Effet Kerr (MOKE) .....	78
3.4.1	Banc expérimental magnéto-optique Kerr .....	79
3.4.2	Méthode du couple et susceptibilité initiale inverse sous champ transverse TBIIST (Transverse Bias Initial Inverse Susceptibility and Torque).....	80
	Bibliographie .....	82
<b>Chapitre IV : Effet de l'épaisseur et du substrat sur les propriétés magnétiques et structurales de couches minces Co<sub>2</sub>FeAl .....</b>		<b>83</b>
4.1	Introduction .....	84
4.2	Préparation des échantillons .....	85
4.3	Les propriétés structurales .....	86
4.4	Les propriétés magnétiques .....	91
4.4.1	Quelques précisions sur le modèle utilisé .....	91

4.4.2	Propriétés statiques .....	94
4.4.3	Propriétés magnétiques dynamiques .....	98
4.5	Conclusion .....	112
	Bibliographie .....	115
<b>Chapitre V : Effet de la température de recuit sur les propriétés structurales et magnétique des films Co<sub>2</sub>FeAl .....</b>		<b>117</b>
5.1	Introduction .....	118
5.2	Préparation des échantillons .....	118
5.3	Propriétés structurales .....	119
5.4	Propriétés magnétiques .....	121
5.4.1	Propriétés statiques .....	123
5.4.2	Propriétés magnétiques dynamiques .....	123
5.5	Conclusion .....	128
	Bibliographie .....	130
<b>Chapitre VI : Confinement latéral des ondes de spin dans les réseaux de lignes à base de Co<sub>2</sub>FeAl .....</b>		<b>131</b>
6.1	Introduction .....	132
6.2	Procédé de fabrication d'échantillon .....	133
6.3	Propriétés Magnétiques .....	134
6.3.1	Propriétés statiques .....	134
6.3.2	Propriétés dynamiques .....	135
6.4	Conclusion .....	140
	Bibliographie .....	141
<b>Conclusion générales et perspectives .....</b>		<b>143</b>
<b>Annexe .....</b>		<b>149</b>





# Introduction générale

# Introduction générale

---

L'électronique conventionnelle est basée sur l'exploitation des charges électriques en contrôlant le courant qui est assuré par des charges négatives, dites électrons, et par des charges positives, appelées trous. L'électron, en plus sa masse et sa charge, possède aussi un moment magnétique, appelé spin. Pendant longtemps, les charges et les spins ont utilisés séparément. La spintronique (électronique de spin) est un domaine qui associe le contrôle de courant de spins et de charges. La spintronique concerne les spins des électrons de conduction un degré de liberté supplémentaire dans les dispositifs intégrables au contraire des dispositifs électroniques. Aujourd'hui, les applications principales de la spintronique promettent des applications en enregistrement magnétique, en électronique et en information quantique.

Le développement de la spintronique a été déclenché par la découverte de la magnétorésistance géante (en anglais giant magnetoresistance, GMR) indépendamment par A. Fert et P. Grünberg. Par la suite, le domaine de la spintronique a montré une expansion continue où plusieurs autres effets, tels que la magnétorésistance tunnel (en anglais tunnel magnetoresistance, TMR) et le couple de transfert de spin ont été découverts et utilisés dans des appareils et dispositifs commerciaux. Aujourd'hui, la spintronique est confrontée à une série de défis. La TMR dans les jonctions tunnel magnétiques (en anglais magnetic tunnel junction, MTJ), cellules élémentaires de capteurs et de mémoires magnétiques aléatoires non volatiles (en anglais magnetic random access memory, MRAM), doit être continuellement augmentée pour assurer des rapports signal sur bruit adéquats dans des dispositifs de plus en plus miniaturisés.

D'autre part, la densité de courant critique pour le retournement d'aimantation utilisant le couple de transfert de spin (en anglais spin transfer torque, STT), laquelle est proportionnel à la constante d'amortissement de Gilbert  $\alpha$  et à l'inverse de taux de polarisation en spin, doit être réduite d'avantage. Cela est essentiel pour les applications utilisant le retournement de l'aimantation par couple de transfert de spin, tels que les STT-MRAMs, et pour la conception des oscillateurs de spin à haute efficacité. Troisièmement, l'injection et la détection de courants polarisés en spin des matériaux ferromagnétiques métalliques vers les semiconducteurs est un autre défi pour la spintronique en raison de la désadaptation de conductivité entre les deux types de matériaux. Ce dernier problème peut être résolu en utilisant des jonctions tunnel à forte polarisation en spin.

A première vue, une technologie clé qui permettrait de résoudre tous ces défis serait basée sur des matériaux avec une très forte polarisation en spin et de faibles paramètres d'amortissement. Cependant, le niveau d'amortissement doit être réglé de façon optimale pour faire face à un autre défi important lié à l'ingénierie de la nouvelle génération de dispositifs d'enregistrement magnétique. En raison de la faible résistance de nanopiliers, les capteurs GMR utilisant un courant perpendiculaire au plan (en anglais perpendicular to plane current, CPP) constituent aujourd'hui les candidats idéaux pour les têtes de lectures des disques durs à ultra-haute densité ( $> 1 \text{ Tb/in}^2$ ). Même si le niveau du signal est inférieur à celui d'un capteur TMR standard à base de MgO, le faible bruit de Johnson du capteur CPP-GMR conduirait à un rapport signal bruit très élevé. De la même façon pour les jonctions tunnel magnétiques, le signal des dispositifs à base de CPP-GMR peut être augmenté en utilisant des électrodes à forte polarisation en spin. Toutefois, dans ce cas, les grandes densités de courant dans la faible résistance ( $< 50 \text{ m}\Omega \cdot \mu\text{m}^2$ ) des piliers à base de CPP-GMR combinées au faible amortissement du Gilbert du matériau ferromagnétique constituant les électrodes conduirait à un bruit magnétique important par les effets du couple de spin. Afin de maintenir des rapports signal sur bruit raisonnables, à la fois la polarisation en spin et la constante d'amortissement doivent être ajustées de manière optimale. En règle générale, la polarisation doit être maximisée et la constante d'amortissement doit être réglée de manière appropriée.

La plupart des défis énumérés ci-dessus peuvent être résolus à l'aide d'utilisation d'électrodes ferromagnétiques à base d'alliages Heusler dans ces dispositifs de spintronique. Ces matériaux offrent une grande polarisation en spin combinée avec une faible constante d'amortissement de Gilbert qui peut être d'avantage extrinsèquement réglée en fonction de l'application visée.

Les Alliages Heusler sont une catégorie particulière de composés intermétalliques nommés d'après Friedrich Heusler, qui en 1903 a rapporté que le  $\text{Cu}_2\text{MnAl}$  est un matériau ferromagnétique alors que ses constituants élémentaires ne sont pas ferromagnétiques. Depuis la prédiction de la demi-métallicité, par de Groot et al. en 1983, de l'alliage  $\text{NiMnSb}$ , l'intérêt scientifique des alliages Heusler a été renouvelé et ces matériaux ont commencé à susciter des intérêts à la fois théorique et expérimental considérables. En plus de  $\text{NiMnSb}$ , plusieurs autres alliages Heusler ont été prédits, par des calculs *ab-initio*, comme des demi-métaux (100% de taux de polarisation en spin), tels que les alliages Heusler à base de Co, qui sont considérés comme des candidats prometteurs pour les applications de spintronique commerciales, en raison notamment de leurs hautes températures de Curie.

Les alliages Heusler complets sont décrits par la formule  $X_2YZ$ , où X et Y sont des métaux de transition et Z est un élément principal du groupe sp. Selon les sites atomiques occupés par les atomes X, Y et Z dans la maille élémentaire, l'alliage peut adopter différentes structures avec un désordre atomique chimique ou atomique. Les alliages Heusler de la phase totalement ordonnée  $L2_1$  se transforment en structure B2 (lorsque les atomes Y et Z sont complètement désordonnés). De plus, ils forment une structure A2, lorsque un ordre complètement aléatoire entre tous les sites X, Y et Z se produit. Ce désordre chimique affecte fortement la plupart de leurs propriétés physiques. En effet, il est rapporté en 2004 par l'équipe de A.J. Freeman (Northwestern University, Chicago) que certains types de désordre peuvent conduire à des états supplémentaires au niveau de Fermi, réduisant ainsi le polarisation en spin.

Motivé par les défis mentionnés ci-dessus, la recherche sur l'intégration des alliages Heusler demi-métalliques dans les hétérostructures de GMR et de TMR est en cours dans de nombreux équipes de recherche. Sur la base de leur demi-métallicité théoriquement prédite, il est prévu que l'utilisation des alliages de Heusler devrait conduire à de grandes valeurs de magnétorésistance. Toutefois, afin d'obtenir expérimentalement la demi-métallicité on doit surmonter deux difficultés: l'obtention d'un ordre chimique et une cristallisation parfaits (structure  $L2_1$ ) et la réalisation des interfaces cohérentes du composé Heusler et du matériau métallique (dispositif CPP-GMR) ou de la barrière tunnel (dispositif TMR). Dans ce dernier cas de MTJ monocristallines à base d'alliages de Heusler et des barrières tunnel de MgO (001), l'effet tunnel peut être particulièrement important. Bien que les valeurs obtenues sont encore au dessous des attentes théoriques, des TMRs relativement grandes ont été obtenues dans des jonctions tunnel magnétiques utilisant des alliages Heusler à base du Co tels que  $Co_2FeAl$  (CFA),  $Co_2MnSi$ ,  $Co_2FeAl_{0.5}Si_{0.5}$  et  $Co_2(Cr_{1-x}Fe_x)Al$ . Cependant, le  $Co_2FeAl$  est un matériau très attractif en raison de sa haute  $T_C$  ( $T_C \approx 1000$  K) et de sa capacité à croître par épitaxie sur une surface de MgO et donc des TMR très élevées sont attendues. En effet, un rapport de TMR de 360% a été atteint dans les hétérostructures de  $CoFe/MgO/Co_2FeAl$ . En plus de paramètre d'amortissement magnétique très faible, comme nous allons le montrer dans cette thèse, le désaccord de maille entre  $MgO(001)$  et  $CFA(001)$ , relativement faible, permet la fabrication des hétérostructures  $CFA/MgO(001)$  épitaxiées d'une grande qualité pour les MTJs, qui sont essentielles à l'observation du retournement d'aimantation par transfert de spin. En effet, le retournement de l'aimantation par transfert de spin a été observé dans les jonctions tunnel à base de CFA en utilisant des densités de courant ( $7.1 \text{ MA/cm}^2$ ) aussi petites que celles rapportées dans les jonctions du  $CoFeB/MgO/CoFeB$ . En outre, comme nous allons

le montrer dans cette thèse, une forte anisotropie perpendiculaire conduisant à une aimantation perpendiculaire peut être obtenue dans les couches ultra minces de CFA ce qui rend le CFA un candidat idéal pour les MTJs perpendiculaires. Ceci est très prometteur pour une réduction supplémentaire de la densité de courant pour le retournement d'aimantation en utilisant le couple de transfert de spin.

Face à tous les défis mentionnés ci-dessus, l'intégration du CFA comme une électrode ferromagnétique dans un dispositif d'électronique de spin nécessite la bonne compréhension et le contrôle précis de ses propriétés. Cette thèse s'intéresse donc à la corrélation entre les propriétés structurales et magnétiques de ces composés d'alliages Heusler. Pour cette étude, les techniques de diffraction X, de magnétométrie à échantillon vibrant (VSM), de magnétométrie à effet Kerr magnéto-optique, de susceptibilité inverse initiale (TBIIST), de résonance ferromagnétique (FMR) et de spectroscopie Brillouin sont utilisées.

D'un autre côté, la diminution des temps d'accès dans les dispositifs de spintronique et l'augmentation des vitesses de retournement de l'aimantation dans les MRAMs et disques durs sont des enjeux majeurs. Par conséquent, les connaissances fondamentales des conditions de retournement de l'aimantation dans ces dispositifs s'avèrent primordiales pour l'implémentation de ces matériaux dans les dispositifs de spintronique et permettre ainsi des progrès technologiques. Il est donc indispensable de comprendre le retournement de l'aimantation à l'échelle de la nanoseconde, appelé dynamique rapide de l'aimantation, dans les couches minces et nanostructures à base d'alliage Heusler. Ces vitesses de retournement dépendent de l'amortissement de l'aimantation et la majorité des informations sur ces pertes d'énergie et donc sur la rapidité de retournement de l'aimantation peut être déduite de la mesure de la largeur de raie de résonance ferromagnétique des modes excités dans le régime des excitations à faible amplitude. Cette dernière résulte des contributions de mécanismes intrinsèques (amortissement de Gilbert) et extrinsèques (comme le processus de diffusion de deux magnons et la mosaïcité). Ces processus extrinsèques peuvent éventuellement être contrôlables pour un matériau donné. L'étude de la coexistence de ces deux mécanismes de relaxation, intrinsèque et extrinsèque, et de leur interaction éventuelle est d'un grand intérêt pour les dispositifs qui fonctionnent en régime nanoseconde. Cet aspect est aussi abordé dans ce manuscrit.

Cette thèse est structurée comme suit :

- Dans *le premier chapitre*, nous présentons d'une part des notions du magnétisme, les différentes techniques et méthodes expérimentales, conçues pour l'étude de la dynamique

ultra-rapide de l'aimantation et, d'autre part, quelques concepts de base sur les ondes de spin et les mécanismes de relaxation de l'aimantation.

- Le **second chapitre** est consacré à une présentation des principales propriétés structurales, magnétiques et électroniques des alliages Heusler à base de cobalt.

Dans **le chapitre III**, les bancs de mesures des principales techniques expérimentales employées dans cette thèse, en particulier, la résonance ferromagnétique, magnétométrie à effet Kerr, de susceptibilité inverse initiale (TBIIST) et la diffusion Brillouin de la lumière sont illustrés et décrits.

Enfin, **les chapitres IV, V et VI** sont consacrés à une étude expérimentale de la corrélation entre les propriétés structurales et magnétiques des alliages Heusler de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$ . Les effets de l'épaisseur, du type de substrat et de la température de recuit sur ces propriétés sont abordés en détail. Un intérêt particulier a été accordé aux mécanismes de relaxation dans ces matériaux. Enfin, les résultats préliminaires concernant l'effet de la nanostructuration des alliages  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  sur la quantification des ondes de spin sont présentés.

# Chapitre I : Dynamique Hyperfréquence de l'aimantation

---

1.1	Introduction .....	8
1.2	Concepts de magnétisme .....	8
1.2.1	Le moment magnétique .....	8
1.2.2	Energies magnétiques d'une couche mince ferromagnétique .....	9
1.3	Dynamique de l'aimantation .....	16
1.3.1	Equation de Landau-Lifshitz-Gilbert .....	16
1.4	Excitations magnétiques .....	18
1.4.1	Mode uniforme .....	19
1.4.2	Les ondes de spins .....	19
1.5	Techniques expérimentales de la dynamique de l'aimantation .....	23
1.5.1	Techniques temporelles .....	24
1.5.2	Techniques en domaine fréquentielle .....	25
1.5.3	Comparison entre FMR et BLS .....	29
1.6	Mécanismes de relaxation de l'aimantation .....	29
1.6.1	Mécanismes intrinsèques (ou Gilbert) .....	30
1.6.2	Mécanismes extrinsèques .....	31
	Bibliographie .....	34

## 1.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous allons aborder des notions en magnétisme et quelques définitions qui sont nécessaires pour faciliter la lecture de ce travail de thèse. Nous allons introduire l'équation de mouvement de l'aimantation en présence d'un champ magnétique. Cette équation va nous permettre de comprendre le phénomène de résonance ferromagnétique (FMR). Nous décrirons ensuite la notion d'ondes de spins ainsi que les techniques expérimentales pour l'étude de la dynamique de l'aimantation. Enfin, nous finirons cette partie en introduisant les mécanismes de relaxation permettant l'analyse de nos mesures sur la largeur de raie FMR.

## 1.2 Concepts de magnétisme

### 1.2.1 Le moment magnétique

Un électron possède deux moments cinétiques différents: le moment cinétique orbital  $\vec{l}$  et le moment cinétique de spin  $\vec{s}$  auxquels sont associés respectivement des moments magnétiques :

- (i) Le moment magnétique orbital  $\vec{\mu}_l = -\frac{\mu_B}{\hbar} \vec{l}$  où  $\mu_B = 9,274 \times 10^{-24} \text{ A.m}^2$  est le magnétron de Bohr. Cette équation signifie que l'électron est assimilé à une boucle de courant infinitésimale dont le moment cinétique orbital est quantifié.
- (ii) Le moment magnétique de spin  $\vec{\mu}_s$  est donné par l'expression  $\vec{\mu}_s = -g \frac{\mu_B}{\hbar} \vec{s}$ , où  $g \approx 2$  est le facteur de Landé.

Dans le cas du couplage spin-orbite, le moment cinétique total est déterminé comme :  $\vec{T} = \vec{L} + \vec{S}$  où  $\vec{T}$  est donc la somme des moments totaux orbitaux ( $\vec{L} = \sum_i \vec{l}_i$ ) et de spins ( $\vec{S} = \sum_i \vec{s}_i$ ) et le moment magnétique total est alors relié à  $\vec{T}$  par l'expression :

$$\vec{\mu}_T = -g \frac{\mu_B}{\hbar} \vec{T} \text{ où } g = \frac{3}{2} + \frac{S(S+1) - L(L+1)}{2T(T+1)} \quad (1.1)$$

Dans le cas d'un matériau ferromagnétique, tous les atomes possèdent un moment magnétique et ils sont toujours en interaction avec leurs voisins via l'interaction d'échange détaillé plus bas. On définit donc l'aimantation comme le moment magnétique total par unité de volume  $V$ :

$$\vec{M} = \frac{\sum_T \vec{\mu}_T}{V} \quad (1.2)$$

Le moment magnétique s'exprime en  $\text{A.m}^2$  et l'aimantation s'exprime en  $\text{A.m}^{-1}$ .



## 1.2.2 Energies magnétiques d'une couche mince ferromagnétique

L'énergie magnétique totale d'un matériau ferromagnétique résulte de la contribution de quatre termes comme l'indique l'équation 1.3: l'énergie Zeeman, l'énergie d'échange, l'énergie démagnétisante (énergie dipolaire) et l'énergie d'anisotropie. Il s'agit des termes intrinsèques qui ne dépendent que de la structure atomique locale, comme l'énergie d'anisotropie et des termes externes comme l'énergie Zeeman.

$$E_{\text{tot}} = E_{\text{Zeeman}} + E_{\text{échange}} + E_{\text{démagnétisant}} + E_{\text{anisotropie}} \quad (1.3)$$

Les états d'équilibre de l'aimantation sont donnés par les directions de l'aimantation minimisant cette énergie.

Dans la suite, on pose que le champ  $\vec{H}$  est uniforme dans le volume  $V$  pour simplifier les expressions.

### 1.2.2.1 Energie Zeeman

Ce terme d'énergie provient de l'interaction entre l'aimantation et le champ magnétique appliqué. Ce champ tend à aligner l'aimantation dans sa direction. Elle est donnée par [1] :

$$E_{\text{Zeeman}} = -\vec{M} \cdot \vec{H} \quad (1.4)$$

### 1.2.2.2 Energie d'échange

Les matériaux ferromagnétiques possèdent un moment magnétique non nul, à savoir une aimantation spontanée même en l'absence du champ magnétique (cf. *Figure 1.1(a)*). Dans les matériaux antiferromagnétiques, il existe un motif ordonné entre les moments magnétiques même si le moment total est nul (cf. *Figure 1.1(b)*). Selon les figures 1.1(a) et 1.1(b), il s'agit d'une orientation globale des moments (spins) dans ces solides qui est due à une interaction entre eux, dite interaction d'échange. Cette interaction est responsable de l'alignement des spins parallèlement (solide ferromagnétique) ou antiparallèlement (antiferromagnétique). D'un autre côté, elle dépend aussi fortement de l'agitation thermique. On définit alors la température de Curie ( $T_c$ ), au-delà de laquelle le matériau ferromagnétique perd son aimantation spontanée en présentant un état plus désordonné, nommé état paramagnétique.

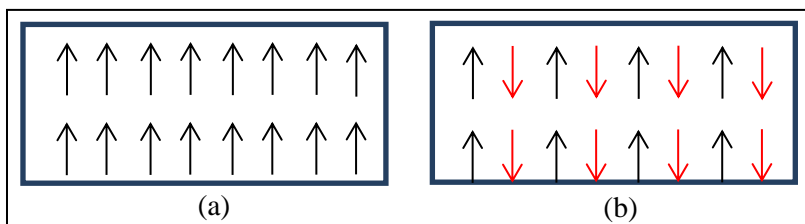


Figure 1.1 : Distribution des spins en absence du champ magnétique dans les matériaux (a) ferromagnétiques et (b) antiferromagnétiques

L'échange peut être de plusieurs types :

- l'échange direct
- le superéchange
- l'échange indirect (RKKY)
- l'échange itinérant ... sont les plus importants.

a) *Echange direct :*

L'origine physique de l'interaction d'échange direct vient du principe de Pauli et de l'interaction coulombienne à courte portée (premiers voisins atomiques) entre des moments magnétiques individuels. Le principe de Pauli impose que l'interaction d'échange directe dépend de l'antisymétrie de ces fonctions de l'onde électronique.

Dans un système à deux spins, l'énergie d'échange est déterminée comme la différence d'énergie entre le spin parallèle et antiparallèle. Pour un système qui possède plusieurs électrons cette énergie est définie par l'Hamiltonien de Heisenberg :

$$H_{\text{éch}} = -2 \sum J_{ij} s_i s_j \quad (1.5)$$

où,  $J_{ij}$  est appelé l'intégrale d'échange reliée au recouvrement des orbitales et décrit le couplage entre les deux spins qui sont représentés par les opérateurs  $\vec{s}_i$  et  $\vec{s}_j$ . Elle dépend beaucoup de la distance interatomique ( $r_{ij}$ ) entre les atomes. Si  $J_{ij}$  est positive, le terme d'énergie sera minimum lorsque tous les moments magnétiques de spin s'alignent parallèlement (matériaux ferromagnétiques). Si  $J_{ij}$  est négative, les moments de spin s'alignent de façon antiparallèle (matériaux antiferromagnétiques). L'évolution de  $J_{ij}$  peut être observée sur la courbe de Bethe-Slater (cf. *Figure 1.2*).

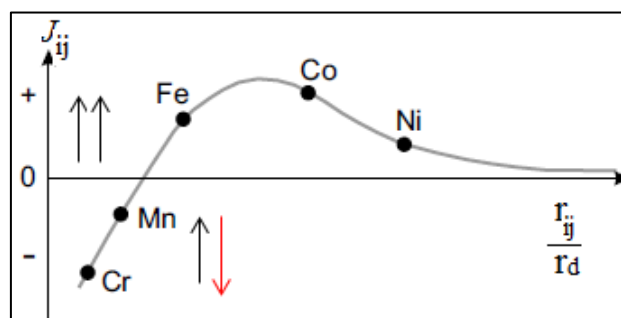


Figure 1.2 : La courbe de Bethe-Slater présente la relation de l'intégrale d'échange et le rapport de la distance interatomique  $r_{ij}$  au rayon de l'orbital « rd » [2]

A l'échelle mésoscopique, l'expression de l'énergie d'échange peut se représenter en fonction des gradients de l'aimantation sous la forme[1] :

$$E_{\text{échange}} = A_{\text{éch}} (\vec{\nabla} \vec{m})^2 \quad (1.6)$$

En explicitant, cette énergie peut s'écrire :

$$E_{\text{échange}} = A_{\text{éch}} \left[ (\vec{\nabla} m_x)^2 + (\vec{\nabla} m_y)^2 + (\vec{\nabla} m_z)^2 \right] \quad (1.7)$$

avec  $\vec{m} = \frac{1}{M_s} \vec{M}$  d'où  $M_s$  est l'aimantation à saturation et  $A_{\text{éch}}$  est la constante d'échange qui a une dimension de [énergie/longueur]. Elle est décrite par  $A_{\text{éch}} = n J_{ij} S^2 / a$  où  $a$  est la paramètre de maille,  $S$  est la valeur du moment de spin et  $n$  est un facteur qui dépend de la structure cristallographique [2].

### b) Superéchange

A part l'échange direct, il arrive que deux ions magnétiques soient séparés par un ion non magnétique. Dans ce cas, ces deux ions magnétiques peuvent avoir une interaction « médiatée » par leur voisin commun non magnétique. Cette interaction s'appelle superéchange.

### c) Echange dans les métaux 3d

Dans les métaux de transition (comme Co, Fe, Ni), les moments magnétiques proviennent d'une différence d'occupation des bandes de spin  $\uparrow$  et spin  $\downarrow$ . L'interaction entre ces moments se produit grâce au recouvrement entre les fonctions d'onde 3d des sites voisins.

### d) Echange indirect (RKKY)

Ce mécanisme a été utilisé pour expliquer l'origine du couplage ferromagnétique/antiferromagnétique entre deux couches minces ferromagnétiques ( $F_1$  et  $F_2$ ) séparées par une couche mince métallique non-magnétique (NM).

Dans un matériau non-magnétique, une impureté magnétique favoriserait la polarisation des électrons de conduction dans son voisinage. Cette polarisation décroît en subissant une oscillation avec une période de  $2k_F$ ,  $k_F$  est le vecteur d'onde au niveau de Fermi, et une atténuation en  $1/r^3$ . Nous appelons cette oscillation RKKY [3] (Ruderman et Kittel [4], Kasuya [5] et Yosida [6]). Par exemple, considérons deux impuretés magnétiques dans un matériau non-magnétique, les polarisations des deux ondes associées interagissent et couplent indi-

rectement les deux moments magnétiques soit parallèlement soit antiparallèlement par rapport à la distance entre ces deux points magnétiques. La même situation est valable dans le cas des multicouches  $F_1/NM/F_2$ . Les électrons de conduction de la couche  $NM$  acquièrent une faible polarisation au contact des couches magnétiques et les directions de l'aimantation des couches  $F_1$  et  $F_2$  sont couplées par l'intermédiaire de ces électrons en fonction de l'épaisseur de la couche  $NM$ . Après l'oscillation au travers de la couche non magnétique, si les deux interfaces  $F_1/NM$  et  $NM/F_2$  présentent la même polarisation, le couplage sera positif et favorisera l'alignement parallèle des moments magnétiques. Si la polarisation est opposée aux deux interfaces alors le couplage sera négatif et les moments magnétiques vont s'aligner antiparallèlement (cf. *Figure 1.3*).

Cet échange peut être déterminé par l'expression :

$$J_{ij} = \frac{J_0}{d_{NM}^2} \sin^2(2k_F d_{NM} + \phi) \quad (1.8)$$

où  $J_0$  présente la coefficient d'amplitude,  $d_{NM}$  est l'épaisseur de la couche  $NM$  et  $\phi$  est le déphasage.

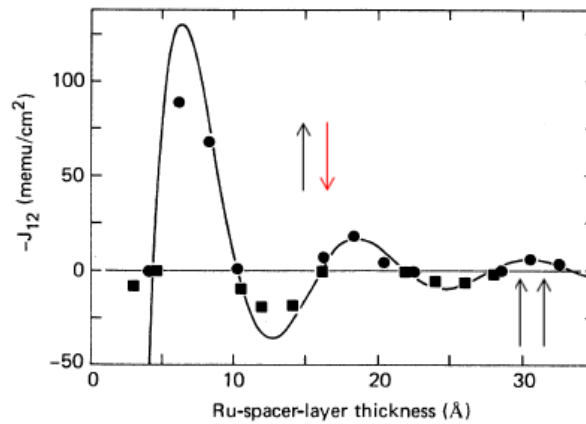


Figure 1.3 : Intensité du couplage RKKY,  $J_{12}$ , dans le système  $CoNi/Ru/CoNi$  en fonction de l'épaisseur de Ru [7].

### 1.2.2.3 Energie dipolaire ou de démagnétisation

L'interaction dipolaire est beaucoup plus faible que l'interaction d'échange entre les moments magnétiques voisins. Cependant, l'interaction d'échange est de courte portée et diminue exponentiellement avec la distance entre les spins. Alors que l'interaction dipolaire devient prépondérante à longue portée et est proportionnelle au cube de la distance interatomique [7] Cette interaction joue un rôle important dans les systèmes macroscopiques.

L'énergie démagnétisante associée au couplage dipolaire est déterminée comme [7]:

$$E_{\text{démagnétisant}} = -\frac{\mu_0}{2} \sum_{ij} \mu_i h_{ij} \quad (1.9)$$

$h_{ij}$  est le champ dipolaire créé par le moment  $\mu_i$  sur le site  $i$  où le facteur  $1/2$  est introduit afin de ne compter qu'une fois l'énergie de couplage entre les moments  $\mu_i$  et  $\mu_j$ . Si on sépare les sommes:

$$E_{\text{démagnétisant}} = -\frac{\mu_0}{2} \sum_i \mu_i \sum_j h_{ij} = -\frac{\mu_0}{2} M H_{\text{dém}} \quad (1.10)$$

L'expression du champ démagnétisant peut être écrite comme [8]:

$$\vec{H}_{\text{dém}} = -\hat{N} \cdot \vec{M} \quad (1.11)$$

où  $\hat{N}$  est le tenseur des coefficients démagnétisants. Il est sans dimension et dépend de la forme de l'échantillon. Dans le cas d'un ellipsoïde uniformément aimanté ( $\vec{H}_{\text{dém}}$  est uniforme aussi), le tenseur  $\hat{N}$  s'écrit sous la forme :

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

avec  $N_x + N_y + N_z = 1$  [1]

Dans le cas d'une couche ultra-mince où  $N_x = N_y = 0$  et  $N_z = 1$ ,  $\vec{H}_{\text{dém}}$  est perpendiculaire au plan de l'échantillon et l'énergie dipolaire s'écrit :

$$E_{\text{démagnétisant}} = -\frac{\mu_0}{2} M_z^2 \quad (1.13)$$

Cette expression d'énergie est aussi appelée anisotropie de forme. Elle favorise l'alignement de l'aimantation selon l'axe le plus long car le champ démagnétisant devient très grand aux faibles dimensions.

#### 1.2.2.4 Energie d'anisotropie

En l'absence d'un champ magnétique extérieur, l'aimantation du matériau ferromagnétique s'oriente suivant un axe préférentiel appelé axe facile de l'aimantation traduisant ainsi une certaine anisotropie magnétique. Il existe plusieurs types d'anisotropie provenant de différents mécanismes. On peut distinguer les anisotropies : magnétocristalline, de forme, de surface, de magnétostriction etc... L'énergie d'anisotropie se définit sous une forme générale par [9]:

$$E_{\text{anisotropie}} = \sum_{i,j,k} K_{i,j,k} \alpha_1^i \alpha_2^j \alpha_3^k \quad (1.14)$$

$K_{i,j,k}$  décrit les différentes constantes d'anisotropie, qui dépendent du matériau et de la température.  $\alpha_1^x, \alpha_2^y, \alpha_3^z$  sont les cosinus directeurs de l'aimantation. La connaissance de ces paramètres permet de représenter la contribution des différents types d'anisotropie. Dans le cadre de cette thèse, l'anisotropie magnétocristalline et l'anisotropie de surface sont les contributions principales à cette anisotropie magnétique et seront détaillées dans la suite du manuscrit.

#### 1.2.2.4.1 Anisotropie magnétocristalline

Cette anisotropie est due à la structure cristallographique de matériau. Elle est le résultat de l'interaction spin-orbite [10] qui traduit le couplage entre le moment orbital et le spin de l'électron dans le réseau cristallin.

Les moments magnétiques orbitaux des atomes magnétiques dans un solide possèdent une orientation préférentielle dans l'espace qui est déterminée par la structure cristallographique du matériau. D'un autre côté, grâce aux interactions spin-orbite, le moment magnétique de spin a aussi une orientation préférentielle comme l'orbitale. Et finalement, ce couplage permet d'aligner l'aimantation selon une orientation préférentielle due à la direction cristallographique.

*Cas de la symétrie cubique :*

Pour une symétrie cubique, comme le fer, l'énergie d'anisotropie magnétocristalline s'exprime sous la forme d'un polynôme développé selon les puissances paires des cosinus directeurs de l'aimantation :

$$E_{\text{mc}}^{\text{cub}} = K_1 (m_x^2 m_y^2 + m_y^2 m_z^2 + m_z^2 m_x^2) + K_2 m_x^2 m_y^2 m_z^2 \dots \quad (1.15)$$

Où  $m_x, m_y, m_z$  sont les composantes de l'aimantation normalisée (cosinus directeurs) se référant aux axes cubiques de réseau.  $K_1$  et  $K_2$  sont respectivement les constantes du premier et second ordre de l'anisotropie cubique (le troisième ordre et les ordres supérieurs sont généralement négligeables [1]). Dans la littérature, généralement l'unité CGS [ergs/cm<sup>3</sup>] s'utilise pour mesurer ces constantes mais peut se convertir facilement à l'unité SI [J/m<sup>3</sup>] en divisant par le facteur 10.

En symétrie cubique, il existe trois types d'axes à savoir :  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 110 \rangle$  et  $\langle 111 \rangle$ . Le matériau présente différents comportements magnétiques selon ces axes. La *figure 1.4* montre le cycle d'hystérésis du fer pour un champ magnétique appliqué selon les différents axes cris-

tallographiques. L'axe  $\langle 100 \rangle$  est l'axe facile puisqu'il présente l'aimantation rémanente la plus élevée par rapport aux autres axes.

*Cas de la symétrie uniaxiale :*

Dans certains cas, la structure cristalline du matériau peut conduire à la manifestation d'une anisotropie magnétocristalline uniaxiale dont l'énergie d'anisotropie, se présente sous la forme :

$$E_{\text{ani}} = -\frac{K_u}{M_s^2} (\vec{M} \cdot \vec{u})^2 \quad (1.16)$$

où  $K_u$  est la constante d'anisotropie uniaxiale et  $\vec{u}$  est le vecteur unitaire définissant la direction de l'axe de facile de cette anisotropie. Ce type d'anisotropie peut avoir d'autres causes que la symétrie cristallographique du système, telles que des effets de surface ou d'interface. Cette anisotropie peut par exemple avoir lieu dans les matériaux amorphes sous contrainte ou les matériaux isotropes recuits sous champs magnétique [11]. Dans le cas où cette constante d'anisotropie uniaxiale est positive, l'énergie devient minimale quand l'aimantation est parallèle à l'axe d'anisotropie (axe facile d'aimantation) et si elle est négative, l'aimantation se trouve dans un plan perpendiculaire à l'axe d'anisotropie comme nous l'avons présenté au paragraphe précédent.

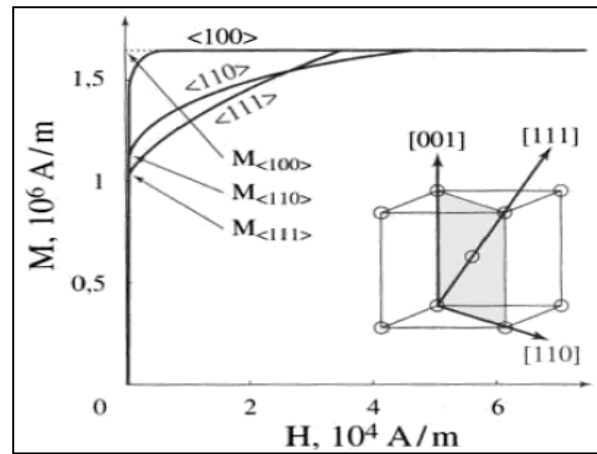


Figure 1.4 : Courbe d'aimantation du fer [11]

#### 1.2.2.4.2 Anisotropie de surface (d'interface)

Dans une couche ultramince ferromagnétique, l'énergie d'anisotropie (par unité de volume) peut s'écrire comme :

$$E_a = K^{\text{eff}} \sin^2 \theta \quad (1.17)$$

où  $\theta$  est l'angle entre l'aimantation et la normale au plan de la couche. Le terme d'anisotropie effective,  $K^{\text{eff}}$ , contient une constante d'anisotropie volumique,  $K_v^{\text{eff}}$  et une constante d'anisotropie de surface ou d'interface,  $K_s^{\text{eff}}$ .

$$K^{\text{eff}} = K_v^{\text{eff}} + \frac{2K_s^{\text{eff}}}{d} \quad (1.18)$$

où  $d$  est l'épaisseur des films et le facteur 2 signifie l'influence des deux interfaces de la couche magnétique. Le premier terme  $K_v^{eff}$  regroupe tous les termes d'anisotropie démagnétisante et magnétocristalline. La terme d'anisotropie de surface,  $K_s^{eff}$ , devient important dans les couches minces, puisque le nombre d'atomes de surface n'est plus négligeable en comparaison au nombre d'atomes en volume, et peut favoriser l'orientation de l'aimantation perpendiculairement à la couche.

La *figure 1.5* présente la dépendance en fonction de l'épaisseur de l'anisotropie magnétique des multicouches Co/Pd. L'intersection de la courbe avec l'axe vertical est égale à la quantité  $2K_s^{eff}$  et la pente à  $K_v^{eff}$ . Suivant la figure, à partir d'une épaisseur critique l'aimantation change de direction et en dessous de cette épaisseur l'aimantation bascule du plan de la couche vers la direction perpendiculaire à ce plan.

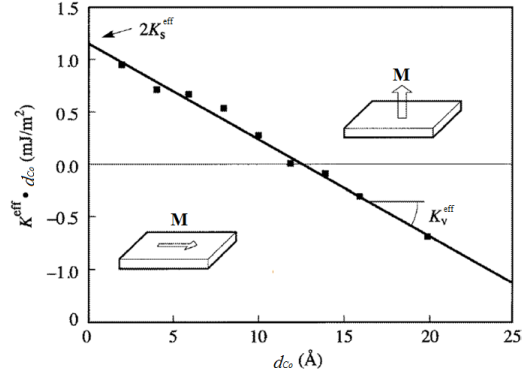


Figure 1.5 : La variation du terme de l'anisotropie de multicouche Co/Pd en fonction de l'épaisseur Co [12].

### 1.3 Dynamique de l'aimantation

La dynamique rapide de l'aimantation concerne la réponse des matériaux ferromagnétique aux champs magnétiques hyperfréquences. La différence essentielle de cette dynamique de l'aimantation par rapport aux phénomènes pseudo-statiques (habituellement dans la gamme de la milliseconde) est l'échelle de temps sur laquelle le système magnétique est perturbé par un stimulateur extérieur et, bien sûr, l'échelle de temps de l'observation de sa réponse (nanoseconde ou plus rapide). Cette thématique est devenue un sujet de grand intérêt à la fois pour la recherche fondamentale et les applications technologiques, en particulier avec les demandes croissantes relatives aux mémoires magnétiques (MRAM) à grande vitesse avec une densité de stockage élevée.

#### 1.3.1 Equation de Landau-Lifshitz-Gilbert

L'évolution spatio-temporelle de l'aimantation sous l'effet d'un champ magnétique effectif  $\vec{H}_{eff}$  est décrite par l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) [12], [13] donnée par :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma \vec{H}_{eff} \times \vec{M} + \frac{\alpha}{\|\vec{M}\|} \left( \frac{d\vec{M}}{dt} \times \vec{M} \right) \quad (1.19)$$



où  $\gamma = g \frac{e}{2m}$  est le rapport gyromagnétique,  $g$  est le facteur de Landé et  $\alpha$  est le coefficient phénoménologique d'amortissement.  $\vec{H}_{\text{eff}}$  comprend le champ appliqué  $\vec{H}$ , le champ d'anisotropie, le champ démagnétisant et le champ d'échange. Ce champ est relié à la densité totale d'énergie  $E$  du système par la relation  $\vec{H}_{\text{eff}} = \frac{\partial E}{\partial \vec{M}}$  (dans le cas d'une aimantation homogène).

Cette équation décrit le mouvement précessionnel amorti de l'aimantation autour du champ effectif (cf. *Figure 1.6*). Le premier terme de cette équation représente le couple qu'exerce le champ magnétique effectif sur l'aimantation et décrit la précession de l'aimantation autour de  $\vec{H}_{\text{eff}}$  (cf. *Figure 1.6(a)*). Ce mouvement précessionnel, est caractérisé par sa fréquence égale approximativement à  $\gamma H_{\text{eff}}/2\pi$  (dans le cas de faibles angles de précession). Quant au second terme, qui décrit le temps de mise à l'équilibre, en cas de faible excitation et qui est caractérisé par sa fréquence de relaxation ( $\gamma\alpha H_{\text{eff}}/2\pi$ ), il traduit l'amortissement de la précession qui est responsable de la relaxation et du réalignement de l'aimantation avec le champ effectif (cf. *Figure 1.6(b)*). Il apparaît que la précession est au moins 10 fois plus rapide que la relaxation. En l'absence d'amortissement, l'aimantation précesse indéfiniment autour de  $\vec{H}_{\text{eff}}$  et ne s'aligne jamais avec le champ  $\vec{H}_{\text{eff}}$ .

L'équation LLG est une équation différentielle non linéaire du second ordre (dans l'espace) qui décrit la distribution statique de l'aimantation ainsi que sa dynamique. Cette dynamique met en évidence les excitations, à larges ou à faibles angles, de l'aimantation de sa position d'équilibre. Les solutions analytiques de l'équation LLG n'existent que pour certains cas simples où l'aimantation est uniforme.

En général,  $\vec{M}$  et  $\vec{H}_{\text{eff}}$  sont spatialement inhomogènes et l'équation LLG doit être résolue numériquement. Dans le cas des couches minces douces, l'aimantation peut être supposée homogène dans la totalité de l'échantillon et, en négligeant l'amortissement, l'équation LLG peut être résolue uniquement dans une approximation macrospin.

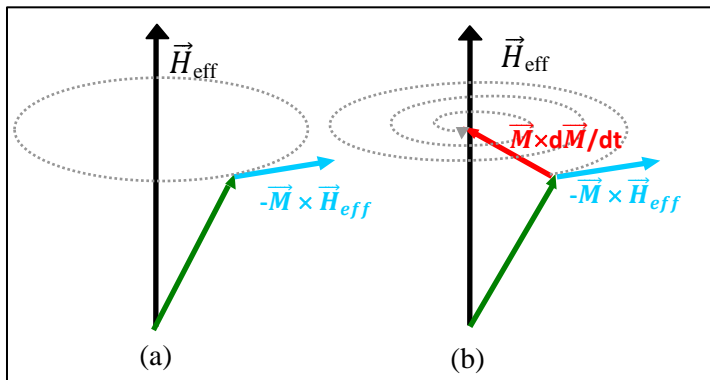


Figure 1.6: (a) Illustration de l'équation Landau-Lifshitz sans tenir compte de l'amortissement :  $\vec{M}$  tourne à rayon (angle) constant autour de  $\vec{H}_{\text{eff}}$ . (b) Le terme d'amortissement de Gilbert conduit à une composante supplémentaire alignant  $\vec{M}$  dans la direction de  $\vec{H}_{\text{eff}}$  sur un trajet en spirale.

## 1.4 Excitations magnétiques

A l'équilibre, l'aimantation dans un matériau ferromagnétique s'aligne sur le champ effectif. Lorsque cet équilibre est perturbé, l'aimantation entame un mouvement de précession spiral autour de la direction d'équilibre pour finir par s'aligner sur le champ effectif. Dans le cas où les spins précessent en phase avec la même fréquence, ce mouvement est communément désigné comme le mode uniforme (cf. *Figure 1.7(a)*). Des excitations non uniformes, caractérisées par une aimantation  $\vec{M}$  dépendant de la position et du temps peuvent avoir lieu. Ceci peut se produire, par exemple, si la phase ou l'amplitude du champ microonde excitant varie d'un point à l'autre de l'échantillon. Dans un tel cas, les moments locaux ne sont plus parallèles à l'intérieur de l'échantillon, et les couples de rappel dus à l'interaction d'échange et aux interactions dipolaires magnétiques doivent être inclus dans l'analyse. Ces excitations non uniformes où les spins voisins précessent avec la même fréquence mais avec des phases différentes se traduisent par la propagation de l'excitation magnétique, qui est appelée onde de spin (cf. *Figure 1.7(b)*).

L'investigation de ces excitations magnétiques dans les couches minces ferromagnétiques peut nous fournir certaines informations essentielles telles que l'anisotropie de surface et les effets d'interface qui pourraient être cruciaux dans le développement de dispositifs magnétiques. De plus, l'excitation des ondes de spin constitue un moyen puissant d'étude des propriétés dynamiques des milieux magnétiques en général, et en particulier des couches minces et des nanostructures ferromagnétiques. En effet, à partir des mesures d'ondes de spin, les informations de base sur les propriétés magnétiques, telles que les anisotropies magnétiques, ou encore le couplage intercouches peuvent être obtenues. Ces informations sont souvent plus ou moins difficiles à obtenir par d'autres méthodes.

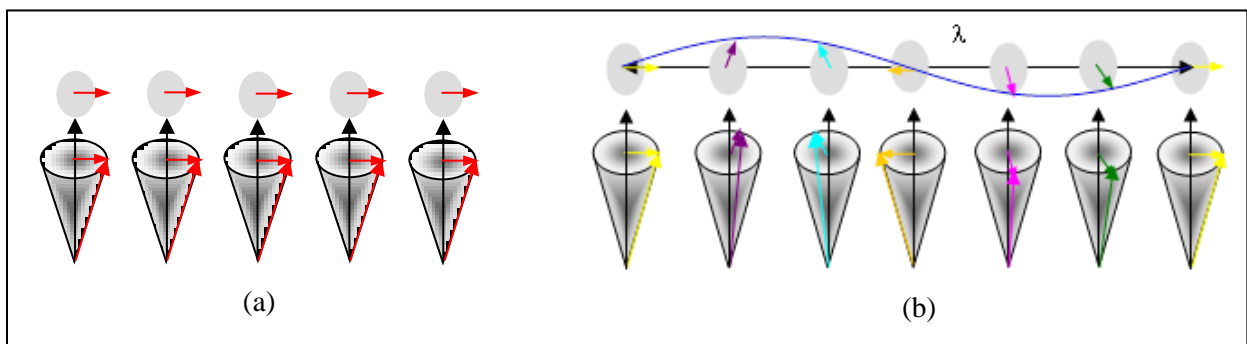


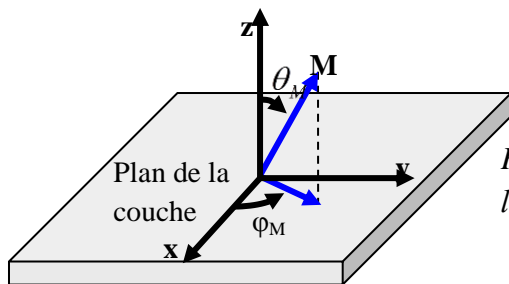
Figure 1.7 : (a) Mode uniforme et (b) ondes de spin dans une couche ferromagnétique

### 1.4.1 Mode uniforme

Dans un échantillon où l'aimantation et le champ interne sont homogènes, le mode uniforme est excité grâce, par exemple, à l'application d'un champ radiofréquence ( $h_{rf}$ ). Ce mode se manifeste par une répartition homogène des moments dynamiques, tous les spins précessant en phase (cf. *Figure 1.7(a)*). Cette situation se produit par exemple pour les couches de dimensions plus petites que l'épaisseur de peau. La fréquence de ce mode uniforme est déterminée par le champ effectif et peut être obtenue à partir de l'expression de la densité d'énergie totale magnétique ( $E$ ) de système. Cette fréquence s'exprime, d'une façon très simple (en négligeant le coefficient d'amortissement: équation 1.19) en fonction des dérivées secondes de la densité d'énergie  $E$  par rapport à  $\theta_M$  et à  $\varphi_M$  qui représentent respectivement l'angle entre l'aimantation  $\vec{M}$  et la normale à la couche et l'angle entre la projection de l'aimantation dans le plan de la couche et un des axe de ce plan [14], [15] comme illustré sur la *figure 1.8*.

$$F_r^2 = \left(\frac{\gamma}{2\pi}\right)^2 \frac{1}{M_s^2 \sin^2 \theta_M} \left[ \frac{\partial^2 E}{\partial \theta_M^2} \frac{\partial^2 E}{\partial \varphi_M^2} - \left( \frac{\partial^2 E}{\partial \theta_M \partial \varphi_M} \right)^2 \right] \quad (1.20)$$

L'équation 1.20 doit être évaluée à l'équilibre de l'aimantation. Les positions d'équilibre sont les valeurs de  $\varphi_M$  et de  $\theta_M$  qui minimisent la densité d'énergie totale du système.



*Figure 1.8 : Système de coordonnées utilisé pour l'expression de la fréquence de résonance*

### 1.4.2 Les ondes de spins

Dans la section précédente, nous n'avons discuté que le mode uniforme en supposant que tous les spins précessent en phase. En réalité, les diverses conditions telles qu'un champ non uniforme ou un défaut sur l'échantillon peuvent donner lieu aux *ondes de spins*.

Les ondes de spin sont des excitations collectives des spins de la couche ferromagnétique autour de la direction d'équilibre de l'aimantation comme le montre la *figure 1.7(b)*. Dans le cas où la longueur d'onde ( $\lambda$ ) de ces ondes de spin est petite, elles sont déterminées par l'interaction d'échange qui tend à uniformiser la direction de l'aimantation sur quelques

distances atomiques. Si  $\lambda$  est très grande, il s'agit du cas de l'interaction dipolaire à longue portée.

Pour cela, les ondes de spin sont classées en deux types de modes principaux : les modes d'échange et les modes dipolaires. La propagation des ondes de spin est une solution propre de l'équation LLG. On définit une relation de dispersion qui lie la pulsation de l'onde ( $\omega=2\pi f$ ) à son vecteur d'onde ( $k=\frac{2\pi}{\lambda}$ ). Afin de déterminer la relation de dispersion des ondes de spin, l'équation LLG doit être résolue avec les équations de Maxwell dans l'approximation magnétostatique [16].

#### 1.4.2.1 Régime Magnétostatique :

Les ondes de spin peuvent être traitées dans le cadre des ondes électromagnétiques car elles représentent des oscillations de l'aimantation locale. Dans le cas où le vecteur d'onde est nul, on parle du mode uniforme où tous les spins de la couche précessent en phase autour du champ effectif. Lorsque le vecteur d'ondes est non-nul, on parle de mode non-uniforme. Dans ce cas, nous devons répondre à la question de la relation de dispersion : les conditions de continuité de Maxwell pour les ondes électromagnétiques doivent être utilisées. Le terme d'ondes de spin a été introduit pour la première fois par Bloch [17] et l'amplitude de l'excitation d'ondes de spin se présente sous la forme :

$$A(\vec{r})=\exp(i\vec{k}\vec{r}) U_k\vec{r} \quad (1.21)$$

où «  $U_k$  » est une fonction périodique qui dépend de la périodicité du cristal. Cette équation nous permet de chercher des solutions aux équations de Maxwell sous la forme  $e^{i(\vec{k}\cdot\vec{r}-\omega t)}$ .

Les équations de Maxwell s'utilisent pour relier les variables magnétiques aux variables électriques. Ces équations sont données par:

$$\vec{\nabla}\cdot\vec{B}=0 \quad (1.22)$$

$$\vec{\nabla}\cdot\vec{D}=\rho \quad (1.23)$$

$$\vec{\nabla}\times\vec{H}=\frac{\partial\vec{D}}{\partial t}+\vec{j} \quad (1.24)$$

$$\vec{\nabla}\times\vec{E}=-\frac{\partial\vec{B}}{\partial t} \quad (1.25)$$

où  $\vec{B}$  signifie le champ d'induction magnétique et il s'exprime par  $\vec{B} = \mu_0(1 + \chi)\vec{H}_{\text{eff}}$  d'où  $\chi$  est la susceptibilité magnétique.  $\vec{D}$  est le champ de déplacement électrique,  $\vec{j}$  est la densité de courant électrique et  $\rho$  est la densité de charge électrique. On peut relier  $\vec{D}$  et  $\vec{j}$  au champ électrique  $\vec{E}$  :

$$\vec{D} = \epsilon \vec{E} \quad (1.26)$$

$$\vec{j} = \sigma \vec{E} \quad (1.27)$$

ici le terme  $\epsilon$  est la permittivité et  $\sigma$  représente la conductivité. Dans le régime magnétostatique, nous supposons que nous négligeons les courants associés aux fluctuations de champ, c'est-à-dire les variables électriques et magnétiques se séparent complètement entre elles et l'équation 1.24 s'écrit *via* les termes représentant les parties dynamique des variables telle que :

$$\vec{\nabla} \times \vec{h}_{\text{eff}} = 0 \quad (1.28)$$

Ce rotationnel permet d'introduire la potentiel magnétostatique  $\psi$  comme  $\vec{H}_{\text{eff}} = -\vec{\nabla}\psi$  qui nous permet déduire l'équation de Walker [18]:

$$(1+\chi) \left[ \frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \psi}{\partial y^2} \right] + \frac{\partial^2 \psi}{\partial z^2} = 0 \quad (1.29)$$

Cette équation 1.29 est une équation basique pour les ondes magnétostatiques. Pour atteindre la relation de dispersion, nous supposons pour la propagation des ondes planes uniformes telles que :  $\psi \propto e^{-i\vec{k} \cdot \vec{r}}$  ( $\vec{k}$  est le vecteur d'onde) et finalement l'équation 1.29 devient :

$$(1+\chi)(k_x^2 + k_y^2) + k_z^2 = 0 \quad (1.30)$$

L'équation 1.30 relie donc le vecteur d'onde à la fréquence (car la susceptibilité ( $\chi$ ) couvre aussi la fréquence). Maintenant nous allons nous intéresser aux différents modes magnétostatiques dans une géométrie d'une couche mince.

Dans une couche mince, les modes magnétostatiques sont déterminés par rapport à l'angle entre l'aimantation et la composante planaire de vecteur d'onde ( $\vec{k}_{\parallel}$ ) et par rapport à l'orientation de l'aimantation de la couche comme le représente la *figure 1.9* Dans ce cas, nous négligeons l'interaction d'échange et le terme d'anisotropie et par conséquent, la direction de l'aimantation est déterminée par le champ magnétique appliqué.

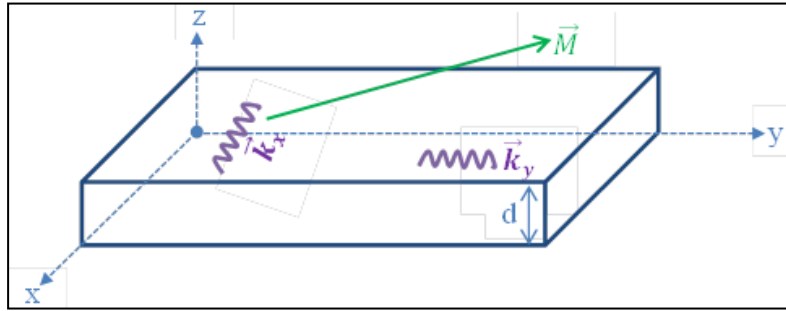


Figure 1.9 : Le positionnement de l'aimantation et le vecteur d'onde planaire dans une couche mince

Si la couche est aimantée perpendiculairement au plan, les modes magnétiques sont appelés *Magnetostatic Forward Volume Waves* (MSFVW) (cf. Figure 1.10). Les charges surfaciques jouent un rôle important dans la propagation des ondes de spins dans les couches minces. Quand le vecteur d'onde est parallèle à la direction de l'aimantation, qui, à l'équilibre est dans le plan de l'échantillon, seules les charges surfaciques contribuent à l'énergie dipolaire. Ces modes sont appelés *MagnetoStatic Backward Volume Wave* (MSBVW) (cf. Figure 1.10). Si l'aimantation et le vecteur d'onde sont dans le plan de la couche et sont perpendiculaire entre eux, ces modes sont dits ondes magnétostatiques de surface (MSSW pour MagnetoStatic Surface Wave) (cf. Figure 1.10).

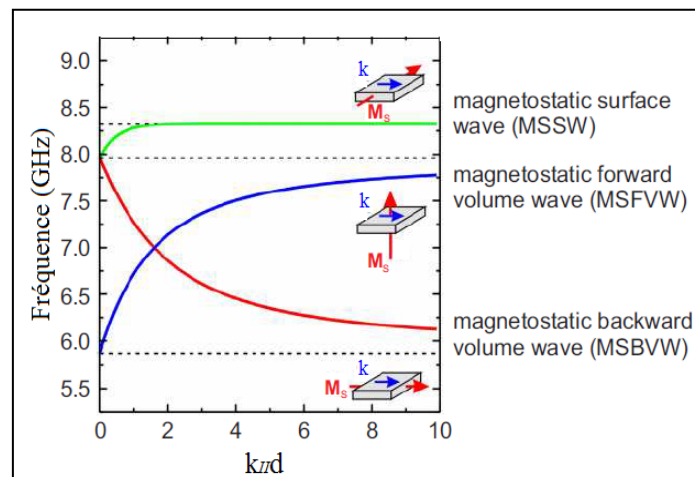


Figure 1.10 : La typologie des mode d'ondes de spin en fonction de l'aimantation et le vecteur d'onde planaire [19]

Le calcul des ondes magnétostatiques a été réalisé en 1961 par Damon et Eshbach et c'est pour cela qu'on appelle ce type de modes : mode de Damon-Eshbach (DE) [16]. La relation de dispersion de ce mode s'exprime, dans l'approximation dipolaire et en négligeant l'anisotropie, par [19]:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)_{DE}^2 = H(H+4\pi M_s) + (2\pi M_s)^2 (1-e^{-2k_{\perp}d}) \quad (1.31)$$

où  $d$  est l'épaisseur de la couche. En plus du mode DE, il existe une autre famille de modes magnétostatiques, appelés modes stationnaires (en anglais perpendiculaire standing spin waves, PSSW) constitués par la superposition d'ondes de spins perpendiculaires au plan du film se propageant dans deux directions opposées. Ces modes dépendent de l'interaction d'échange et possèdent un vecteur d'onde  $k_{\perp} = \frac{p\pi}{d}$  où  $p$  est un entier traduisant le nombre de quantification. Leur fréquence est décrite par [19]:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)_{PSSW}^2 = \left(H + \frac{2A_{\text{éch}}}{M_s} k_{\parallel}^2 + \frac{2A_{\text{éch}}}{M_s} \left(\frac{p\pi}{d}\right)^2\right) \times \left(H + \left[\frac{2A_{\text{éch}}}{M_s} + H \left(\frac{4\pi M_s/H}{p\pi/d}\right)^2\right] k_{\parallel}^2 + \frac{2A_{\text{éch}}}{M_s} \left(\frac{p\pi}{d}\right)^2 + 4\pi M_s\right) \quad (1.32)$$

Dans la *figure 1.11* nous pouvons voir la propagation des PSSW (pour  $p=0, 1$  et  $2$ ) dans une couche mince :

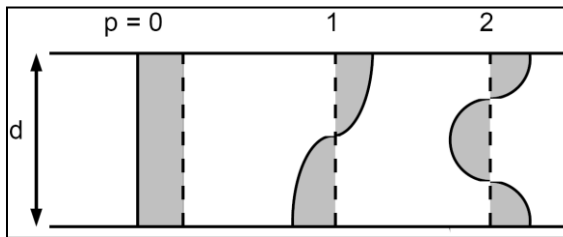


Figure 1.11 : Le schéma de PSSW pour différents ordres

## 1.5 Techniques expérimentales de la dynamique de l'aimantation

Historiquement, les premières investigations de la dynamique de l'aimantation ont été entreprises depuis la fin du 19<sup>ème</sup> siècle. Les premières techniques étaient consacrées aux études du renversement de l'aimantation et étaient adaptées à des mesures de constantes de temps de quelques secondes à quelques heures. L'une de ces techniques, le traînage magnétique, a été proposé par Rayleigh [20] et Ewing [21]. Au milieu du 20<sup>ème</sup> siècle, les échelles de temps sont devenues plus courtes :  $10^{-7}$ - $10^{-12}$  s. Par exemple, en 1957, les études du renversement de l'aimantation des composés d'oxyde de fer ont été réalisées par Gyorgy [22] en utilisant des impulsions sub-microsecondes. Aujourd'hui, grâce aux méthodes magnéto-optiques, nous pouvons étudier à des échelles de temps sub-picosecondes la relaxation magnétique des systèmes porté hors équilibre en utilisant des impulsions laser femtoseconde.

Au cours des 20 dernières années les recherches sur la dynamique de l'aimantation ont particulièrement concerné les matériaux magnétiques nanostructurés en raison du grand besoin d'une haute densité de stockage des données et la nécessité des très courts temps d'accès. Nous pouvons donc classer cette dynamique d'aimantation en deux familles regardant leur

temps caractéristique: rapide et ultra-rapide. Ce temps dépend du type d'excitation, de paramètre des matériaux et aussi des dimensions du système magnétique.

La dynamique rapide apparaît sur une échelle de temps d'environ une nanoseconde à 100 picosecondes. Le processus de dynamique ultra-rapide se produit sur une échelle de temps de sub-picosecondes. Le retournement de l'aimantation dans les couches minces de quelques nanomètres d'épaisseur peut être considéré comme un exemple du processus rapide de l'aimantation. Toutes les méthodes même rapides et ultra-rapides sont basées sur la technique pompe-sonde qui permet d'atteindre une résolution fonction de la durée des impulsions considérées. C'est-à-dire, il s'agit d'une mesure de la dynamique de l'aimantation du délai entre une impulsion intense (pompe) et une impulsion peu intense (sonde). En principe, la pompe porte le système d'étude hors d'équilibre. Après un retard temporel, la sonde de faible intensité arrive pour perturber faiblement le système. L'intensité transmise ou bien réfléchiée peut être mesurée après la transmission ou réflexion de l'échantillon. Les impulsions utilisées peuvent être un champ magnétique ou bien un faisceau optique.

Il existe différentes méthodes pour étudier la dynamique de l'aimantation et peuvent être classés en domaine temporelle et en domaine fréquentielle.

### **1.5.1 Techniques temporelles**

Ces techniques mesurent la réponse temporelle de l'aimantation suite à une excitation extérieure. Dans l'étude de la dynamique rapide de l'aimantation des matériaux magnétiques par les techniques temporelles, l'excitation de l'aimantation se fait soit par une impulsion laser ultracourte (femtoseconde) soit à l'aide d'une impulsion du champ magnétique ultracourte. Ce genre des mesures appartient aux techniques pompe-sonde dans lesquelles la pompe désigne l'excitation de l'échantillon et la sonde mesure la variation de l'aimantation. La résolution temporelle est obtenue par le délai entre la pompe et la sonde.

L'une des principales techniques en domaine temporel est l'effet Kerr résolu en temps (TR-MOKE) qui permet de mesurer la dynamique de l'aimantation en trois dimensions [23]. Grâce aux hautes résolutions temporelle et spatiale, cette technique offre une bonne sensibilité et reproductivité. D'un autre côté, nous trouvons les techniques de mesure par induction dans le domaine temporel qui se basent sur la loi de Faraday, telle que la magnétométrie inductive microonde par impulsion PIMM [24] (en anglais Pulsed inductive microwave magnetometer). Les premières mesures ont été réalisées par Dietrich dans les années 1960[25]. Il a observé les oscillations de l'aimantation (en période de quelques nanosecondes) en appli-



quant des impulsions de champ magnétique sur les couches de permalloy. Compte tenu du développement des sources de radiation synchrotron, le dichroïsme circulaire magnétique des rayons X (XMCD) [26] permet l'accès direct aux moments orbital et de spin des électrons. Une autre technique temporelle est la microscopie par émission des photoélectrons (PEEM) [27] qui est constituée par la combinaison de la technique XMCD et l'imagerie de rayons X. Elle réunit les fonctions de la sélectivité chimique, de la résolution temporelle subnanoseconde et de la résolution spatiale à l'échelle du nanomètre [27].

Il existe aussi des techniques utilisant les propriétés de magnéto-transport. Ces techniques sont principalement basées sur des mesures magnétorésistives. Elles ont beaucoup gagné en sensibilité après la découverte de la magnétorésistance géante (GMR) et de la magnétorésistance tunnel (TMR). La dynamique de l'aimantation de la structure est obtenue par la simple mesure, en temps réel, de la variation de résistance liée à la dynamique de la couche libre. Contrairement aux méthodes magnéto-optiques, la résolution latérale lors des mesures par magnéto-transport ne peut être obtenue que par la structuration physique de petits éléments, au prix d'une ou plusieurs étapes de lithographie et de gravure. Le rapport signal sur bruit est aussi amélioré du fait des forts rapports de magnétorésistance. Ces techniques permettent aussi des mesures temps réel en mode 'single shot'. Cette technique a été utilisée pour étudier le retournement précessionnel de l'aimantation dans des couches ferromagnétiques douces [28]. Récemment, elle a été utilisée aussi pour étudier le retournement d'aimantation par injection de courant polarisé en spin [29].

### **1.5.2 Techniques en domaine fréquentielle**

Ces techniques consistent à mesurer la fréquence de la précession de l'aimantation basée sur le principe spectroscopique.

Dans la suite, je ne détaillerai que les techniques de résonance ferromagnétique (FMR) et de diffusion Brillouin de la lumière (BLS) que j'ai utilisées lors des différentes études présentées dans ce mémoire. Ces techniques complémentaires sont utilisées pour étudier la dynamique, à faible amplitude, des matériaux magnétiques afin d'obtenir le spectre des excitations magnétiques.

#### **1.5.2.1 Résonance ferromagnétique**

La résonance ferromagnétique a été observée expérimentalement pour la première fois par Griffiths [30] lors de la mesure de la variation du facteur de qualité d'une cavité contenant un matériau ferromagnétique sur sa paroi. La théorie de ce phénomène de résonance a été développée par Kittel [31]. Depuis, une immense quantité de travaux a été publiée décrivant

la FMR dans différentes géométries et pour plusieurs types de matériaux. Cette technique a été utilisée pour obtenir des informations quantitatives sur le rapport gyromagnétique, l'anisotropie magnétique et les différents canaux de relaxation de l'aimantation et de dissipation d'énergie dans les matériaux massifs. La FMR peut être considérée aujourd'hui comme l'une des techniques les plus efficaces pour l'étude des ondes de spin dans les matériaux magnétiques et les mieux étayées par une base théorique solide pour l'interprétation des spectres expérimentaux.

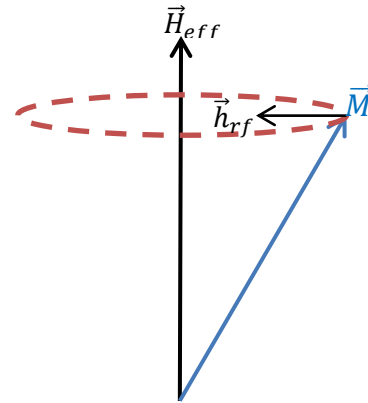


Figure 1.12 : L'excitation de l'aimantation par un petit champ

Le principe général de ces techniques FMR est d'utiliser un petit champ microondes ( $h_{rf}$ ) à une fréquence donnée pour exciter l'aimantation qui se met à précesser autour du champ effectif (cf. Figure 1.12). En même temps, un champ magnétique statique est appliqué parallèlement (pompage parallèle) ou perpendiculairement à  $h_{rf}$  (pompage perpendiculaire) permettant de changer la fréquence de précession. Lorsque la fréquence de précession coïncide avec la fréquence microondes, l'échantillon subit une résonance FMR qui se traduit par de fortes pertes que l'on mesure. La résonance est atteinte soit en faisant varier le champ magnétique statique tout en gardant la fréquence fixe (balayage en champ) soit en fixant le champ statique tout en variant la fréquence du champ radiofréquence  $h_{rf}$  (balayage en fréquence). Cette technique FMR mesure les propriétés magnétiques moyennes d'un échantillon de taille millimétrique ou plus grande.

Il existe 2 types de FMR : FMR classique (en cavité) et FMR large bande. La FMR en cavité a l'avantage d'une grande sensibilité permettant de mesurer des couches minces dont l'épaisseur est de l'ordre du nanomètre. Cependant, cette technique fonctionne à fréquence fixe (balayage en champ) en limitant les études en fonction de la fréquence. De plus, cette technique n'est pas applicable pour l'investigation des éléments magnétiques présentant une configuration complexe en domaines, car le balayage en champ statique modifie et altère la configuration de l'aimantation et, par conséquent, la condition de résonance lors de la mesure. Pour pallier à cet inconvénient, la FMR large bande à balayage en fréquence, telle que la FMR avec analyseur de réseau [32], [33] (VNA-FMR) et en ligne microruban (MS-FMR) [34], [35], [36], [37] ont été développées.

### 1.5.2.2 La spectroscopie Brillouin (BLS)

Dans le domaine fréquentiel, il existe une méthode optique dite « diffusion Brillouin de la lumière (Brillouin light scattering, BLS)», qui permet l'étude de la dynamique de l'aimantation. Cette technique détecte la diffusion inélastique de la lumière par les ondes de spin [19]. Elle possède une haute capacité pour étudier les ondes de spins de faibles amplitudes excitées thermiquement. La BLS peut nous aider à avoir des informations telles que l'anisotropie magnétique, l'interaction d'échange intercouches [38] ou bien le couplage magnétoélastique dans les matériaux magnétique [37], etc...

La spectroscopie Brillouin est une technique de diffusion inélastique de la lumière par les ondes de spin. Les processus de diffusion inélastique introduisent un décalage de fréquence associé à une modification de l'énergie. On distingue la création ou l'annihilation d'une excitation élémentaire : processus Stokes ou anti-Stokes. Dans le cas du processus Stokes (anti-Stokes), la fréquence de l'onde diffusée est inférieure (supérieure) à la fréquence de l'onde incidente. Ces processus sont régis par les lois de conservation de l'énergie et même aussi de l'impulsion, c.-à-d. du vecteur d'onde.

Les relations de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement entre la lumière incidente ( $i$ ), la lumière diffusée ( $d$ ) et les magnons de l'onde de spin sont :

$$\omega = \pm(\omega_i - \omega_d) \quad (1.33)$$

$$\vec{k} = \pm(\vec{k}_i - \vec{k}_d) \quad (1.34)$$

$(\omega_i, \vec{k}_i)$  et  $(\omega_d, \vec{k}_d)$  représentent respectivement la pulsation et le vecteur d'onde de la lumière incidente et diffusée,  $(\omega, \vec{k})$  la pulsation et le vecteur d'onde du magnon.

Durant le processus de diffusion de la lumière par une couche mince qui est régi par le couplage magnéto-optique : la polarisation électrique produite par le champ électrique incident et la permittivité électrique dépendent de la direction de l'aimantation. Une excitation magnétique caractérisée par l'amplitude de l'aimantation dynamique est :

$$\vec{m} \cos(\vec{k}\vec{r} - \omega t) \quad (1.35)$$

la variation de permittivité se détermine par :

$$\delta\varepsilon(\vec{m} \cos(\vec{k}\vec{r} - \omega t)) \quad (1.36)$$

et le champ électrique de l'onde électromagnétique incidente s'écrit sous la forme :

$$\vec{E}^I \cos(\vec{k}_i \vec{r} - \omega_i t) \quad (1.37)$$

Finalement le terme de polarisation s'exprime par :

$$\delta \vec{P} = \delta \varepsilon(\vec{m}) \vec{E}^I \cos(\vec{k} \vec{r} - \omega t) \cos(\vec{k}_i \vec{r} - \omega_i t) \quad (1.38)$$

Le dernier terme constitue la base du champ électromagnétique diffusé :

$$\vec{E}_d = \vec{E}_{AS} \cos(\vec{k} + \vec{k}_i) \vec{r} - (\omega + \omega_i) t + \vec{E}_S \cos(-\vec{k} + \vec{k}_i) \vec{r} - (\omega - \omega_i) t \quad (1.39)$$

Le premier terme représente le processus anti-Stokes et le deuxième terme est le processus Stokes.

Finalement on trouve :

$$\vec{k}_d = \vec{k} + \vec{k}_i : \text{Processus anti-Stokes} \quad (1.40)$$

$$\vec{k}_d = -\vec{k} + \vec{k}_i : \text{Processus Stokes} \quad (1.41)$$

#### 1.5.2.2.1 Différentes géométrie des ondes de spin sondées par spectroscopie Brillouin

Trois géométries sont usuellement utilisées pour étudier les ondes de spin dans un matériau magnétique : La géométrie de Damon Eschbach (DE), rétrograde (BW) et perpendiculaire (cf. *Figure 1.13*). La géométrie DE en BLS (cf. *Figure 1.13(a)*) consiste à appliquer un champ parallèle au plan de la couche magnétique et perpendiculaire à la composante planaire de vecteur d'onde,  $\vec{k}_{||}$ . On observe essentiellement le mode de surface (DE) et des modes de volume (PSSW) pour les couches assez épaisses ; les intensités Stokes et anti-Stokes sont souvent asymétriques pour le mode DE.

Dans le cas de la géométrie BW (cf. *Figure 1.13(b)*), le champ est appliqué dans le plan de la couche et parallèlement à  $\vec{k}_{||}$ . Enfin, si le champ magnétique est perpendiculaire au plan de l'échantillon, cette géométrie est appelée géométrie perpendiculaire (cf. *Figure 1.13(c)*). Nous pouvons observer essentiellement le mode de volume BW et les modes stationnaires dans l'épaisseur. Les spectres Stokes et anti-Stokes sont symétriques.

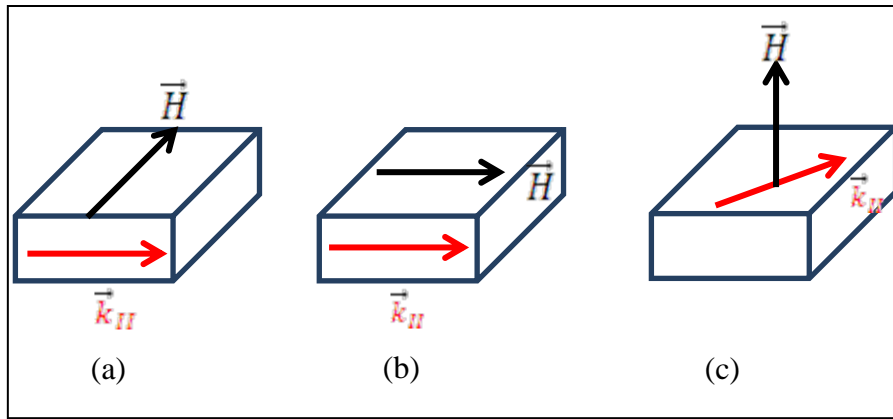


Figure 1.13: Les différentes géométries BLS des ondes de spins : (a) DE, (b) BW, (c) perpendiculaire

### 1.5.3 Comparaison entre FMR et BLS

Dans ce travail de thèse nous avons choisi de travailler essentiellement avec les techniques FMR et BLS. Ce sont des techniques complémentaires qui permettent de réaliser une caractérisation magnétique assez complète. Cependant la FMR possède de nombreux avantages par rapport à la BLS. La FMR peut être considérée aujourd'hui comme l'une des techniques les plus efficaces pour l'étude des ondes de spin dans les matériaux magnétiques et les mieux étayées par une base théorique solide pour l'interprétation des spectres expérimentaux. Elle possède de nombreux avantages par rapport à la BLS. En effet, la FMR offre une très grande précision dans la détermination des positions des pics de résonance qui se traduit par une résolution beaucoup plus élevée dans la détermination des fréquences propres du système étudié. De plus, dans une expérience FMR il est plus facile d'étudier les structures à aimantation planaire avec un champ appliqué sous un certain angle par rapport au plan du système et, en particulier, perpendiculairement au plan des nanostructures. Les mesures BLS sont complémentaires aux expériences FMR. Un des principaux avantages de la BLS par rapport à la FMR réside dans la focalisation du rayonnement lumineux utilisé qui permet des mesures locales avec une résolution spatiale de l'ordre de 30 micromètres. Ceci est très utile pour l'étude des microstructures magnétiques (structures en escalier par exemple) et des ondes de spin localisées dans les couches minces ferromagnétiques. Un autre avantage de la BLS est sa gamme de fréquences mesurées largement supérieure à celle de la FMR.

### 1.6 Mécanismes de relaxation de l'aimantation

Le terme dissipatif de l'équation LLG (section 1.3.1), responsable de la relaxation progressive de l'aimantation pour atteindre l'équilibre statique vers la direction du champ

effectif, résulte de la contribution de divers mécanismes que l'on peut classer en contributions intrinsèques et extrinsèques.

Ces différents mécanismes sont schématisés dans la *figure 1.14*. Le processus de relaxation spin-spin redistribue l'énergie entre les différents modes (mode uniforme et les ondes de spin) du système magnétique. L'autre processus est la relaxation spin-réseau qui transfère l'énergie directement au réseau. Généralement, ce transfert d'énergie provient d'un résultat de création d'un phonon et qui est irréversible.

Par rapport à la réversibilité de ces relaxations, nous avons divisé les mécanismes d'amortissement en deux : les mécanismes intrinsèques (irréversibles) qui proviennent de la relaxation spin-réseau et les mécanismes extrinsèques (réversibles) qui proviennent de la relaxation spin-spin (par exemple la diffusion de deux magnons).

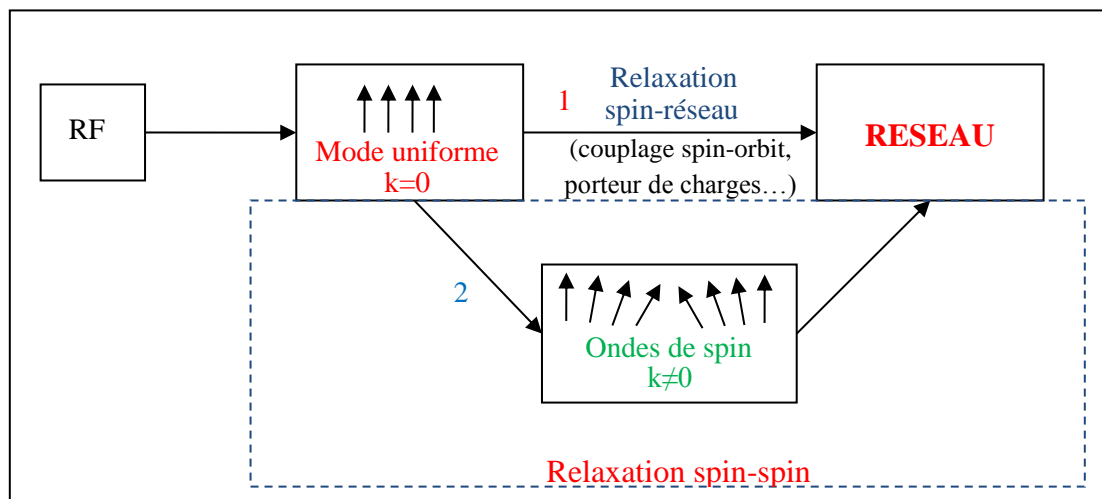


Figure 1.14 : Schéma de mécanisme de relaxation de l'aimantation[39], d'où *rf* signifie le champ magnétique excitant

La technique FMR est une technique plus efficace pour l'étude des mécanismes de relaxation en analysant sa largeur de raie des spectres. Durant ce travail de thèse nous avons utilisé cette technique pour comprendre ces mécanismes.

### 1.6.1 Mécanismes intrinsèques (ou Gilbert)

Il existe plusieurs mécanismes responsables de l'amortissement de Gilbert mais nous n'allons détailler que les plus importants.

*Le mécanisme de relaxation intrinsèque par la diffusion des électrons de conduction itinérants par les phonons et magnons:* Ce mécanisme de relaxation peut être expliqué par le terme de collision de trois particules[40] qui est une collision entre un magnon et un électron

itinérant de la bande majoritaire pour créer un électron dans une bande minoritaire afin de conserver le spin total. Le mécanisme de diffusion cohérente n'admet pas dans relaxation intrinsèque mais la diffusion incohérente constitue l'origine de la relaxation de l'aimantation.

Le mécanisme intrinsèque dans les matériaux ferromagnétiques–métalliques a été présenté par Kambersky [41] en utilisant l'interaction spin-orbite. Son modèle était basé sur l'observation de changement de la surface de Fermi par rapport à la direction de l'aimantation. Dans un matériau ferromagnétique, la précession uniforme provient de la variation périodique de la surface de Fermi qui est due au couplage spin-orbite. L'adaptation des électrons itinérants à la surface de Fermi est un processus dissipatif car il s'agit d'un déphasage entre la précession de l'aimantation et la variation périodique de la surface de Fermi. La repopulation de surface de Fermi induit une relaxation de l'aimantation.

*Le mécanisme de relaxation intrinsèque par l'intermédiaire des courants de Foucault :* La précession de l'aimantation induit un courant de Foucault et sa dissipation est proportionnelle à la conductivité du matériau. Si on applique un champ, les électrons de conduction se mettent en mouvement afin de créer un champ électromagnétique s'opposant au champ appliqué : ce phénomène s'appelle «courant de Foucault ». Il ne laisse passer que les ondes électromagnétiques sur une distance, dite épaisseur de peau :

$$\delta_0 = \sqrt{\frac{2}{\omega\mu\sigma}} \quad (1.42)$$

Où  $\mu$  est la perméabilité et  $\sigma$  est la conductivité du matériau. Pour une couche qui est plus fine que l'épaisseur de peau, l'équation de mouvement peut être évaluée en intégrant les équations de Maxwell et on peut décrire le terme de dissipation par le terme de Gilbert qui provient des courants de Foucault [42]:

$$\alpha_{\text{eddy}} = \frac{1}{6} M_s \gamma \left(\frac{4\pi}{c}\right)^2 \sigma d^2 \quad (1.43)$$

où  $d$  est l'épaisseur de la couche et «  $c$  » est la vitesse de la lumière dans l'espace libre. Physiquement, l'influence de cette contribution intrinsèque crée une non-uniformité du champ effectif dans le système.

### 1.6.2 Mécanismes extrinsèques

En plus du mécanisme de relaxation intrinsèque, il existe d'autres mécanismes dits extrinsèques qui contribuent au mécanisme d'amortissement. Les défauts structuraux dans les

matériaux ou les effets d'interface sont les causes principales qui constituent les mécanismes extrinsèques de relaxation de l'aimantation. Cette contribution peut changer d'un échantillon à l'autre tout en dépendant du processus de préparation des échantillons. Il existe donc plusieurs causes à ces contributions extrinsèques et on se limite dans la suite à celles observées dans nos échantillons.

*Processus de diffusion à deux magnons :*

Les magnons constituent le type le plus important de l'excitation magnétique. Les magnons avec de grande vecteur d'onde sont dominés par l'interaction d'échange et avec de vecteur d'onde courte sont dominé par l'interaction dipolaire (cf. section 1.4.2.1). A l'inverse de ces magnons non-uniformes, les magnons uniformes ( $k=0$ ) dépendent de la précession du champ d'anisotropie ou du champ appliqué. L'origine de cette anisotropie peut provenir de l'interaction dipolaire (anisotropie de la forme) ou d'échange (exchange bias). Les magnons non-uniformes sont associés généralement aux excitations thermique alors que les magnons uniformes peuvent être associés aux excitations non-thermiques comme un changement importante du champ d'anisotropie ou du champ appliqué.

Les inhomogénéités magnétiques au sein du système peuvent provenir des impuretés, des défauts, des variations de l'anisotropie ou de non-uniformité de l'aimantation due à la rugosité de surface[43]. Dans le cas des impuretés magnétiques, les magnons peuvent induire une diffusion sur cet impuretés : c'est le processus de diffusion à deux magnons. Ce processus désigne la dégénérescence entre les fréquences du mode à précession uniforme ( $k=0$ ) et du mode de magnon à vecteur d'onde non-nul en conservant de l'énergie du système [44] (cf. Figure 1.14 par le chemin 2). C'est-à-dire, ce processus va donc impliquer des magnons dégénérés de vecteur d'onde non-nul mais ayant la même énergie ( $\hbar\omega_0$ ) que le mode uniforme (cf. Figure 1.15).

Notons que ce mécanisme n'affecte que le nombre de magnons uniforme et non le nombre

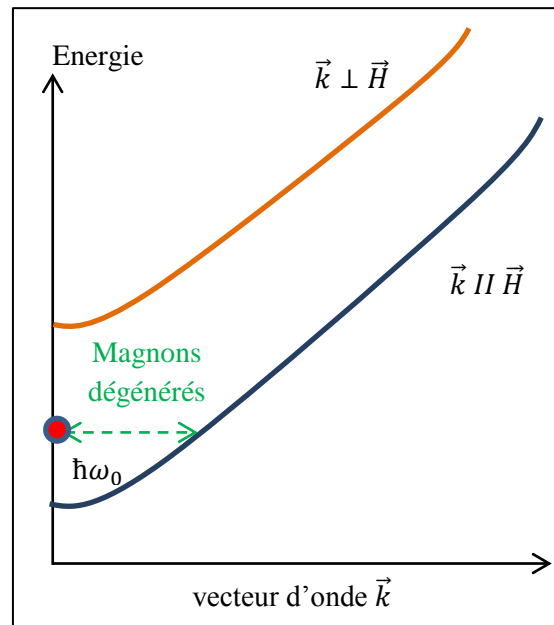


Figure 1.15 : Processus à diffusion de deux magnons. Les courbes orange et bleue correspondent aux limites obtenues pour les vecteurs d'onde se propageant respectivement perpendiculairement et parallèlement au champ appliqué. Le point rouge représente la fréquence du mode uniforme ( $k=0$ ).



totale de magnons. Le mécanisme à deux magnons peut conduire à un élargissement de raie sur le spectre de FMR. Arias et Mills [45] ont présenté une théorie détaillée sur le rôle de ce processus dans la réponse de résonance ferromagnétique des couches minces (dans le cas où l'aimantation et le champ appliqué sont dans le plan). Ils ont prévu que la largeur de raie extrinsèque (qui provient de la diffusion de deux magnons) augmente avec l'inverse de l'épaisseur de la couche.

## Bibliographie

- [1] A. Hubert and R. Schäfer, *Magnetic domains: the analysis of magnetic microstructures*. Berlin; New York: Springer, 1998.
- [2] S. Chikazumi, *Magnetism - From Fundamentals to Nanoscale Dynamics*, Second. New York: Oxford University Press, 1999.
- [3] S.S.P. Parkin, "Systematic variation of the strength and oscillation period of indirect magnetic exchange coupling through the 3d, 4d and 5d transition metals," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 67, no. 25, p. 3598, Dec. 1991.
- [4] M. A. Ruderman and C. Kittel, "Indirect Exchange Coupling of Nuclear Magnetic Moments by Conduction Electrons," *Phys. Rev.*, vol. 96, no. 1, pp. 99–102, Oct. 1954.
- [5] T. Kasuya, "A Theory of Metallic Ferro- and Antiferromagnetism on Zener's Model," *Prog. Theor. Phys.*, vol. 16, no. 1, pp. 45–57, Jul. 1956.
- [6] K. Yosida, "Magnetic Properties of Cu-Mn Alloys," *Phys. Rev.*, vol. 106, no. 5, pp. 893–898, Jun. 1957.
- [7] H. Alloul, *Physique des électrons dans les solides. I, I*. Palaiseau: Les Éd. de l'École polytechnique, 2007.
- [8] A. Aharoni, *Introduction to the theory of ferromagnetism*. Oxford; New York: Oxford University Press, 2000.
- [9] M. Getzlaff, *Fundamentals of magnetism*. Berlin; New York: Springer, 2008.
- [10] J. van Vleck, "On the Anisotropy of Cubic Ferromagnetic Crystals," *Phys. Rev.*, vol. 52, no. 11, pp. 1178–1198, Dec. 1937.
- [11] E. Du Trémolet de Lacheisserie and M. Cyrot, *Magnétisme*. Les Ulis: EDP sciences, 2000.
- [12] L. Landau and E. Lifshitz, *Phys. Z. Sowjetunion*, vol. 8, p. 153, 1953.
- [13] T. L. Gilbert, *Phys. Rev.*, vol. 100, p. 1243, 1955.
- [14] O. Acher, S. Queste, M. Ledieu, K.-U. Barholz, and R. Mattheis, "Hysteretic behavior of the dynamic permeability on a Ni-Fe thin film," *Phys. Rev. B*, vol. 68, no. 18, Nov. 2003.
- [15] K. Lenz, E. Kosubek, K. Baberschke, H. Wende, J. Herfort, H.-P. Schönherr, and K. Ploog, "Magnetic properties of Fe<sub>3</sub>Si/GaAs(001) hybrid structures," *Phys. Rev. B*, vol. 72, no. 14, Oct. 2005.
- [16] R. W. Damon and J. R. Eshbach, "Magnetostatic modes of a ferromagnet slab," *J. Phys. Chem. Solids*, vol. 19, no. 3–4, pp. 308–320, May 1961.

- [17] F. Bloch, “Zur Theorie des Austauschproblems und der Remanenzerscheinung der Ferromagnetika,” *Z. Für Phys.*, vol. 74, no. 5–6, pp. 295–335, May 1932.
- [18] L. Walker, “Magnetostatic Modes in Ferromagnetic Resonance,” *Phys. Rev.*, vol. 105, no. 2, pp. 390–399, Jan. 1957.
- [19] S. Demokritov, “Brillouin light scattering studies of confined spin waves: linear and nonlinear confinement,” *Phys. Rep.*, vol. 348, no. 6, pp. 441–489, Jul. 2001.
- [20] L. Rayleigh, “On the Intensity of Light Reflected from Certain Surfaces at nearly Perpendicular Incidence,” *Proc. R. Soc. Lond.*, vol. 41, no. 246–250, pp. 275–294, Jan. 1886.
- [21] J. A. Ewing, “Experimental Researches in Magnetism.,” *Proc. R. Soc. Lond.*, vol. 38, no. 235–238, pp. 58–62, Jan. 1884.
- [22] E. M. Gyorgy, “Rotational Model of Flux Reversal in Square Loop Ferrites,” *J. Appl. Phys.*, vol. 28, no. 9, p. 1011, 1957.
- [23] J.-W. Lee, J.-R. Jeong, D.-H. Kim, J. S. Ahn, J. Kim, and S.-C. Shin, “Three-configurational surface magneto-optical Kerr effect measurement system for an ultrahigh vacuum in situ study of ultrathin magnetic films,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 71, no. 10, p. 3801, 2000.
- [24] K. J. Kennewell, D. C. Crew, M. J. Lwin, R. C. Woodward, S. Prasad, and R. L. Stamps, “Interpretation of magnetisation dynamics using inductive magnetometry in thin films,” *Surf. Sci.*, vol. 601, no. 24, pp. 5766–5769, Dec. 2007.
- [25] W. Dietrich and W. E. Proebster, “Millimicrosecond Magnetization Reversal in Thin Magnetic Films,” *J. Appl. Phys.*, vol. 31, no. 5, p. S281, 1960.
- [26] C. Stamm, N. Pontius, T. Kachel, M. Wietstruk, and H. A. Dürr, “Femtosecond x-ray absorption spectroscopy of spin and orbital angular momentum in photoexcited Ni films during ultrafast demagnetization,” *Phys. Rev. B*, vol. 81, no. 10, Mar. 2010.
- [27] C. M. Schneider, I. Krug, F. Hillebrecht, M. Bolte, A. Krasyuk, A. Oelsner, S. A. Nepijko, H. Elmers, and G. Schoenhense, “A View on Fast Magnetization Dynamics: Studies by XPEEM,” 2006, pp. 390–390.
- [28] H. Schumacher, C. Chappert, P. Crozat, R. Sousa, P. Freitas, J. Miltat, J. Fassbender, and B. Hillebrands, “Phase Coherent Precessional Magnetization Reversal in Microscopic Spin Valve Elements,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 90, no. 1, Jan. 2003.
- [29] E. B. Myers, “Current-Induced Switching of Domains in Magnetic Multilayer Devices,” *Science*, vol. 285, no. 5429, pp. 867–870, Aug. 1999.

- [30] J. H. E. Griffiths, “Anomalous High-frequency Resistance of Ferromagnetic Metals,” *Nature*, vol. 158, no. 4019, pp. 670–671, Nov. 1946.
- [31] C. Kittel, “Interpretation of Anomalous Larmor Frequencies in Ferromagnetic Resonance Experiment,” *Phys. Rev.*, vol. 71, no. 4, pp. 270–271, Feb. 1947.
- [32] I. Neudecker, G. Woltersdorf, B. Heinrich, T. Okuno, G. Gubbiotti, and C. H. Back, “Comparison of frequency, field, and time domain ferromagnetic resonance methods,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 307, no. 1, pp. 148 – 156, 2006.
- [33] I. Neudecker, K. Perzlmaier, F. Hoffmann, G. Woltersdorf, M. Buess, D. Weiss, and C. Back, “Modal spectrum of permalloy disks excited by in-plane magnetic fields,” *Phys. Rev. B*, vol. 73, no. 13, Apr. 2006.
- [34] M. Belmeguenai, F. Zighem, G. Woltersdorf, Y. Roussigné, S. M. Chérif, K. Westerholt, and G. Bayreuther, “Anisotropy and dynamic properties of  $\text{Co}_2\text{MnGe}$  Heusler thin films,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 321, no. 7, pp. 750 – 753, 2009.
- [35] M. Belmeguenai, F. Zighem, Y. Roussigné, M. Cherif, K. Westerholt, and Wol, “Microstrip line ferromagnetic resonance and Brillouin light scattering investigations of magnetic properties of  $\text{Co}_2\text{MnGe}$  Heusler thin films.”
- [36] M. Belmeguenai, F. Zighem, D. Faurie, H. Tuzcuoglu, S.-M. Chérif, P. Moch, K. Westerholt, and W. Seiler, “Structural and magnetic properties of  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  thin films,” *Phys. Status Solidi A*, vol. 209, no. 7, pp. 1328–1333, Jul. 2012.
- [37] W. Karboul-Trojet, D. Faurie, Y. Roussigné, S. M. Chérif, P.-O. Renault, and P. Goudeau, “In situ study of spin waves in thin films deposited onto compliant substrates submitted to external stresses,” *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 44, no. 15, p. 155002, 2011.
- [38] Y. Roussigné, F. Ganot, C. Dugautier, P. Moch, and D. Renard, “Brillouin scattering in  $\text{Co/Cu/Co}$  and  $\text{Co/Au/Co}$  trilayers: Anisotropy fields and interlayer magnetic exchange,” *Phys. Rev. B*, vol. 52, no. 1, pp. 350–360, Jul. 1995.
- [39] A. G. Gurevich and G. A. Melkov, *Magnetization oscillations and waves*. Boca Raton: CRC Press, 1996.
- [40] B. Heinrich, D. Fraitová, and V. Kamberský, “The Influence of s-d Exchange on Relaxation of Magnons in Metals,” *Phys. Status Solidi B*, vol. 23, no. 2, pp. 501–507, 1967.
- [41] V. Kamberský, “On the Landau–Lifshitz relaxation in ferromagnetic metals,” *Can. J. Phys.*, vol. 48, no. 24, pp. 2906–2911, Dec. 1970.
- [42] B. Heinrich, R. Urban, and G. Woltersdorf, “Magnetic relaxations in metallic multilayers,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 38, no. 5, pp. 2496–2501, Sep. 2002.

- [43] J. Lindner, I. Barsukov, C. Raeder, C. Hassel, O. Posth, R. Meckenstock, and D. L. Mills, "Two-magnon damping in thin films in case of canted magnetization: Theory versus experiment," *Phys. Rev. B*, vol. 80, no. 22, Dec. 2009.
- [44] A. K. Srivastava, M. J. Hurben, M. A. Wittenauer, P. Kabos, C. E. Patton, R. Ramesh, P. C. Dorsey, and D. B. Chrisey, "Angle dependence of the ferromagnetic resonance linewidth and two magnon losses in pulsed laser deposited films of yttrium iron garnet, MnZn ferrite, and NiZn ferrite," *J. Appl. Phys.*, vol. 85, no. 11, p. 7838, 1999.
- [45] R. Arias and D. Mills, "Extrinsic contributions to the ferromagnetic resonance response of ultrathin films," *Phys. Rev. B*, vol. 60, no. 10, pp. 7395–7409, Sep. 1999.



# Chapitre II :

## Les alliages Heusler

---

2.1	Introduction .....	40
2.2	Généralités sur les alliages Heusler .....	41
2.3	Structure cristallographique des alliages Heusler à base de cobalt .....	42
2.4	Demi-métallicité des alliages Heusler .....	44
2.4.1	Origine de gap des alliages Heusler à base de cobalt.....	46
2.4.2	Effets du désordre atomique sur certaines propriétés des alliages Heusler.....	48
2.4.3	Effets de surface et d'interface sur la demi-métallicité des alliages Heusler.....	50
2.4.4	Effets de température de recuit sur la demi-métallicité des alliages Heusler .....	51
2.5	Les propriétés magnétique des Heusler à base de cobalt.....	52
2.5.1	Magnétisme .....	52
2.5.2	Le comportement de Slater-Pauling .....	53
2.6	Application des alliages Heusler pour les dispositifs magnéto-résistances .....	55
2.7	Motivation du travail de thèse .....	56
	Bibliographie .....	58

## 2.1 Introduction

L'électronique de spin profite du spin de l'électron pour transporter l'information. Les jonctions magnétiques tunnels sont considérées comme des candidats prometteurs pour la prochaine génération de composants spintroniques car elles présentent de larges taux de magnétorésistance tunnel (TMR) à température ambiante. Récemment, des taux de TMR excédant les 500% ont été obtenus en utilisant des barrières tunnels. D'autre part, ces dernières années le retournement de l'aimantation par courant polarisé en spin, en utilisant le couple de transfert de spin, a été mis en évidence. Dans ce mode de retournement à base de transfert de spin, la densité de courant est proportionnelle à la constante d'amortissement de Gilbert et inversement proportionnelle à la polarisation en spin. Le développement de la spintronique nécessite par conséquent l'utilisation de matériaux à forte polarisation en spin et ayant de faibles coefficients d'amortissement. Les demi-métaux, caractérisés par un taux de 100% de polarisation en spin au niveau de Fermi (cf. *Figure 2.2*) présentant ainsi une faible résistance pour un type de spin et une grande résistance pour l'autre type de spin, possèdent donc un énorme potentiel pour être utilisés dans les composants spintroniques comme la logique magnétique et les mémoires magnétiques à accès aléatoires (MRAM). Ces matériaux sont donc des sources idéales pour les courants fortement polarisés en spin permettant de réaliser des taux de magnétorésistance très élevés, une faible densité de courant de retournement d'aimantation dans les dispositifs à base de transfert de spin, et pour une injection efficace de spin dans les semiconducteurs. Théoriquement, certains types de matériaux, tels que  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  [1], [2]  $\text{CrO}_2$  [3] les perovskites à valence mixte [4] et les alliages de Heusler [5], [6], ont été prédits comme étant des demi-métaux. En outre, cette propriété demi-métallique a été démontrée expérimentalement à basse température. Toutefois, les oxydes demi-métaux ont une faible température de Curie et donc la polarisation en spin doit être dérisoire à température ambiante. Les alliages Heusler, par contre, sont des matériaux prometteurs pour les applications spintroniques, parce qu'un certain nombre d'entre eux ont généralement des températures de Curie très élevées [7] et offrent donc une possibilité de posséder le caractère demi-métallique même à température ambiante. De plus, ils jouissent d'une structure cristallographique compatible avec celle des matériaux semiconducteurs utilisés dans l'industrie et leurs champs coercitifs sont très faibles.



**2.2 Généralités sur les alliages Heusler**

Depuis la découverte de la demi-métallicité ferromagnétique\* des alliages Heusler, ces derniers sont devenus un domaine d'intérêt de la recherche pour les applications de l'électronique de spin [6]. Le terme alliages Heusler est attribué à un groupe de composés qui contient à peu près 3000 composés identifiés. Ces composés remarquables ont été découverts la première fois par Fritz Heusler en 1903 tandis qu'il travaillait sur le ferromagnétisme de l'alliage Cu<sub>2</sub>MnAl [8]. Grâce à un large éventail de propriétés, ces composés peuvent avoir le comportement de demi-métaux, de semi-conducteurs, de supraconducteurs et bien d'autres. Ils se divisent en deux groupes : les demi-Heusler avec une formule chimique XYZ et les alliages Heusler complets avec une composition X<sub>2</sub>YZ, où X et Y sont des métaux de transition et Z est un élément des groupes III à V. Les principales combinaisons des alliages Heusler sont présentées dans le *tableau de 2.1*.

H																								He		
Li	Be																				B	C	N	O	F	Ne
Na	Mg																				Al	Si	P	S	Cl	Ar
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr									
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe									
Cs	Ba		Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pd	Bi	Po	At	Rn									
Fr	Ra																									
			La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu									
			Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr									

Tableau 2.1 : combinaisons majeures pour la formation des alliages Heusler [12]

Les alliages à base de cobalt (Co<sub>2</sub>YZ) [9] sont prédits théoriquement comme susceptibles d'avoir un caractère demi-métallique à température ambiante et par conséquent présentent un intérêt particulier pour les applications en électronique de spin. De plus, ces matériaux possèdent une température de Curie largement supérieure à la température ambiante [10] (cf. Tableau 2.2) et présentent également un bon accord de maille (épitaxie) avec celui du substrat MgO. Cette bonne épitaxie entre la couche et le substrat conduit à une amélioration significative des propriétés magnétiques de ces systèmes [11]. L'objectif principal de ce chapitre est de présenter les principales propriétés structurales, magnétiques et électroniques des alliages Heusler à base de cobalt.

\* Ils sont conducteurs pour les électrons de spin majoritaire et isolants ou semi-conducteurs pour les électrons de spin minoritaire.

Alliage	Température de curie (K)
$Co_2Cr_{0.6}Fe_{0.4}Al$	750
$Co_2MnAl$	693
$Co_2MnSi$	985
$Co_2MnGe$	905
$Co_2FeAl$	$\approx 1000$
$Co_2FeGa$	$> 1100$
$Co_2FeSi$	1100

Tableau 2.2 : Température de Curie des alliages Heusler à base de cobalt [10]

### 2.3 Structure cristallographique des alliages Heusler à base de cobalt

Les alliages Heusler à base de cobalt, de composition chimique  $Co_2YZ$ , cristallisent théoriquement dans la phase  $L2_1$  avec une stœchiométrie 2 : 1 : 1. Cette structure est formée par l'interpénétration de quatre réseaux cristallins cubiques à faces centrées (cf. *Figure 2.1(a)*). Deux sous-mailles sont occupées par le Co et les deux autres sont occupées par les éléments Y et Z.

Les deux atomes de cobalt se positionnent aux sites tétraédriques de la maille (c'est-à-dire les sites (0, 0, 0) et (1/2, 1/2, 1/2)) alors que les atomes Y et Z se trouvent au niveau des sites octaédriques ainsi qu'aux positions (1/4, 1/4, 1/4) pour les atomes Y et (3/4, 3/4, 3/4) pour les atomes Z. La structure  $L2_1$  présente une phase complètement ordonnée mais, souvent les alliages Heusler adoptent des phases partiellement désordonnées telles que les phases B2, DO3 ou bien complètement désordonnées dans le cas de la phase A2. Quand les atomes de Co occupent leur sites respectives, définis ci-dessus, alors que le désordre complet se produit seulement entre les sites des atomes Y et Z, la structure B2 est obtenue (cf *Figure 2.1(b)*). Dans le cas de la phase DO<sub>3</sub>, il existe un échange de sites entre les atomes de cobalt et les atomes Y et enfin, si tous les sites sont occupés aléatoirement par les atomes de cobalt, Y et Z, cette phase est nommée A2 (cf. *Figure 2.1(c)*).

Ce désordre peut être mesuré directement par diffraction de rayons X où l'influence de désordre chimique est observée en mesurant les intensités des pics diffractés. En effet, pour la structure  $L2_1$ , les pics de diffraction ( $hkl$ ) sont tous observables sous la seule restriction que  $h$ ,  $k$  et  $l$  soient de même parité : ainsi, doivent apparaître les raies (111), (113), (133), (333)... ainsi que les raies (002), (022), (222), (004), (024), (224), (006)... La structure B2 impose une restriction supplémentaire :  $h$ ,  $k$  et  $l$  doivent être tous trois pairs, d'où, pour cette structure, la disparition attendue des raies (111), (113), (133), (333)... Enfin, dans la phase A2,  $h$ ,  $k$  et  $l$  doivent, de plus, vérifier la relation :  $h+k+l=4n$  où  $n$  est un entier, d'où de

nouvelles disparitions telles que les raies (002), (222), (024), (006),... Le pic (004) est donc fondamental pour la phase A2 alors que la présence d'un pic (002) supplémentaire indique une structure B2. La détection du pic (111) n'est possible que pour la phase  $L2_1$ . Cette structure  $L2_1$  est hautement désirable pour certains alliages de Heusler complets. Généralement, les alliages n'ayant subi aucun traitement après le dépôt sont désordonnés. Un recuit post-dépôt est alors nécessaire afin d'obtenir des structures bien ordonnées. La température de transition ordre-désordre est un facteur important pour obtenir un haut degré d'ordre dans les alliages Heusler. Cette température de transformation ordre-désordre a été étudiée pour plusieurs composés Heusler à base de Co [13], [14]. Pour le  $Co_2MnSi$  la structure ordonnée  $L2_1$  est stable jusqu'au point de fusion. Ce composé est considéré comme l'un des meilleurs alliages pour les TMJs et les dispositifs utilisant la magnétorésistance géante (GMR). L'une des raisons est peut-être que la structure ordonnée  $L2_1$  est obtenue par une température de recuit relativement faible ( $\sim 350^\circ\text{C}$  [14]).

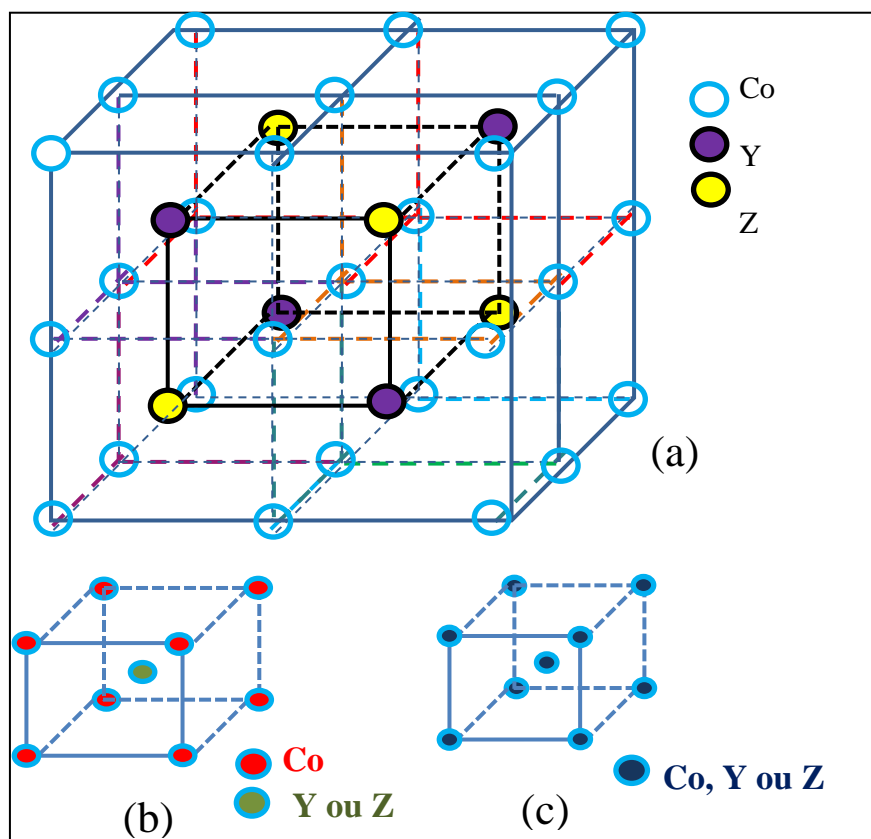


Figure 2.1: La structure cristallographique théorique (parfaite) (a) $L2_1$ , un exemple de maille (b) B2 et (c) A2 des alliages Heusler à base de cobalt

Les propriétés magnétiques et la demi-métallicité dépendent fortement de l'ordre atomique c'est pourquoi la caractérisation de la structure cristalline est importante pour comprendre cette relation.

Heusler	Structure	$a_{exp} (A^\circ)$
Co <sub>2</sub> FeAl [15]	B2	5.73
Co <sub>2</sub> FeSi [16]	L2 <sub>1</sub>	5.64
Co <sub>2</sub> FeGa [17]	L2 <sub>1</sub>	5.741
Co <sub>2</sub> MnAl [18]	B2	5.756
Co <sub>2</sub> MnSi [18]	L2 <sub>1</sub>	5.654
Co <sub>2</sub> MnGe [18]	L2 <sub>1</sub>	5.743
Co <sub>2</sub> CrFeAl [15]	B2	5.737

Tableau 2.3 : Les phases et les paramètres de maille de quelques alliages Heusler à base de cobalt

## 2.4 Demi-métallicité des alliages Heusler

Le terme de demi-métallicité a été introduit pour la première fois par Groot et al [19], en s'intéressant au calcul de la structure de bande d'alliages demi-Heusler : NiMnSb [19]. Les matériaux ferromagnétiques conventionnels présentent une densité d'états électronique ( $N(E_F)$ ) au niveau de Fermi pour les électrons de spin majoritaires (up :  $N_\uparrow(E_F)$ ) et de spin minoritaires (down :  $N_\downarrow(E_F)$ ). Nous pouvons alors définir la polarisation  $P$  en spin, qui mesure l'asymétrie en spin, par l'expression [20]:

$$P = \frac{N_\uparrow(E_F) - N_\downarrow(E_F)}{N_\uparrow(E_F) + N_\downarrow(E_F)} \quad (2.1)$$

Les matériaux demi-métalliques ( $P=1$ ) montrent des propriétés de conduction complètement différentes entre spins minoritaires et spins majoritaires. Ils présentent ainsi une propriété métallique pour une direction de spin (densité d'état non-nulle au niveau de Fermi) et une propriété semi-conductrice ou même isolante pour l'autre direction de spin et par conséquent un taux de polarisation en spin de 100% (cf. Figure 2.2).

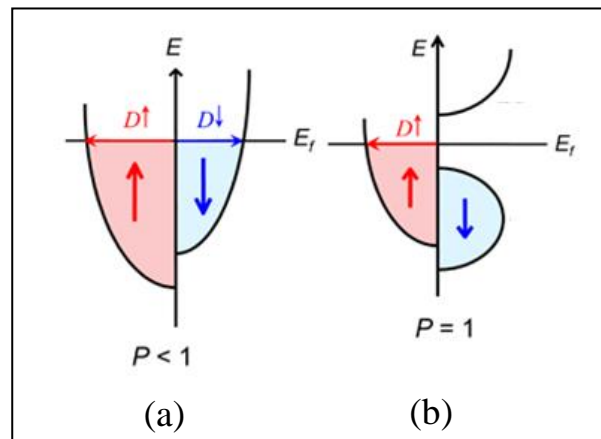


Figure 2.2: Structure de bande pour un matériau (a) ferromagnétique conventionnel et (b) demi-métallique

Depuis l'étude de Groot [19], un grand nombre de composés, tels que les alliages Heusler, CrO<sub>2</sub> [21] ou le graphène [22] sont prédits comme étant des demi-métaux. Grâce aux propriétés de conduction, les matériaux demi-métalliques peuvent potentiellement posséder

une polarisation en spin de 100%, envisageant alors de forts effets magnétorésistifs (magnétorésistance tunnel et magnétorésistance géante).

La structure électronique joue un rôle important dans la détermination des propriétés magnétiques et de demi-métallicité des alliages Heusler, par conséquent, les calculs de structure de bande prennent une place importante. Après les premières synthèses des alliages Heusler à base de cobalt, dans les années 70, les premières indications de demi-métallicité sont rapportées sur les couches de  $\text{Co}_2\text{MnAl}$  et de  $\text{Co}_2\text{MnSn}$  par Kübler [23] et de  $\text{Co}_2\text{MnSi}$ ,  $\text{Co}_2\text{MnGe}$  par Ishida [24]. Le composé  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  [25], [26] présente aussi, expérimentalement et théoriquement, un comportement demi-métallique.

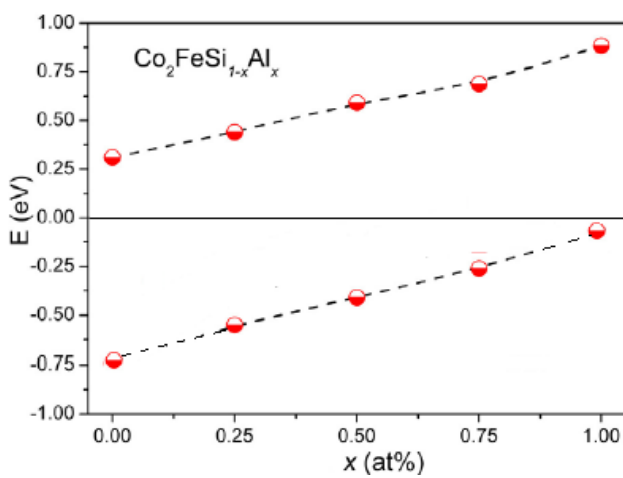


Figure 2.3: La position de la largeur de la bande interdite minoritaire calculée par simulations *ab-initio* [26]

Les alliages Heusler sont généralement connus sous la forme de composés ternaires mais ils peuvent aussi être sous forme quaternaire comme, par exemple, les alliages  $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Al}, \text{Si})$  [26] et  $\text{Co}_2(\text{Fe}, \text{Cr})\text{Al}$  [27], [28]. Gercsi *et al.* [26] ont étudié les alliages à base de cobalt, de forme quaternaire tel que le  $\text{Co}_2\text{FeSi}_{1-x}\text{Al}_x$  et ont montré que la largeur de la bande interdite (gap) de spin minoritaire diminue avec l'addition de l'Al comme illustré sur la figure 2.3.

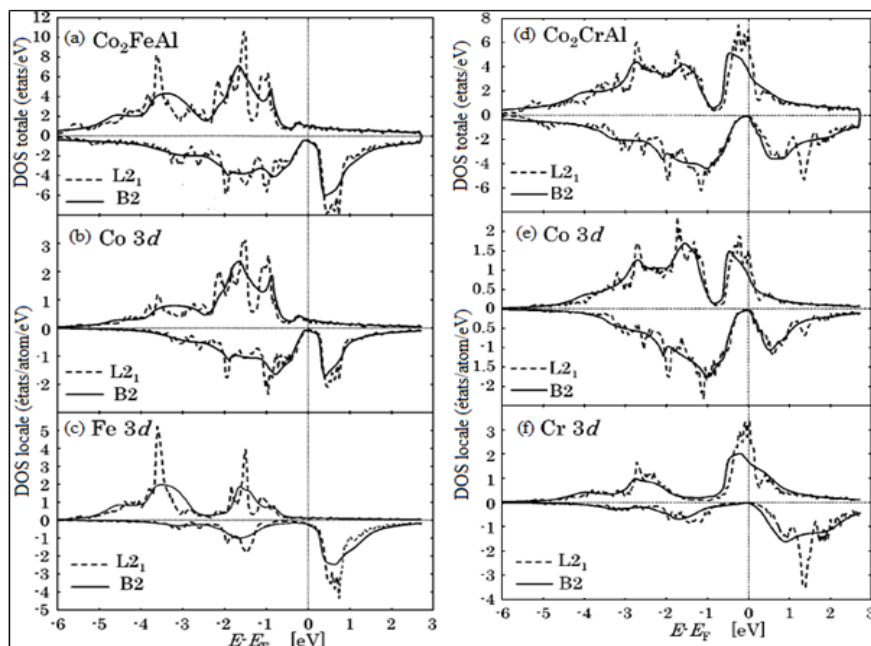


Figure 2.4 : (a) Densité d'états de spins de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  pour les phases  $L2_1$  et  $B2$ ; Densité d'état locale de (b)  $\text{Co}$  et de (c)  $\text{Fe}$  et à gauche DOS totale de  $\text{Co}_2\text{CrAl}$ (d), Densité d'état locale de  $\text{Co}$  (e) et  $\text{Cr}$ (f) [28]

Miura et al. ont étudié la demi-métallicité des alliages Heusler  $\text{Co}_2(\text{Cr}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{Al}$  [28]. La *figure 2.4* présente les résultats des calculs des densités d'états (DOS) et locale (LDOS) des composés  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  et  $\text{Co}_2\text{CrAl}$  pour différentes phases cristallographiques. Dans le cas de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  (cf. *Figure 2.4*), les pics de spins majoritaires se trouvent bien en dessous du niveau de Fermi par rapport aux pics de  $\text{Co}_2\text{CrAl}$ . Cet effet provient de la présence de Fe car il possède deux électrons de valence de plus que Cr, ce qui conduit à une réduction de la polarisation en spin. D'un autre côté, Xu *et al.* [29] ont étudié la demi-métallicité de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  sous forme de massif et de couche mince, respectivement et ont montré que la demi-métallicité s'atténue avec la réduction de taille. Cette diminution est généralement associée au désordre chimique [29].

### 2.4.1 Origine de gap des alliages Heusler à base de cobalt

L'étude de l'origine de la bande interdite (gap) des alliages Heusler complets à base de cobalt a été introduite par Galanakis *et al.* sur le composé  $\text{Co}_2\text{MnGe}$  [30], [31]. Les auteurs ont commencé par calculer l'hybridation des orbitales  $d$  de l'état minoritaire, qui provient de l'interaction entre les atomes Co-Co (*Figure 2.5 (a)*).

Les signes de  $d_1$  à  $d_5$  sur la *figure 2.5* correspondent respectivement aux orbitales  $d_{xy}, d_{yz}, d_{zx}, d_{z^2}$  et  $d_{x^2-y^2}$ . En chimie, les complexes chimique ont un atome central lié à des groupes d'atomes, dits ligands. Les orbitales  $d_{xy}, d_{yz}, d_{zx}$  pointent entre les ligands. Si un électron occupe une de ces orbitales, il subit une répulsion moindre par les ligands et finalement l'énergie de ces orbitales est abaissée. Les orbitales  $d_{z^2}, d_{x^2-y^2}$  sont dirigées directement vers les ligands, cette fois-ci l'électron qui occupe l'une de ces orbitales va subir une répulsion plus forte des ligands et donc l'énergie des orbitales est augmentée. La théorie du champ des ligands considère un recouvrement entre les orbitales atomiques de valence des ligands et les orbitales atomiques de valence de l'atome centrale pour obtenir des orbitales moléculaire liante et antiliante.

Les orbitales  $d_4$  et  $d_5$  s'hybrident pour former une orbitale antiliante doublement dégénérée  $e_u$  et une orbitale liante doublement dégénérée  $e_g$ . Les orbitales  $d_1, d_2$  et  $d_3$  s'hybrident pour constituer une orbitale liante triplement dégénérée  $t_{2g}$  et une orbitale antiliante triplement dégénérée  $t_{1u}$ . Les signes  $e_g, e_u, t_{1u}, t_{2g}$  sont utilisés comme nomenclature chimique qui décrit la forme (moment angulaire) de l'orbitale hybride.

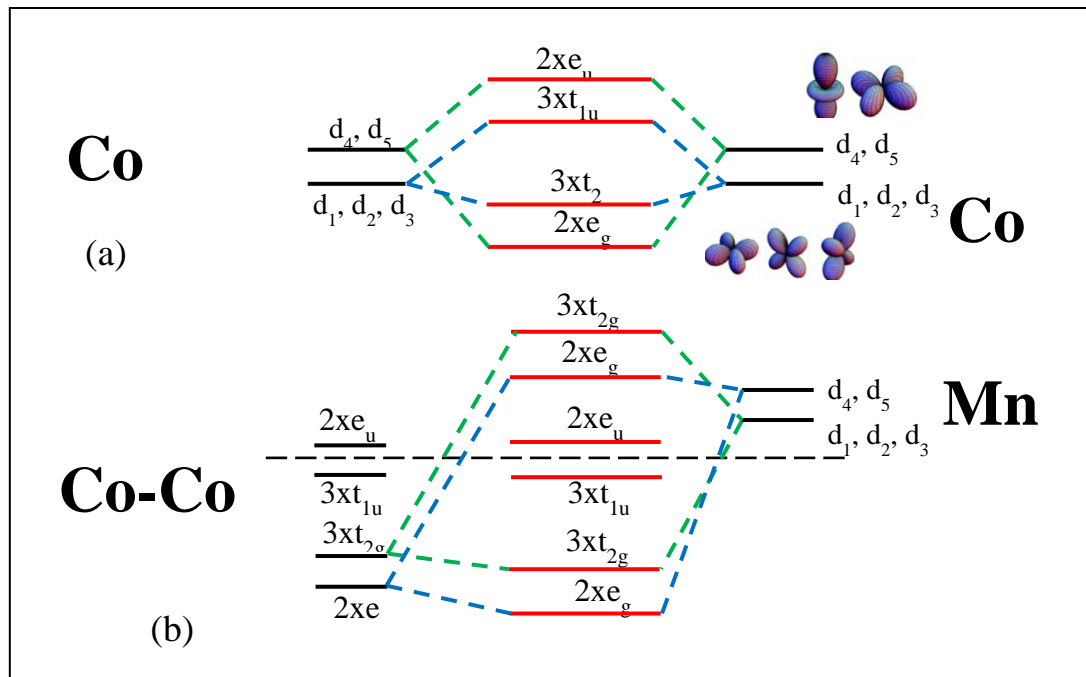


Figure 2.5: Diagrammes d'énergie moléculaire : L'hybridation possible entre les orbitales « d » pour les états minoritaires de  $\text{Co}_2\text{MnGe}$  : (a) interaction Co-Co ; (b) interaction Mn-(Co-Co)

La différence entre ces orbitales est représentée sur la *figure 2.5(a)* pour deux atomes de cobalt voisins. Selon la symétrie, il faut noter que les orbitales  $e_g$  du site de Co peuvent seulement se coupler avec les orbitales  $e_g$  de l'autre site de Co ou du site de Mn. Cette situation est aussi valable pour les autres types d'orbitales. Les orbitales  $d$  de Mn s'hybrident d'une manière similaire aux atomes Co-Co. La *figure 2.5(b)* montre que l'orbitale doublement dégénérée  $e_g$  de Co-Co forme un couple doublement dégénéré d'orbitales liantes de plus basse énergie  $e_g$  et un couple doublement dégénéré d'orbitales antiliantes au niveau de l'énergie élevée  $e_g$ . L'orbitale triplement dégénérée, formée par l'hybridation des orbitales  $d_1$ ,  $d_2$ ,  $d_3$  et  $t_{2g}$ , fait aussi six autres couples, dont trois qui sont liantes, sont au-dessous du niveau Fermi et les trois autres sont antiliantes et se situent au niveau de l'énergie élevée. L'interaction avec Mn cause la libération de cinq orbitales hybridées Co-Co qui sont les trois orbitales  $t_{1u}$  en bas du niveau de Fermi et les deux orbitales  $e_u$  en haut du niveau de Fermi. La raison en est qu'il n'existe aucun état de l'atome Mn qui représentent la même symétrie avec les orbitales antiliantes Co-Co. En conséquence de ces interactions, un gap au niveau de Fermi apparaît dans la bande minoritaire. La largeur de ce gap est largement déterminée par l'interaction Co-Co.

La discussion ci-dessus a complètement ignoré l'élément Z (dans leur cas le Ge) car les états des orbitales  $s$  et  $p$  les plus bas ne contribuent pas directement au gap minoritaire.

D'un autre côté, ces états contribuent au nombre total des états occupés ou des états vides ; c'est pourquoi l'atome Z devient important pour le positionnement du niveau de Fermi. La différence peut se voir facilement sur la *figure 2.6*.

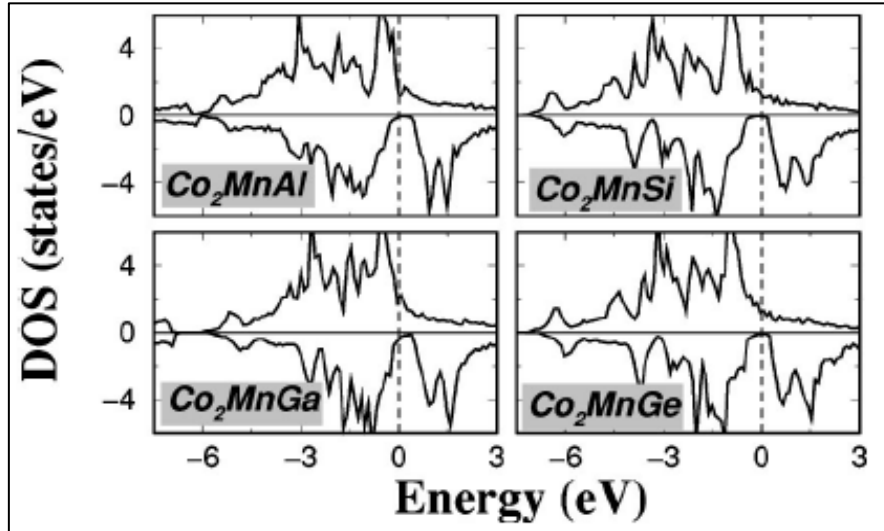


Figure 2.6 : Diagrammes d'énergie moléculaire de  $Co_2MnZ$  ( $Z=Al, Si, Ga$  et  $Ge$ ) [31]

#### 2.4.2 Effets du désordre atomique sur certaines propriétés des alliages Heusler

Les effets de désordre sur les alliages Heusler ont été étudiés théoriquement par différents auteurs [28], [32]–[35]. Ces effets peuvent être les antisites des atomes qui se trouvent bien à un nœud du réseau mais qui touchent la régularité chimique du cristal ou bien l'inter-échange des atomes entre les différents sous-réseaux. La présence d'un désordre structural peut sensiblement influencer la structure électronique de ces alliages incluant une possibilité de destruction complète de la bande interdite du demi-métal. Cet effet négatif se traduit par de nouveaux états de spins minoritaires au niveau de Fermi provenant de l'imperfection de réseau cristallin [36]. Comme nous l'avons déjà discuté plus haut, la symétrie du champ cristallin prend un rôle important pour induire un gap en hybridant les atomes de Co et Y dans la densité d'états de spins minoritaires. Dans le cas d'un désordre structural, la symétrie du champ cristallin subit un changement par rapport à la situation précédente des sites Co et Y. Par conséquent, de nouveaux états peuvent apparaître au niveau de la bande interdite minoritaire du fait d'un « splitting » supplémentaire des orbitales  $d$ .

Les modèles de calcul utilisés pour les différents types de désordre structural des alliages Heusler sont limités par des considérations de maille unitaire. Par exemple Gerci et Hono [26] ont utilisé seulement seize atomes par maille unitaire, ainsi une petite partie de



désordre est introduite dans leur modèle , soit 25% pour le type de B2 et 12.5% pour les types DO<sub>3</sub> et A2.

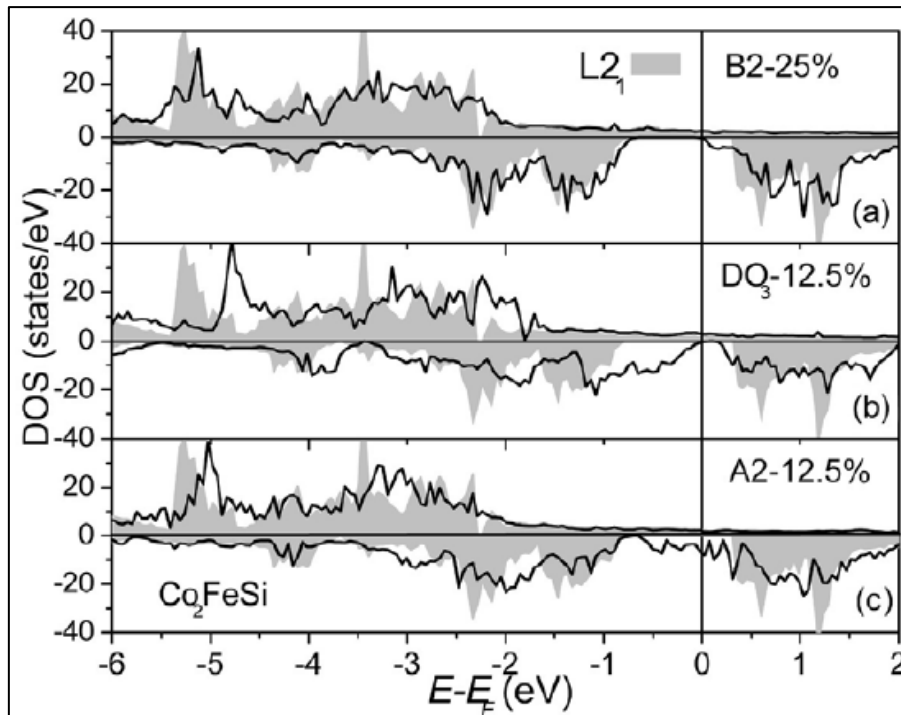


Figure 2.7 : Densité d'état de  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  avec les désordres B2, DO<sub>3</sub> et A2 et la phase plus ordonnée  $L_{21}$  marquée en gris [26]

La figure 2.7 présente le diagramme de densité d'état de  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  pour les différentes phases, tenant compte du désordre structural introduit. Comme il n'existe pas un désordre entre les atomes de Co-Co dans le cas de B2, la bande interdite minoritaire au niveau de Fermi conserve sa position comme pour le cas  $L_{21}$ . Quand le degré de désordre augmente, la largeur de la bande interdite commence à changer. La phase DO<sub>3</sub> présente un gap étroit par rapport aux phases plus ordonnées mais elle conserve 100% de polarisation en spin. En outre, le gap minoritaire est perdu dans le cas de la phase la plus désordonnée A2.

Galanakis *et al.* [31] ont étudié les effets de désordre et de dopage sur les propriétés magnétiques de  $\text{Co}_2\text{MnAl}$  et  $\text{Co}_2\text{MnSi}$ . Le dopage est simulé par la substitution de Cr et Fe. Ils ont obtenu un faible effet de désordre et dopage sur la demi-métallicité de  $\text{Co}_2\text{MnSi}$ .  $\text{Co}_2\text{MnAl}$  présente normalement une faible densité d'états minoritaires au lieu d'un gap réel. Le dopage n'influence pas la demi-métallicité de  $\text{Co}_2\text{MnAl}$ , par contre, l'excès des atomes Mn ou Al détruit complètement le taux parfait de polarisation en spin, contrairement au cas du  $\text{Co}_2\text{MnSi}$ . D'un autre côté, ces auteurs ont également examiné l'effet des lacunes sur la demi-métallicité. Les lacunes des sites de Co d'un composé parfait affectent la stabilité du

caractère demi-métallique en réduisant rapidement le gap minoritaire, par contre les lacunes des autres sites ne présentent pas vraiment une influence sur ce caractère. Enfin, comme nous l'avons déjà expliqué, la phase  $B_2$  présente seulement un désordre entre les atomes Y (Fe) et Z (Al) et ce changement n'affecte pas vraiment la demi-métallicité (cf. *Figure 2.4*).

### 2.4.3 Effets de surface et d'interface sur la demi-métallicité des alliages Heusler

Comme les effets de désordre, les surfaces et les interfaces de divers matériaux Heusler peuvent causer la perte de leur caractère demi-métallique en raison des distorsions de leur structure de bande du fait des changements d'hybridation des orbitales. Les études des interfaces sont faites entre les alliages Heusler et les substrats habituels (comme Si [37], MgO [26]) et les matériaux qui sont utilisés pour les barrières tunnels comme MgO [28], [38].

L'un de ces substrats, le GaAs, est très utilisé comme interface avec les alliages Heusler à base de cobalt [39], [40]. Nagao et al [39] ont obtenu un taux de polarisation en spin élevé par les calculs principaux pour les systèmes  $Co_2CrAl/ GaAs$ ,  $Co_2CrSi/ GaAs$ ,  $Co_2MnSi/ GaAs$  et  $Co_2MnGe/ GaAs$  présentant un caractère quasiment demi-métallique dans le cas d'une interface (110) [39]. Par contre, si l'interface est constituée par des surfaces (001), elle crée des états d'interface au niveau de Fermi qui dépendent de l'hybridation entre les orbitales GaAs et les alliages Heusler, détruisant la demi-métallicité. L'utilisation de MgO présente différents effets selon l'alliage Heusler [41]. Par exemple, la structure d'interface de  $Co_2CrAl/MgO$  présente un caractère demi-métallique pour une interface Cr-Al tandis que le  $Co_2MnSi/MgO$  perd sa demi-métallicité avec une surface à terminaison Mn-Si. Miura et al [42] pensent que cette différence provient d'un transfert de charges de l'état minoritaire vers l'état majoritaire des orbitales  $3d$  de Cr. Le MgO présente un caractère isolant et ses interfaces avec les alliages Heusler sont importants dans l'achèvement des TMR élevées. Les matériaux amorphes peuvent être aussi utilisés dans les jonctions comme Al-O. Sakuraba *et al.* [43] ont ainsi obtenu un taux de TMR supérieur à 500% à 0 K dans le cas de jonctions tunnel à base  $Co_2MnSi/Al-O/ Co_2MnSi$  (cf. *Figure 2.8*)

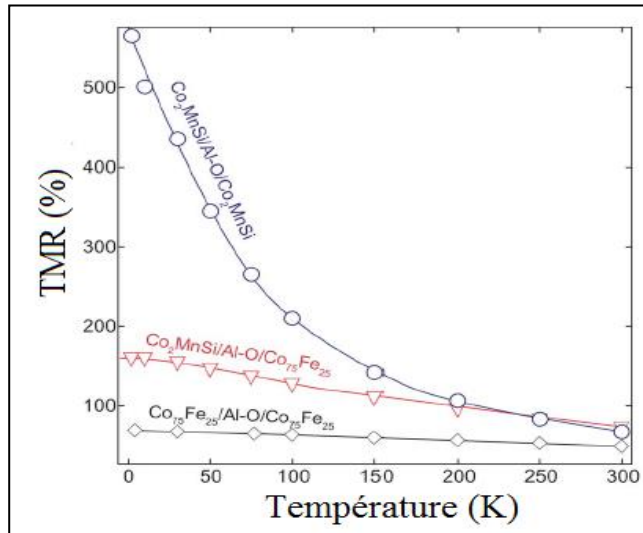


Figure 2.8 : Taux de TMR de  $Co_2MnSi/Al-O/ Co_2MnSi$  en fonction de la température [43]

différents effets selon l'alliage Heusler [41]. Par exemple, la structure d'interface de  $Co_2CrAl/MgO$  présente un caractère demi-métallique pour une interface Cr-Al tandis que le  $Co_2MnSi/MgO$  perd sa demi-métallicité avec une surface à terminaison Mn-Si. Miura et al [42] pensent que cette différence provient d'un transfert de charges de l'état minoritaire vers l'état majoritaire des orbitales  $3d$  de Cr. Le MgO présente un caractère isolant et ses interfaces avec les alliages Heusler sont importants dans l'achèvement des TMR élevées. Les matériaux amorphes peuvent être aussi utilisés dans les jonctions comme Al-O. Sakuraba *et al.* [43] ont ainsi obtenu un taux de TMR supérieur à 500% à 0 K dans le cas de jonctions tunnel à base  $Co_2MnSi/Al-O/ Co_2MnSi$  (cf. *Figure 2.8*)

### 2.4.4 Effets de température de recuit sur la demi-métallicité des alliages Heusler

Les variations dans la température de recuit jouent un rôle important sur la modification de l'ordre chimique qui possède une forte liaison avec la demi-métallicité (cf. section 2.4.2). Par exemple la *figure 2.9* présente la dépendance de la température de recuit sur le rapport de la magnétorésistance tunnel (en anglais tunnel magnetoresistance, TMR) du  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  (CMS) à la température ambiante. Le taux de magnétorésistance augmente avec la température de recuit. Les études précédentes ont indiqué que l'amélioration du taux de TMR par le traitement de recuit provient de l'amélioration de la cristallinité du CMS et de l'orientation de la barrière de MgO [44]. En outre, la dégradation de TMR par recuit à haute température a été provoquée par la diffusion atomique (en particulière les atomes de Mn dans la couche de piégeage) [45].

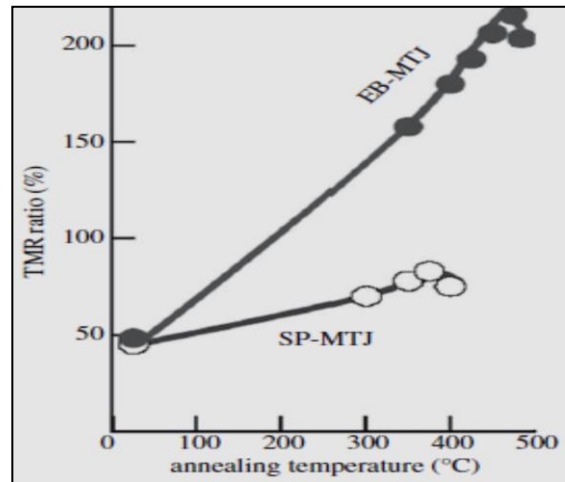


Figure 2.9 : La dépendance en fonction de la température de recuit du rapport de magnétorésistance tunnel. EB-MTJ et SP-MTJ signifient les différentes méthodes de fabrication de la structure de  $\text{MgO}(001)$ -substrat/ $\text{Cr}/\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}/\text{CoFe}/\text{IrMn}/\text{Ta}$  EB-est la méthode de système d'évaporation par faisceau électron et SP- représente la pulvérisation magnétron [46].

La *figure 2.10* présente l'effet de la température de recuit de  $\text{Co}_2\text{FeAl}/\text{MgO}/\text{CoFe}$  sur le taux de magnétorésistance tunnel. Les changements observés sont le résultat de l'augmentation à haute température de la contribution des états d'interface provenant des transitions spin-flip. Ils autorisent la conduction depuis la bande minoritaire et ils augmentent avec la température. Cette augmentation de conductance des électrons à partir de la bande minoritaire stimule la diminution du taux TMR en fonction de la température.

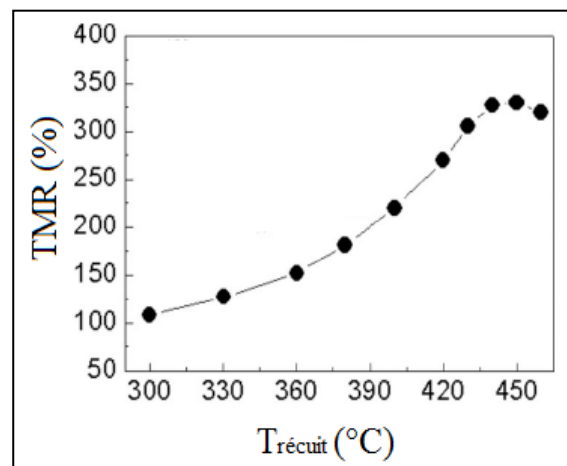


Figure 2.10 : Taux TMR de  $\text{Co}_2\text{FeAl}/\text{MgO}/\text{CoFe}$  en fonction de la température de recuit [47]

Yang et al. [48] ont travaillé sur l'effet magnétorésistance anisotrope\* (en anglais anisotropic magnetoresistance, AMR) des films épitaxiale de  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  (CFS) pour vérifier leur nature de demi-métallicité ou de non demi-métallicité. Ils ont montré que l'évolution structurale de la phase B2 vers la phase  $\text{L}_{21}$  des films CFS augmente avec l'augmentation de la température de recuit, comme elle provoque la diminution de la densité d'état  $d$  dans le canal de spin down (minoritaire). Quand les films CFS sont recuits à  $650^\circ\text{C}$ , le passage de non-demi-métallicité à demi-métallicité est obtenu en améliorant la cristallinité du composé.

## 2.5 Les propriétés magnétique des Heusler à base de cobalt

Dans cette partie, nous allons discuter les propriétés magnétiques des alliages Heusler à base de cobalt en focalisant sur les moments magnétiques et l'interaction d'échange.

### 2.5.1 Magnétisme

Les alliages Heusler possèdent des propriétés magnétiques très intéressantes. On peut étudier dans la même famille d'alliages divers phénomènes magnétiques comme le magnétisme itinérant et localisé, l'antiferromagnétisme et le paramagnétisme de Pauli. Ce comportement magnétique diversifié reflète la nature complexe des interactions d'échange dans ces systèmes. Cependant, la majorité des alliages de Heusler sont ferromagnétiques etaturent pour de faibles champs magnétiques appliqués. L'apparition du ferromagnétisme et du caractère demi-métallique dans ces alliages Heusler pose des questions subtiles et son explication est très compliquée. Récemment, Galanakis *et al.* ont discuté ce problème dans le détail [31]. Selon le nombre d'atomes magnétiques présents dans la cellule élémentaire, plusieurs mécanismes d'échange sont susceptibles de coexister et de se mélanger les uns avec les autres. Par exemple, dans les systèmes à base de Mn ( $\text{X}_2\text{MnZ}$ ) où le moment magnétique total est confiné au Mn, le mécanisme d'échange indirect semble le plus probable en raison de la grande distance séparant les moments magnétiques de Mn. L'hypothèse d'un couplage d'échange indirect entre les atomes de Mn *via* les électrons de conduction permet d'expliquer qualitativement la nature du magnétisme pour ces systèmes. Cependant, dans plusieurs composés Heusler appartenant à cette famille ( $\text{X}_2\text{MnZ}$ ,  $\text{X} = \text{Fe}, \text{Co}, \text{Ni}, \text{Rh}$ ) les atomes X portent un moment magnétique substantiel. Dans ce cas, les choses se compliquent car il y a beaucoup d'interactions d'échange entre les différents atomes magnétiques dont chacune contribue à la formation de l'état magnétique d'une manière coopérative. Par exemple, les

---

\* AMR, découvert sur les métaux de transition ferromagnétique, est un effet dépend de l'orientation de la direction de l'aimantation par rapport à la direction du courant électrique traversant le matériau[49].

propriétés magnétiques du composé quaternaire NiCoMnSb avec trois atomes magnétiques au sein de la cellule élémentaire sont régies par au moins six interactions d'échange différentes.

En conclusion, une description exacte du couplage ferromagnétique dans les alliages Heusler n'est pas véritablement établie. Cependant, dans les études récentes, trois différents mécanismes du couplage [23], [50] ont été pris en compte pour obtenir un bon accord avec les données expérimentales.

### 2.5.2 Le comportement de Slater-Pauling

Dans le cas des métaux de transition et de leurs alliages, les atomes des niveaux d'énergie atomiques  $3d$  et  $4s$  s'élargissent pour former une structure de bande comme dans la *figure 2.2*. La densité d'état de la bande  $d$  étant plus importante que celle de l'orbitale  $s$  au niveau de Fermi, l'aimantation des métaux de transition et leurs alliages provient ainsi essentiellement de la bande  $d$ . Il existe un recouvrement important des orbitales  $d$  des deux atomes voisins et il s'agit alors d'une compétition entre les corrélations électroniques qui tendent à localiser les électrons et leur énergie cinétique de bande qui tend à les délocaliser.

Les alliages Heusler à base de cobalt sont aussi des composés intermétalliques à base de métaux de transitions  $3d$  et ils présentent plutôt un magnétisme localisé par rapport à un caractère itinéraire. L'explication de l'origine du magnétisme de ces alliages est très compliquée mais leurs moments magnétiques varient de façon régulière en fonction du nombre d'électrons de valence et de la structure cristalline. Ce comportement est appelé Slater-Pauling [31], [51], [52].

Slater et Pauling ont découvert que le moment magnétique d'un métal  $3d$  peut être estimé à partir du nombre d'électrons de valence. La *figure 2.11* présente le moment magnétique total en fonction du nombre d'électrons de valence (comportement Slater-Pauling). Cette courbe contient de deux partie : la partie positive ( $+\mu_B/1e$ ) et la partie négative ( $-\mu_B/1e$ ). Les alliages se plaçant sur la courbe négative présentent un magnétisme itinérant tandis que les composants se situant sur la

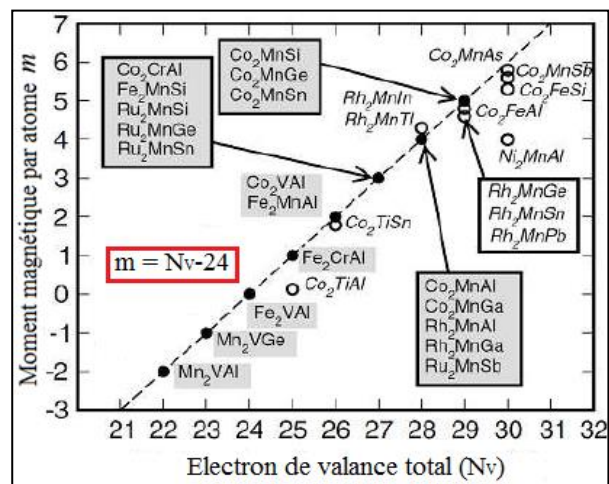


Figure 2.11 : La courbe de Slater-Pauling pour les alliages  $3d$  en fonction du nombre d'électrons de valence [30]

courbe positive montrent plutôt un magnétisme localisé.

Le moment magnétique par atome est assumé être donné par la relation [16]:

$$m \approx N_v - 6 \quad \text{où } N_v \text{ est le nombre d'électrons de valence} \quad (2.2)$$

Comme présenté plus haut, les alliages Heusler à base de cobalt montrent huit états  $d$  minoritaires contenus dans la maille. Il existe un état doublement dégénéré de plus basse énergie  $e_g$ , un état triplement dégénéré de plus basse énergie  $t_{2g}$  et un état triplement dégénéré de plus haute énergie  $t_{1u}$  en dessous du niveau de Fermi. À côté des états  $d$ , il y a un état  $s$  et trois états  $p$  qui ne sont pas comptés dans la structure du gap. Finalement, nous avons douze états minoritaires occupés par maille. Le moment magnétique total est donné par le nombre d'électrons majoritaires en excès ( $N_{maj}$ ) par rapport aux électrons minoritaires ( $N_{min}$ ) [10] :

$$m = N_{maj} - N_{min} \quad (2.3)$$

Le nombre d'électrons de valence par maille est déterminé par :

$$N_v = N_{maj} + N_{min} \quad (2.4)$$

et le moment magnétique total devient :

$$m = N_v - 24 \quad (2.5)$$

cette relation est dite règle de Slater-Pauling généralisée, équivalente au comportement Slater-Pauling pour les alliages binaires des métaux de transition [23]. Puisque les alliages Heusler à base de cobalt possèdent un nombre de valence entier, cette règle est utilisée pour déterminer leurs moments magnétiques [10], [53]

La *figure 2.11* montre que le moment magnétique des alliages Heusler est également contrôlé par l'atome  $Z$ . Par exemple le Si, qui a 4 électrons de valence, possède un moment magnétique plus élevé par rapport aux composés Heusler équivalents contenant Al comme élément  $Z$ . Cet effet provient de l'accroissance du nombre d'électrons  $d$  associés à l'atome  $Z$ . Comme indiqué plus haut, les changements structuraux des alliages Heusler peuvent avoir un effet important sur leurs propriétés magnétiques. Tous les échanges atomiques peuvent changer l'hybridation locale des orbitales. Les moments magnétiques provenant des électrons de valence localisés au niveau des orbitales  $d$  peuvent être affectés par cet échange interatomique.

Le changement de paramètre de maille peut nous servir à décrire le niveau de désordre structural. Par exemple, l'alliage  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  présente un moment magnétique de  $6 \mu_B/\text{f.u.}$  pour la phase  $L2_1$  [54]. Dans le cas de l'échange entre les atomes Co et Fe, le moment magnétique est réduit à  $5.5 \mu_B/\text{f.u.}$ , par contre lors d'un échange entre Co et Si, le désordre conduit à une augmentation du moment magnétique à  $6.05 \mu_B/\text{f.u.}$

## 2.6 Application des alliages Heusler pour les dispositifs magnétorésistances

La première mise en évidence expérimentale de magnétorésistance tunnel en utilisant des électrodes d'alliages Heusler a été rapportée par Inomata et al. En utilisant une électrode inférieure de  $\text{Co}_2\text{Cr}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{Al}$  polycristallin et une l'électrode supérieure en CoFe, ils ont obtenu un taux de 16% à température ambiante [55]. En 2005, Sakuraba *et al.* ont montré une large polarisation en spin (82%) du  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  à  $2^\circ\text{K}$  en utilisant un alliage amorphe Al-O pour la barrière tunnel et CoFe pour l'électrode supérieure [56]. L'utilisation du  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  pour les deux électrodes leur a permis d'obtenir un énorme taux de magnétorésistance tunnel (TMR) à  $2^\circ\text{K}$  de l'ordre de 590%. Cependant, ces dispositifs utilisant des alliages Heusler se caractérisent par une importante dépendance en température de la TMR. Le taux de magnétorésistance tunnel de la jonction  $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Al-O}/\text{Co}_2\text{MnSi}$  diminue à 70% à température ambiante, devenant comparable à celui des TMJs utilisant des électrodes de CoFe [43]. Récemment, des TMRs de 386% à température ambiante ont été observées [57].

Pour les dispositifs à base de magnétorésistance géante (GMR), les valeurs du produit changement de résistance-surface ( $\Delta R.A$ ) obtenues avec les matériaux ferromagnétiques classiques (CoFe ou NiFe) sont seulement de  $1\text{-}2 \text{ m}\Omega\mu\text{m}^2$ . Cela est insuffisant pour les applications telles les têtes de lecture pour des densités d'enregistrement supérieures à  $1 \text{ Tbit/pouce}^2$ . Pour améliorer le produit  $\Delta R.A$ , des efforts considérables sont consacrés à deux pistes: structure de la couche intercalaire et nouveaux matériaux ferromagnétiques présentant une grande diffusion dépendante du spin. L'utilisation des alliages Heusler à base de Co pourrait donc constituer une approche efficace pour améliorer la GMR. Childress *et al.* [58] ont fabriqué une véritable tête de lecture utilisant des alliages Heusler (composition non publiée). La tête de lecture a montré un  $\Delta R.A$  de  $2.3 \text{ m}\Omega\mu\text{m}^2$  et une GMR de 5.5%. Ils ont ainsi démontré la faisabilité d'enregistrements atteignant des densités de  $400 \text{ Gbit/pouce}^2$ . Les valeurs maximales de  $\Delta R.A$  ( $11 \text{ m}\Omega\mu\text{m}^2$ ) à température ambiante ont été obtenues à l'aide d'un dispositif épitaxié de  $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Ag}/\text{Co}_2\text{MnSi}$  [59]. Cependant, l'épaisseur de 10 nm de  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  rend cette tête peu pratique. Avec une structure plus mince

(Co<sub>2</sub>MnGe/Rh<sub>2</sub>CuSn/Co<sub>2</sub>MnGe) et plus pratique pour les têtes de lecture, un  $\Delta R.A$  de 4  $m\Omega\mu m^2$ , obtenu en utilisant des couches de Co<sub>2</sub>MnGe de 3.6 nm d'épaisseur [60], a permis d'obtenir des densités d'enregistrement de 670 Gbit/pouce<sup>2</sup>.

## 2.7 Motivation du travail de thèse

L'idée générale de l'électronique de spin est basée sur le passage du courant d'électrons dans des matériaux ferromagnétiques et d'utiliser l'influence de spin sur la mobilité des électrons dans ces matériaux. Depuis la découverte de la magnétorésistance géante (GMR) par Fert et Grünberg [61], [62] en 1988, ce domaine se développe autour de trois grands défis : augmentation du taux de magnétorésistance, injection de spin d'un matériaux ferromagnétique vers un matériau semi-conducteur et le phénomène de transfert de spin.

La magnétorésistance (MR) est un effet principal dans la spintronique, qui concerne la variation de la résistance électrique d'un conducteur sous l'application d'un champ magnétique. Aujourd'hui, des valeurs très élevées de MR sont hautement recherchées pour le développement des dispositifs spintroniques tels que les mémoires magnétiques (MRAM). Il existe plusieurs types de MR mais les plus utilisées sont la GMR et la magnétorésistance tunnel (TMR). L'effet GMR, observé dans les systèmes de multicouches qui sont composés alternativement d'une couche magnétique et d'une couche métallique non-magnétique, est utilisé généralement dans les capteurs magnétiques et dans les têtes de lecture des disques durs. Un autre effet de magnétorésistance similaire à la GMR, est la TMR qui a été observé dans les structures type jonctions magnétiques tunnel (en anglais magnetic tunnel junctions, MTJ) obtenues en remplaçant la couche séparatrice dans les structures GMR par une fine couche isolante (barrière) comme Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO. Ce taux de MR est proportionnel à la polarisation en spin, P, des électrodes selon le modèle de Jullière [63] d'où la nécessité d'utiliser des électrodes demi-métalliques. L'application principale de la TMR se situe dans la mémoire magnétique à accès aléatoire (en anglais magnetic random access memory : MRAM).

Le deuxième défi de cette spintronique concerne l'injection d'un courant polarisé en spin d'un matériaux ferromagnétique vers un autre matériau semi-conducteur [64] où la désadaptation de résistance entre ces deux matériaux constitue l'obstacle majeur pour cette injection. Il existe deux solutions pour obtenir une injection efficace de spin dans les semi-conducteurs. La première est d'utiliser un semi-conducteur magnétique à la place d'un



ferromagnétique [65]. Cependant, la température de ces semi-conducteurs ferromagnétiques comme GaMnAs [66] reste largement au-dessous de la température du Curie. La deuxième solution consiste à utiliser un matériau ferromagnétique ayant une forte polarisation en spin à la température ambiante tel qu'un demi-métal [65].

Le dernier défi important est le de transfert de spin (spin transfer torque :STT) permettant le contrôle et la manipulation de l'aimantation d'un matériau ferromagnétique nanométrique par un courant polarisé en spin. Depuis la découverte du phénomène STT en 1996 [67], [68], un intérêt considérable a été constaté pour le développement des dispositifs à base de STT tels que les MRAM ou les oscillateurs hyperfréquences. En effet, écrire une information dans les mémoires magnétiques en utilisant un courant polarisé en spin simplifiera leur architecture et réduira leur consommation électrique. Cependant pour être plus compétitif et pour augmenter plus significativement la densité de stockage des mémoires et la vitesse de retournement de l'aimantation, la densité de courant doit être réduite d'avantage. Cette densité de courant est proportionnelle au coefficient d'amortissement de Gilbert et inversement proportionnelle à la polarisation en spin des matériaux utilisés. L'utilisation de certains alliages Heusler pourrait réduire significativement cette densité de courant.

La solution commune et idéale aux différents défis cités au-dessus est l'utilisation des matériaux demi-métalliques tels que les alliages Heusler. Par conséquent, la bonne compréhension et le contrôle précis des propriétés d'alliages Heusler sont d'un intérêt scientifique et technologique certain. Cet aspect est abordé dans ce manuscrit de thèse.

## Bibliographie

- [1] A. Yanase and K. Siratori, “Band Structure in the High Temperature Phase of  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ,” *J. Phys. Soc. Jpn.*, vol. 53, no. 1, pp. 312–317, Jan. 1984.
- [2] Z. Zhang and S. Satpathy, “Electron states, magnetism, and the Verwey transition in magnetite,” *Phys. Rev. B*, vol. 44, no. 24, pp. 13319–13331, Dec. 1991.
- [3] K. Schwarz, “ $\text{CrO}_2$  predicted as a half-metallic ferromagnet,” *J. Phys. F Met. Phys.*, vol. 16, no. 9, pp. L211–L215, Sep. 1986.
- [4] J.-H. Park, Vescovo E., Kim H.-J., Kwon C., Ramesh R., and Venkatesan T., “Direct evidence for a half-metallic ferromagnet,” *Nature*, vol. 392, pp. 794–796, Apr. 1998.
- [5] H. C. Kandpal, G. H. Fecher, and C. Felser, “Calculated electronic and magnetic properties of the half-metallic, transition metal based Heusler compounds,” *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 40, no. 6, pp. 1507–1523, Mar. 2007.
- [6] R. A. de Groot and F. M. Mueller, “New Class of Materials: Half-Metallic Ferromagnets,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 50, no. 25, pp. 2024–2027, Jun. 1983.
- [7] S. Trudel, O. Gaier, J. Hamrle, and B. Hillebrands, “Magnetic anisotropy, exchange and damping in cobalt-based full-Heusler compounds: an experimental review,” *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 43, no. 19, p. 193001, May 2010.
- [8] F. Heusler, “Über magnetische Manganlegierungen,” *Verhandlungen Dtsch. Phys. Ges.*, vol. 5, p. 219, 1903.
- [9] M. S. Gabor, C. Tiusan, T. Petrisor, T. Petrisor, M. Hehn, Y. Lu, and E. Snoeck, “Structural defects analysis versus spin polarized tunneling in  $\text{Co}_2\text{FeAl}/\text{MgO}/\text{CoFe}$  magnetic tunnel junctions with thick MgO barriers,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 347, pp. 79–85, Dec. 2013.
- [10] S. Trudel, O. Gaier, J. Hamrle, and B. Hillebrands, “Magnetic anisotropy, exchange and damping in cobalt-based full-Heusler compounds: an experimental review,” *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 43, no. 19, p. 193001, May 2010.
- [11] M. Belmeguenai, H. Tuzcuoglu, S. M. Chérif, K. Westerholt, T. Chauveau, F. Mazaleyrat, and P. Moch, “ $\text{Cu}_2\text{MnAl}$  thin films grown onto sapphire and MgO substrates: Exchange stiffness and magnetic anisotropy,” *Phys. Status Solidi A*, vol. 210, no. 3, pp. 553–558, Mar. 2013.
- [12] A. Hirohata, M. Kikuchi, N. Tezuka, K. Inomata, J. Claydon, Y. Xu, and G. Vanderlaan, “Heusler alloy/semiconductor hybrid structures,” *Curr. Opin. Solid State Mater. Sci.*, vol. 10, no. 2, pp. 93–107, Apr. 2006.

- [13] R. Y. Umetsu, K. Kobayashi, A. Fujita, R. Kainuma, and K. Ishida, "Phase stability and magnetic properties of  $L2_1$  phase in  $\text{Co}_2\text{Mn}(\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x)$  Heusler alloys," *Scr. Mater.*, vol. 58, no. 9, pp. 723–726, May 2008.
- [14] H. Kijima, T. Ishikawa, T. Marukame, H. Koyama, K. Matsuda, T. Uemura, and M. Yamamoto, "Epitaxial Growth of Full-Heusler Alloy  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  Thin Films on MgO-Buffered MgO Substrates," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 42, no. 10, pp. 2688–2690, Oct. 2006.
- [15] H. J. Elmers, S. Wurmehl, G. H. Fecher, G. Jakob, C. Felser, and G. Schönhense, "Field dependence of orbital magnetic moments in the Heusler compounds  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  and  $\text{Co}_2\text{Cr}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{Al}$ ," *Appl. Phys. Mater. Sci. Process.*, vol. 79, no. 3, pp. 557–563, Aug. 2004.
- [16] S. Wurmehl, G. Fecher, H. Kandpal, V. Ksenofontov, C. Felser, H.-J. Lin, and J. Morais, "Geometric, electronic, and magnetic structure of  $\text{Co}_2\text{FeSi}$ : Curie temperature and magnetic moment measurements and calculations," *Phys. Rev. B*, vol. 72, no. 18, Nov. 2005.
- [17] R. Umetsu, K. Kobayashi, A. Fujita, K. Oikawa, R. Kainuma, K. Ishida, N. Endo, K. Fukamichi, and A. Sakuma, "Half-metallic properties of  $\text{Co}_2(\text{Cr}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{Ga}$  Heusler alloys," *Phys. Rev. B*, vol. 72, no. 21, Dec. 2005.
- [18] P. J. Webster, "Magnetic and chemical order in Heusler alloys containing cobalt and manganese," *J. Phys. Chem. Solids*, vol. 32, no. 6, pp. 1221–1231, Jan. 1971.
- [19] R. A. de Groot and F. M. Mueller, "New Class of Materials: Half-Metallic Ferromagnets," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 50, no. 25, pp. 2024–2027, Jun. 1983.
- [20] M. Hehn, F. Montaigne, and A. Schuhl, "Magnétorésistance géante et électronique de spin." *Techniques de l'Ingénieur l'expertise technique et scientifique de référence*, 10-Nov-2002.
- [21] J. M. D. Coey and M. Venkatesan, "Half-metallic ferromagnetism: Example of  $\text{CrO}_2$  (invited)," *J. Appl. Phys.*, vol. 91, no. 10, p. 8345, 2002.
- [22] Y.-W. Son, M. L. Cohen, and S. G. Louie, "Half-metallic graphene nanoribbons," *Nature*, vol. 444, no. 7117, pp. 347–349, Nov. 2006.
- [23] J. Kübler, A. William, and C. Sommers, "Formation and coupling of magnetic moments in Heusler alloys," *Phys. Rev. B*, vol. 28, no. 4, pp. 1745–1755, Aug. 1983.
- [24] S. Ishida, T. Masaki, S. Fujii, and S. Asano, "Theoretical search for half-metallic films of  $\text{Co}_2\text{MnZ}$  ( $Z = \text{Si}, \text{Ge}$ )," *Phys. B Condens. Matter*, vol. 245, no. 1, pp. 1–8, Jan. 1998.

- [25] K. Inomata, S. Okamura, A. Miyazaki, M. Kikuchi, N. Tezuka, M. Wojcik, and E. Jedryka, “Structural and magnetic properties and tunnel magnetoresistance for  $\text{Co}_2(\text{Cr,Fe})\text{Al}$  and  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  full-Heusler alloys,” *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 39, no. 5, pp. 816–823, Mar. 2006.
- [26] Z. Gercsi and K. Hono, “*Ab initio* predictions for the effect of disorder and quaternary alloying on the half-metallic properties of selected  $\text{Co}_2\text{Fe}$ -based Heusler alloys,” *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 19, no. 32, p. 326216, Aug. 2007.
- [27] T. Block, C. Felser, G. Jakob, J. Ensling, B. Mühling, P. Gütllich, and R. J. Cava, “Large negative magnetoresistance effects in  $\text{Co}_2\text{Cr}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{Al}$ ,” *J. Solid State Chem.*, vol. 176, no. 2, pp. 646–651, Dec. 2003.
- [28] Y. Miura, K. Nagao, and M. Shirai, “Atomic disorder effects on half-metallicity of the full-Heusler alloys  $\text{Co}_2(\text{Cr}_{1-x}\text{Fex})\text{Al}$ : A first-principles study,” *Phys. Rev. B*, vol. 69, no. 14, Apr. 2004.
- [29] X. Xu, Y. Wang, D. Zhang, and Y. Jiang, “Electronic structures and the spin polarization of Heusler alloy  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  surface,” *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 263, p. 012016, Jan. 2011.
- [30] I. Galanakis, P. Mavropoulos, and P. H. Dederichs, “Electronic structure and Slater–Pauling behaviour in half-metallic Heusler alloys calculated from first principles,” *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 39, no. 5, pp. 765–775, Mar. 2006.
- [31] I. Galanakis, P. Dederichs, and N. Papanikolaou, “Slater-Pauling behavior and origin of the half-metallicity of the full-Heusler alloys,” *Phys. Rev. B*, vol. 66, no. 17, Nov. 2002.
- [32] K. Kämper, W. Schmitt, G. Güntherodt, R. Gambino, and R. Ruf, “ $\text{CrO}_2$ —A New Half-Metallic Ferromagnet?,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 59, no. 24, pp. 2788–2791, Dec. 1987.
- [33] S. Picozzi, A. Continenza, and A. Freeman, “Role of structural defects on the half-metallic character of  $\text{Co}_2\text{MnGe}$  and  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  Heusler alloys,” *Phys. Rev. B*, vol. 69, no. 9, Mar. 2004.
- [34] T. M. Nakatani, N. Hase, H. S. Goripati, Y. K. Takahashi, T. Furubayashi, and K. Hono, “Co-Based Heusler Alloys for CPP-GMR Spin-Valves With Large Magnetoresistive Outputs,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 48, no. 5, pp. 1751–1757, May 2012.
- [35] G. H. Fecher and C. Felser, “Substituting the main group element in cobalt–iron based Heusler alloys:  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{1-x}\text{Si}_x$ ,” *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 40, no. 6, pp. 1582–1586, Mar. 2007.
- [36] V. Ksenofontov, M. Wójcik, S. Wurmehl, H. Schneider, B. Balke, G. Jakob, and C. Felser, “Hyperfine magnetic field on iron atoms and Co–Fe disordering in  $\text{Co}_2\text{FeSi}$ ,” *J. Appl. Phys.*, vol. 107, no. 9, p. 09B106, 2010.

- [37] K. Abe, Y. Miura, Y. Shiozawa, and M. Shirai, "Half-metallic interface between a Heusler alloy and Si," *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 21, no. 6, p. 064244, Feb. 2009.
- [38] T. Saito, T. Katayama, A. Emura, N. Sumida, N. Matsuoka, T. Ishikawa, T. Uemura, M. Yamamoto, D. Asakura, and T. Koide, "Electronic and magnetic properties of Heusler alloy  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  epitaxial ultrathin films facing a MgO barrier studied by x-ray magnetic circular dichroism," *J. Appl. Phys.*, vol. 103, no. 7, p. 07D712, 2008.
- [39] K. Nagao, Y. Miura, and M. Shirai, "Half-metallicity at the (110) interface between a full Heusler alloy and GaAs," *Phys. Rev. B*, vol. 73, no. 10, Mar. 2006.
- [40] S. Zarei, S. Javad Hashemifar, H. Akbarzadeh, and Z. Hafari, "Half-metallicity at the Heusler alloy  $\text{Co}_2\text{Cr}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{Al}(001)$  surface and its interface with  $\text{GaAs}(001)$ ," *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 21, no. 5, p. 055002, Feb. 2009.
- [41] Y. Miura, H. Uchida, Y. Oba, K. Abe, and M. Shirai, "Half-metallic interface and coherent tunneling in  $\text{Co}_2\text{YZ}/\text{MgO}/\text{Co}_2\text{YZ}$  (YZ=MnSi,CrAl) magnetic tunnel junctions: A first-principles study," *Phys. Rev. B*, vol. 78, no. 6, Aug. 2008.
- [42] Y. Miura, K. Nagao, and M. Shirai, "Atomic disorder effects on half-metallicity of the full-Heusler alloys  $\text{Co}_2(\text{Cr}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{Al}$ : A first-principles study," *Phys. Rev. B*, vol. 69, no. 14, Apr. 2004.
- [43] Y. Sakuraba, M. Hattori, M. Oogane, Y. Ando, H. Kato, A. Sakuma, T. Miyazaki, and H. Kubota, "Giant tunneling magnetoresistance in  $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Al}-\text{O}/\text{Co}_2\text{MnSi}$  magnetic tunnel junctions," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 88, no. 19, p. 192508, 2006.
- [44] J. Hayakawa, S. Ikeda, F. Matsukura, H. Takahashi, and H. Ohno, "Dependence of Giant Tunnel Magnetoresistance of Sputtered  $\text{CoFeB}/\text{MgO}/\text{CoFeB}$  Magnetic Tunnel Junctions on MgO Barrier Thickness and Annealing Temperature," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 44, no. No. 19, pp. L587–L589, Apr. 2005.
- [45] J. Hayakawa, S. Ikeda, Y. M. Lee, F. Matsukura, and H. Ohno, "Effect of high annealing temperature on giant tunnel magnetoresistance ratio of  $\text{CoFeB}/\text{MgO}/\text{CoFeB}$  magnetic tunnel junctions," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 89, no. 23, p. 232510, 2006.
- [46] M. Oogane and S. Mizukami, "Tunnel magnetoresistance effect and magnetic damping in half-metallic Heusler alloys," *Philos. Trans. R. Soc. Math. Phys. Eng. Sci.*, vol. 369, no. 1948, pp. 3037–3053, Jul. 2011.
- [47] W. Wang, E. Liu, M. Kodzuka, H. Sukegawa, M. Wojcik, E. Jedryka, G. H. Wu, K. Inomata, S. Mitani, and K. Hono, "Coherent tunneling and giant tunneling magnetoresistance in  $\text{Co}_2\text{FeAl}/\text{MgO}/\text{CoFe}$  magnetic tunneling junctions," *Phys. Rev. B*, vol. 81, no. 14, Apr. 2010.

- [48] F. J. Yang, C. Wei, and X. Q. Chen, “Half-metallicity and anisotropic magnetoresistance of epitaxial  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  Heusler films,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 102, no. 17, p. 172403, 2013.
- [49] J.-M. FEDELI and B. DIENY, “Capteurs magnétorésistifs,” *Tech. Ing. Capteurs Méthodes Mes.*, vol. base documentaire : TIB419DUO., no. ref. article : r416, 2014.
- [50] S. Picozzi, A. Continenza, and A. Freeman, “ $\text{Co}_2\text{MnX}$  ( $X=\text{Si}, \text{Ge}, \text{Sn}$ ) Heusler compounds: An ab initio study of their structural, electronic, and magnetic properties at zero and elevated pressure,” *Phys. Rev. B*, vol. 66, no. 9, Sep. 2002.
- [51] J. Slater, “The Ferromagnetism of Nickel,” *Phys. Rev.*, vol. 49, no. 7, pp. 537–545, Apr. 1936.
- [52] L. Pauling, “The Nature of the Interatomic Forces in Metals,” *Phys. Rev.*, vol. 54, no. 11, pp. 899–904, Dec. 1938.
- [53] J. Kübler, “First principle theory of metallic magnetism,” *Phys. BC*, vol. 127, no. 1–3, pp. 257–263, Dec. 1984.
- [54] H. Kandpal, G. Fecher, C. Felser, and G. Schönhense, “Correlation in the transition-metal-based Heusler compounds  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  and  $\text{Co}_2\text{FeSi}$ ,” *Phys. Rev. B*, vol. 73, no. 9, Mar. 2006.
- [55] K. Inomata, S. Okamura, R. Goto, and N. Tezuka, “Large Tunneling Magnetoresistance at Room Temperature Using a Heusler Alloy with the B2 Structure,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 42, no. Part 2, No. 4B, pp. L419–L422, Apr. 2003.
- [56] Y. Sakuraba, J. Nakata, M. Oogane, H. Kubota, Y. Ando, A. Sakuma, and T. Miyazaki, “Huge Spin-Polarization of  $L2_1$  -Ordered  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  Epitaxial Heusler Alloy Film,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 44, no. No. 35, pp. L1100–L1102, Aug. 2005.
- [57] N. Tezuka, N. Ikeda, F. Mitsuhashi, and S. Sugimoto, “Improved tunnel magnetoresistance of magnetic tunnel junctions with Heusler  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$  electrodes fabricated by molecular beam epitaxy,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, no. 16, p. 162504, 2009.
- [58] J. R. Childress, M. J. Carey, S. Maat, N. Smith, R. E. Fontana, D. Druist, K. Carey, J. A. Katine, N. Robertson, T. D. Boone, M. Alex, J. Moore, and C. H. Tsang, “All-Metal Current-Perpendicular-to-Plane Giant Magnetoresistance Sensors for Narrow-Track Magnetic Recording,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 44, no. 1, pp. 90–94, Jan. 2008.
- [59] Y. Sakuraba, K. Izumi, T. Iwase, S. Bosu, K. Saito, K. Takanashi, Y. Miura, K. Futatsukawa, K. Abe, and M. Shirai, “Mechanism of large magnetoresistance in  $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Ag}/\text{Co}_2\text{MnSi}$  devices with current perpendicular to the plane,” *Phys. Rev. B*, vol. 82, no. 9, Sep. 2010.

- [60] K. Nikolaev, P. Kolbo, T. Pokhil, X. Peng, Y. Chen, T. Ambrose, and O. Mryasov, “‘All-Heusler alloy’ current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistance,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, no. 22, p. 222501, 2009.
- [61] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. Van Dau, and F. Petroff, “Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 61, no. 21, pp. 2472–2475, Nov. 1988.
- [62] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn, “Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange,” *Phys. Rev. B*, vol. 39, no. 7, pp. 4828–4830, Mar. 1989.
- [63] M. Julliere, “Tunneling between ferromagnetic films,” *Phys. Lett. A*, vol. 54, no. 3, pp. 225–226, Sep. 1975.
- [64] S. Datta and B. Das, “Electronic analog of the electro-optic modulator,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 56, no. 7, p. 665, 1990.
- [65] A. Fert and H. Jaffrès, “Conditions for efficient spin injection from a ferromagnetic metal into a semiconductor,” *Phys. Rev. B*, vol. 64, no. 18, Oct. 2001.
- [66] Y. Ohno, D.K. Young, B. Beschoten, F. Matsukura, H. Ohno, and D.D. Awschalom, “Electrical spin injection in a ferromagnetic semiconductor heterostructure,” *Lett. Nat.*, vol. 402, pp. 790–792, Dec. 1999.
- [67] J. C. Slonczewski, “Current-driven excitation of magnetic multilayers,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 159, no. 1–2, pp. L1–L7, Jun. 1996.
- [68] L. Berger, “Current-induced oscillations of a Bloch wall in magnetic thin films,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 162, no. 2–3, pp. 155–161, Sep. 1996.





# Chapitre III :

## Techniques expérimentales

---

3.1	Introduction .....	66
3.2	Résonance Ferromagnétique (FMR) .....	66
3.2.1	Montage expérimental.....	66
3.3	Spectroscopie Brillouin (BLS) .....	72
3.3.1	Banc de mesure BLS :.....	72
3.4	Magnétométrie à Effet Kerr (MOKE) .....	78
3.4.1	Banc expérimental magnéto-optique Kerr .....	79
3.4.2	Méthode du couple et susceptibilité initiale inverse sous champ transverse TBIIST (Transverse Bias Initial Inverse Susceptibility and Torque).....	80
	Bibliographie .....	82

### 3.1 Introduction

La résonance ferromagnétique (en anglais, ferromagnetic resonance : FMR), la spectroscopie par diffusion Brillouin de la lumière (en anglais, Brillouin light scattering : BLS) et les magnétométries à effet Kerr et à échantillon vibrant sont les méthodes expérimentales complémentaires que nous avons utilisées durant ce travail de thèse afin de mesurer les propriétés magnétiques (statiques et dynamiques) des couches ferromagnétiques de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  étudiées. Ce chapitre est donc consacré à la présentation des principes et des bancs expérimentaux de ces techniques. Le comportement dynamique de l'aimantation de nos échantillons a été intensivement étudié par résonance ferromagnétique et complété par les mesures de diffusion Brillouin de la lumière. Les techniques de magnétométrie nous ont permis d'aborder le comportement statique.

### 3.2 Résonance Ferromagnétique (FMR)

La technique de résonance ferromagnétique est une technique très répandue permettant d'analyser les propriétés dynamiques de l'aimantation d'une couche mince ferromagnétique. Comme nous l'avons mentionné dans le premier chapitre, le principe général de la FMR est basé sur l'excitation de l'aimantation par un petit champ microonde<sup>1\*</sup> en la faisant précesser autour du champ magnétique effectif. Quand la fréquence de précession de l'aimantation coïncide avec la fréquence microonde, nous atteignons la résonance FMR qui se manifeste par un maximum d'absorption de l'énergie microonde par la couche. Il existe aujourd'hui plusieurs variétés de FMR : la FMR en cavité [1], la FMR avec ligne microruban (MS-FMR) [1] et la FMR avec analyseur de réseau vectoriel (VNA-FMR) [1]. Dans cette thèse, nous avons choisi de travailler avec la technique MS-FMR.

#### 3.2.1 Montage expérimental

La technique FMR est un outil qui s'intéresse à l'absorption des signaux microondes par l'échantillon sous l'effet d'un champ magnétique statique appliqué. En termes plus simples, un spectromètre FMR doit comprendre au moins, une source d'excitation microonde, une ligne de transmission qui relie l'échantillon et la source excitatrice, un électroaimant pour produire le champ magnétique statique et un détecteur pour mesurer l'absorption des signaux microonde.

---

\* Nous utilisons un champ d'excitateur *microonde* parce que la fréquence de précession des matériaux ferromagnétiques se situe dans le domaine microonde s'étendant de 0.3 à 300 GHz par conséquent pour atteindre la résonance, le champ excitateur doit aussi être dans cette gamme.

La MS-FMR de notre laboratoire a été mise en place et implémentée par Mohamed Belmeguenai et Fatih Zighem. Ce banc représenté sur la *figure 3.1*. est composé d'une ligne microruban, sur laquelle l'échantillon (couche mince ou nanostructure) est monté, générant un champ magnétique microonde (radiofréquence :  $h_{rf}$ ) qui excite l'aimantation de la couche. Cette ligne microruban est connectée à un générateur microonde large bande (0.1-20 GHz) ou à un VNA (0.1-40 GHz) de puissance variable (-10 à 10 dBm permettant l'étude des modes d'excitation non linéaire) et à une diode Schottky utilisée pour mesurer la puissance transmise. L'ensemble échantillon-ligne microruban est inséré à l'intérieur de l'entrefer d'un électroaimant générant un champ magnétique qui peut atteindre les 1.9 T. Ce champ magnétique statique est modulé par un champ alternatif d'amplitude 4 Oe et de fréquence 170 Hz afin de permettre une détection synchrone pour améliorer le rapport signal sur bruit. Selon la façon dont l'échantillon est monté sur la ligne microruban, l'ensemble peut tourner (de  $0^\circ$  à  $360^\circ$ ) dans l'entrefer de l'électroaimant ce qui permet de faire des études d'anisotropies (planaire et perpendiculaire).

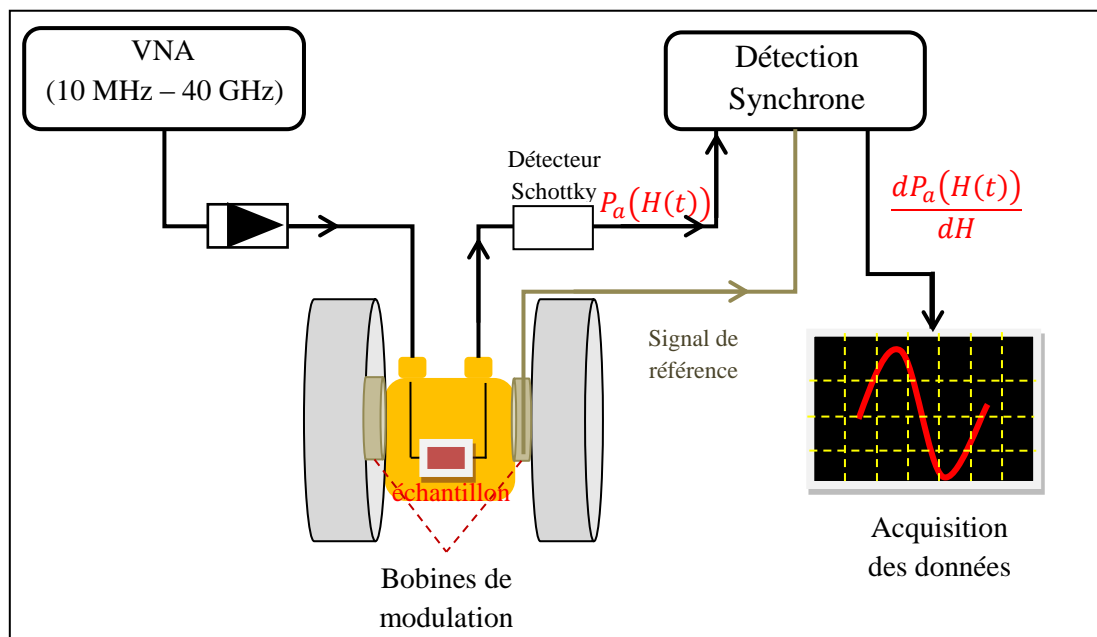


Figure 3.1 : Le montage expérimental MS-FMR

L'ensemble des composants de ce banc est contrôlé via un ordinateur à travers le port GPIB. Le programme pilotant le banc, développé en Labview et opérant sous Windows, offre la flexibilité de contrôler en temps réel l'intensité et le pas du champ magnétique (pour un balayage en champ à fréquence fixe) ou la fréquence d'excitation (pour un balayage en fréquence avec un champ magnétique constant), ainsi que la visualisation et l'acquisition en temps réel des mesures.

Dans ce banc FMR, il est possible de travailler avec deux différents types de balayage comme nous l'avons mentionné dans le premier chapitre:

- Balayage en champ : en faisant varier le champ statique et en fixant la fréquence du champ microonde.
- Balayage en fréquence : en faisant varier la fréquence de champ microonde et en fixant le champ statique

Dans notre laboratoire, selon nos besoins, nous utilisons deux bancs de mesure différents correspondants aux configurations suivantes:

- Banc en configuration planaire : dans ce banc, qui permet des études dans la gamme 0.01-20 GHz, le champ magnétique statique maximal appliqué dans le plan de la couche et dans différentes directions est de 0.22 T. (cf. *Figure 3.2*). Ce banc permet le relevé des dépendances angulaire et fréquentielle des champs de résonance. Ce type de mesure est utilisé pour identifier la nature des anisotropies planaires présentes dans nos échantillons et de quantifier les champs associés.

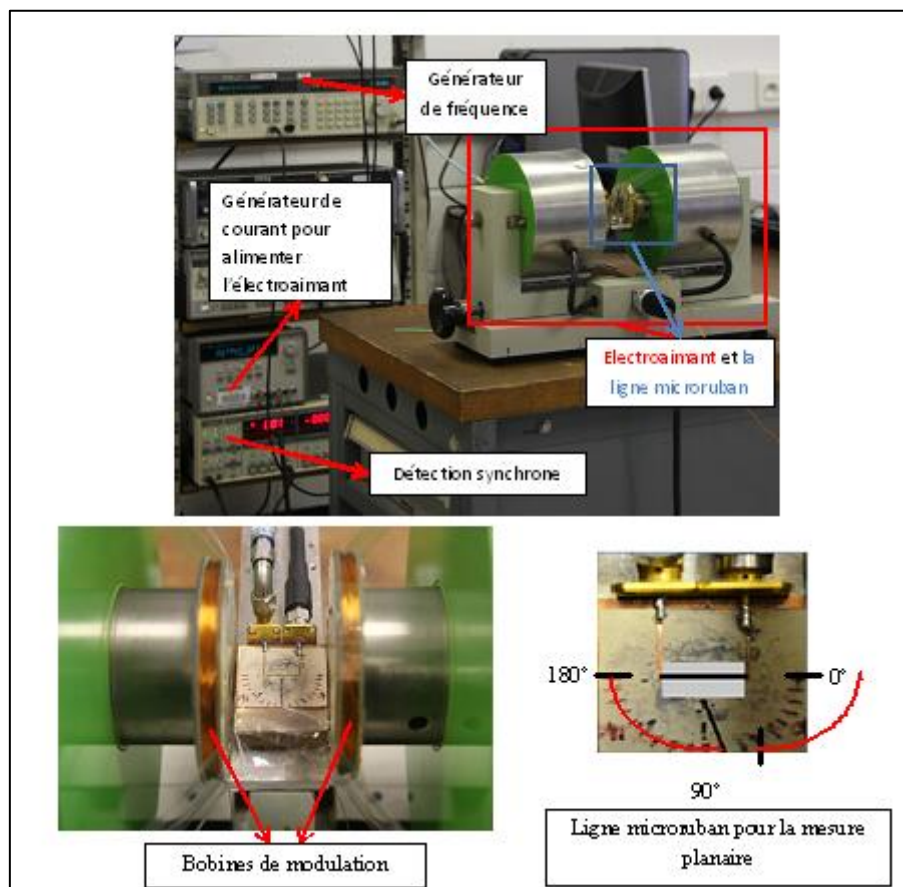
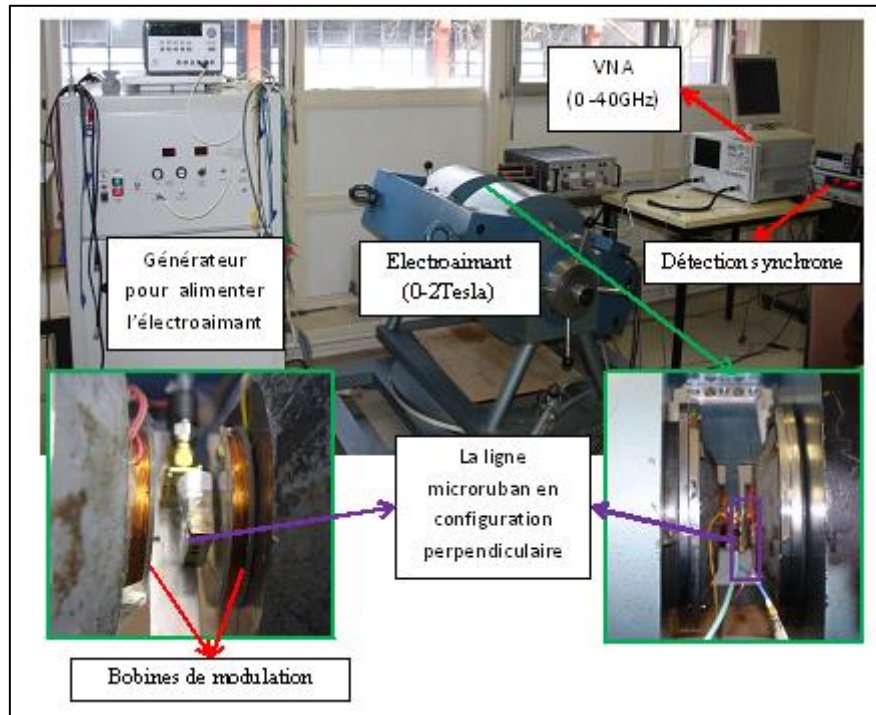


Figure 3.2 : Banc de mesure MS-FMR de notre laboratoire utilisé pour les mesures ne nécessitant pas un champ magnétique élevé (configuration planaire). Le champ magnétique maximum est de 0.22 T.

- Banc en configuration perpendiculaire permettant d'appliquer des champs magnétiques statiques perpendiculaire au plan de la couche allant jusqu'à 1.9 T et mesurer des fréquences de précession dans la gamme 0.1-40 GHz (cf. *Figure 3.3*). L'analyse de ces mesures permet de déterminer le facteur gyromagnétique, l'aimantation effective et la constante d'échange.



*Figure 3.3 : Banc de mesure FMR de notre laboratoire utilisé pour les mesures nécessitant un champ magnétique élevé (configuration perpendiculaire) avec une électroaimant générant jusqu'à 1.9 T.*

### 3.2.1.1 La ligne microruban

La propagation du signal rf peut se faire dans différentes structures planaires comme les lignes microruban (en anglais microstripe (MS)), les lignes coplanaires (en anglais coplanar waveguide (CPW)) et leurs dérivées. La ligne microruban possède une impédance de  $50 \Omega$  [1] présentant une faible perte par rapport aux autres lignes. Pour les mesures MS-FMR, l'échantillon est placé sur une ligne microruban pour exciter son aimantation. Comme illustré sur la *figure 3.4*, cette ligne est constituée par un plan de masse, un séparateur diélectrique comme le saphir et un ruban métallique, souvent en cuivre.

L'impédance caractéristique s'écrit sous la forme :

$$Z_c = \sqrt{\frac{L}{C}} = \frac{h}{w} \sqrt{\frac{\mu}{\epsilon_{\text{eff}}}} \quad (3.1)$$

où  $\epsilon_{eff}$  est la constante diélectrique effective:

$$\epsilon_{eff} = \frac{\epsilon_r + 1}{2} + \frac{\epsilon_r - 1}{2} \frac{1}{\sqrt{1 + 12h/w}} \quad (3.2)$$

où  $\epsilon_r$  représente la constante diélectrique relative

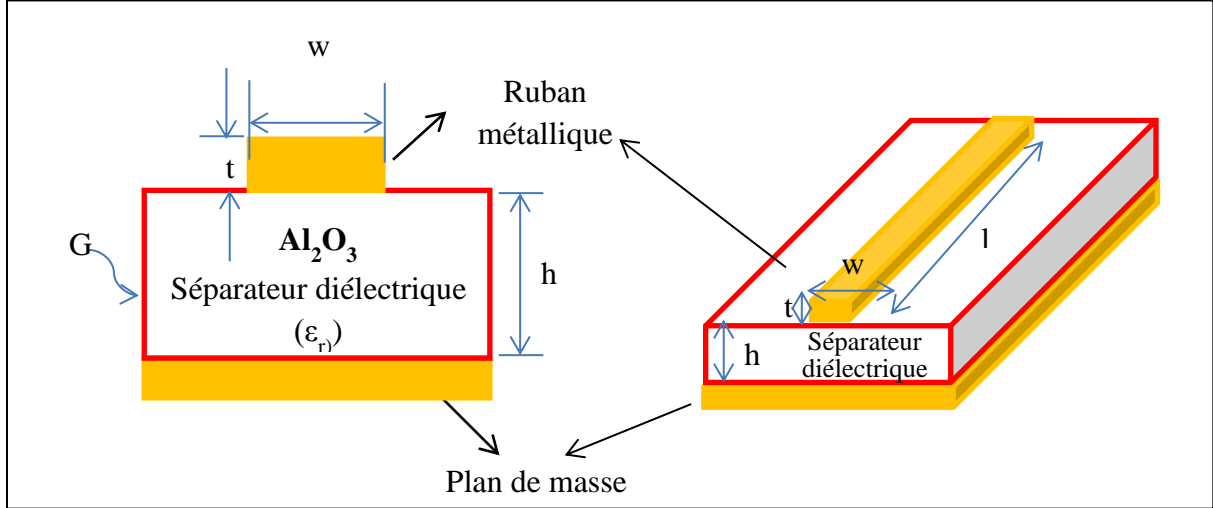


Figure 3.4: Ligne microruban

### 3.2.1.2 Technique de Modulation

En FMR, la mesure directe de la puissance absorbée pourrait s'accompagner d'un faible rapport signal sur bruit limitant la sensibilité de cette technique. Un amplificateur à détection synchrone, permettant de moduler le champ statique, est souvent utilisé dans les bancs FMR pour améliorer le rapport signal sur bruit. L'étape de modulation se réalise en appliquant en plus du champ statique  $H$ , un faible champ alternatif  $h_{ac}$ , de pulsation de modulation  $\omega$ .

$$H(t) = H + h_{ac} \cos(\omega t) \text{ avec } H \gg h_{ac}. \quad (3.3)$$

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

$$P_{abs}(H(t)) = P_{abs}(H + h_{ac} \cos(\omega t)) \quad (3.4)$$

Ce signal  $P_{abs}$  peut aussi être développé en forme de série de Taylor :

$$P_{abs}(H(t)) = P_{abs}(H) + h_{ac} \cos \omega t \frac{dP_{abs}}{dH} + \frac{1}{2} (h_{ac} \cos \omega t)^2 \frac{d^2 P_{abs}}{dH^2} + \dots \quad (3.5)$$

Parallèlement, nous avons aussi un autre signal, dit le signal de référence,  $V_{ref}$ , qui possède la même fréquence que le champ de modulation,  $h_{ac}$ , avec une phase  $\phi$  :

$$V_{ref} = \cos(\omega t + \phi) \quad (3.6)$$

A partir de ce point-là, l'amplification est ensuite continuée par la multiplication des équations 3.5 et 3.6 :

$$\begin{aligned} V_{ref} P_{abs}(H(t)) &= P_{abs}(H) \cos(\omega t + \phi) \frac{dP_{abs}}{dH} + h_{ac} \cos \omega t \cos(\omega t + \phi) + \dots = \\ &P_{abs}(H) \cos(\omega t + \phi) + \frac{h_{ac}}{2} \cos \phi \frac{dP_{abs}}{dH} + \frac{h_{ac}}{2} (\cos 2\omega t + \phi)^2 \frac{dP_{abs}}{dH} + \dots \end{aligned} \quad (3.7)$$

Enfin, compte tenu de cette information, le signal peut être filtré par un filtre passe-bas (ayant une fréquence de coupure de  $\frac{\omega}{2}$  où même inférieur est possible) qui ne garde que la composante continue du signal :  $\frac{h_{ac}}{2} \cos \phi \frac{dP_{abs}}{dH}$ . Il en résulte que puisqu'on module  $H$  on ne détectera pas exactement la puissance  $P_{abs}$ , mais sa dérivée,  $dP_a/dH$ .

Un spectre FMR typique (balayage en champ) est représenté sur la *figure 3.5*. Ce spectre FMR contient deux éléments d'information importants: le champ de résonance ( $H_r$ ) et la largeur de raie ( $\Delta H$ ). Ce champ de résonance dépend des champs internes, de ses variations en fonction de la fréquence d'excitation et de la direction du champ appliqué permettent de déterminer les anisotropies magnétiques, l'aimantation effective et le facteur  $g$ . La largeur de raie FMR est liée à l'amortissement magnétique (relaxation) et ses dépendances en fonction de l'angle et de la fréquence fournissent des informations sur le mécanisme de relaxation magnétique. La position (champ de résonance) et la largeur de raie sont généralement extraites en ajustant les données FMR à la dérivée (en cas de modulation) d'une Lorentzienne asymétrique. Cette asymétrie doit être prise en compte car le couplage entre l'échantillon magnétique et la cavité ou ligne microonde peut mélanger partiellement les parties réelle et imaginaire de la susceptibilité magnétique.

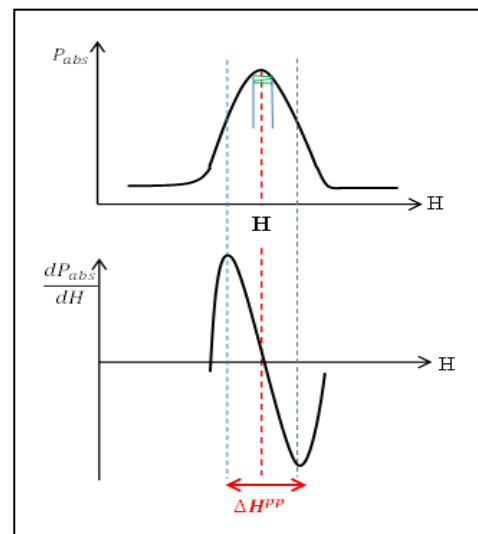


Figure 3.5 : Exemple de spectre FMR et du signal intégré.

Pour les spectres assez symétriques, le champ de résonance et la largeur de raie sont faciles à déterminer. Le champ de résonance est donné par le passage par la ligne zéro (cas de détection synchrone) ou par le maximum de la puissance absorbée (absence de modulation), et la largeur de raie crête à crête  $\Delta H^{PP}$  est égale à la distance entre les points d'inflexion (*figure 3.5*). La largeur de raie crête à crête est liée à la largeur de raie à mi-hauteur  $\Delta H$  (pour les bancs, comme la FMR avec VNA, mesurant l'absorption et non sa dérivée) par :

$$\Delta H^{PP} = \frac{1}{\sqrt{3}} \Delta H \quad (3.8)$$

### 3.3 Spectroscopie Brillouin (BLS)

Comme nous l'avons présenté au premier chapitre, la spectroscopie Brillouin est basée sur une interaction photons-magnons ou photons-phonons. Cette technique permet de mesurer l'énergie des magnons et ainsi le décalage en fréquence induit par le processus de diffusion inélastique de la lumière. D'un point de vue pratique, les géométries de diffusion les plus courantes sont la rétrodiffusion (back scattering) et les diffusions vers l'avant (forward scattering) et arrière (backward scattering). Chaque géométrie de diffusion implique des règles de sélection différentes. Dans le cas de la diffusion vers l'avant, le faisceau se focalise sur un matériau transparent et se collecte après son passage à travers le milieu. La rétrodiffusion est usuellement utilisée dans le cas des matériaux opaques. Dans ce cas, seulement la composante planaire de vecteur d'onde dans le plan,  $k_{||}$ , est conservée lorsqu'on est en présence d'une interface. S'il s'agit d'une incidence rasante, la quantité de mouvement maximale qui est transférée aux magnons,  $\hbar k_{||}$ , est deux fois plus grande par rapport à la quantité de mouvement du photon incident. Nous pouvons calculer le vecteur d'onde transféré à partir de la longueur d'onde et de l'angle d'incidence du laser utilisé :

$$k_{||} = k_i \sin(i) = \frac{4\pi}{\lambda_{\text{Laser}}} \sin(i) \quad (3.9)$$

où  $i$  est l'angle d'incidence mesuré par rapport à la normale à l'échantillon

Les spectres Brillouin présentés dans ce travail de thèse ont été obtenus en analysant la lumière rétrodiffusée.

#### 3.3.1 Banc de mesure BLS

La spectroscopie Brillouin (BLS) de notre laboratoire a été mise en place par Yves Roussigné. Le montage utilisé est présenté sur la *figure 3.6*. L'échantillon est éclairé par une



source laser possédant une longueur d'onde  $\lambda = 532$  nm. Comme nous avons une faible intensité des signaux BLS et une faible variation des fréquences par rapport à la fréquence du laser (fréquence référence), nous utilisons une source laser intense et monochromatique. Sa puissance est limitée par des contraintes liées au risque d'endommagement de l'échantillon. Le laser passe par un séparateur qui sert à le diviser en deux : une petite partie s'utilise ainsi comme faisceau de référence servant à préserver les réglages initiaux de l'interféromètre alors que le second faisceau continue son trajet pour sonder l'échantillon en passant par une lentille de focalisation. Lorsqu'on s'intéresse uniquement aux ondes de spin (magnons) excitées thermiquement dans le matériau, la lumière diffusée par l'échantillon est analysée en incorporant un analyseur à  $90^\circ$  de la direction incidente afin d'éliminer le signal associé aux phonons. Une lentille de focalisation et une lentille collectrice dirigent les photons diffusés vers le spectromètre Fabry-Pérot comprenant deux interféromètres Fabry-Pérot plans (FPP) en série, dits tandem Fabry-Pérot. La longueur d'onde de la lumière traversant l'interféromètre est choisie en fonction de la distance entre les deux lames du FP-1. Chaque spectre est la somme de plusieurs balayages en épaisseur des deux FP. A la sortie du tandem-FPP, un photomultiplicateur récupère le signal diffusé, puis ce signal est analysé par le système d'acquisition. L'échantillon est monté sur un porte échantillon contrôlé par un moteur électrique. Ce moteur sert à déplacer l'échantillon dans son plan et à modifier l'angle d'incidence. Nos mesures sont réalisées en appliquant un champ magnétique à l'échantillon à l'aide d'un électroaimant pouvant délivrer un champ magnétique jusqu'à 1 T.

### 3.3.1.1 Interférométrie en tandem Fabry-Pérot

Un interféromètre de Fabry-Pérot (FP) est constitué par deux miroirs situés l'un en face de l'autre comme illustré dans la *figure 3.7(a)*. Les faces en regards sont planes et parallèles pour obtenir un coefficient de réflexion maximum. Les faces arrière sont légèrement prismatiques pour éviter les réflexions parasites. La lumière incidente (cf. la flèche noire sur *Figure 3.7(a)*) est réfléchiée faisant des réflexions multiples par les deux plans, à l'exception d'une faible transmission à chaque réflexion. Ces lumières incidentes génèrent une interférence en favorisant certaines longueurs d'ondes et le FP ne transmet que ces longueurs d'onde qui interfèrent de manière constructive en respectant la condition [2] :

$$e = p \frac{\lambda}{2}, \text{ avec } p \text{ un entier positif} \quad (3.10)$$

Cette équation nous explique que si la distance entre les miroirs ( $e$ ) est fixée, seulement un nombre discret de longueurs d'onde seront en interférence constructive et seront

transmises par le FP. L'intensité transmise par un interféromètre FP peut être exprimée par [2] :

$$T = \frac{T_{\max}}{1+4F^2 \sin^2\left(\frac{\Delta\phi(\theta)}{2}\right)} \quad (3.11)$$

avec le déphasage,  $\Delta\phi=4\pi e/\lambda$ , [3] entre deux faisceaux interférant. La transmission maximale  $T_{\max}$ , est déterminée par les pertes dans le système et la finesse F.

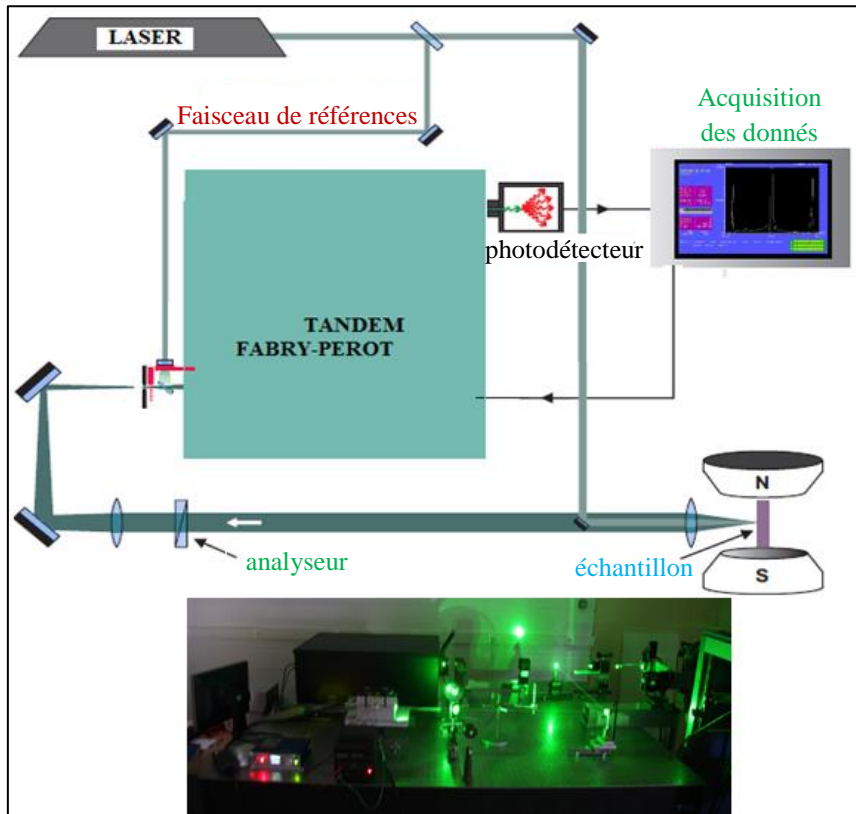


Figure 3.6 : Le schéma du dispositif expérimentale de BLS

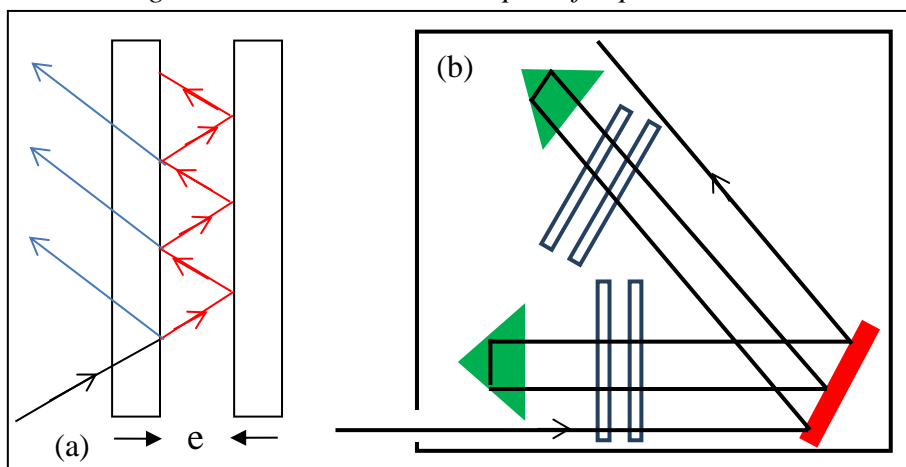


Figure 3.7: (a) Le principe du Fabry-Pérot plan (FP) et (b) Le schéma du tandem-FP

La figure 3.8 présente un exemple de spectre en transmission qui est obtenu en fonction de la longueur d'onde. Deux paramètres jouent un rôle important : le premier est la largeur à mi-hauteur,  $\delta\lambda$ , d'une frange qui correspond à la résolution spectrale et le deuxième est l'intervalle spectral libre (ISL),  $\Delta\lambda$ , qui sépare deux ordres de transmission en termes de longueur d'onde. Ces deux autres grandeurs permettent d'introduire deux paramètres importants qui déterminent la performance du FP :

- La finesse (F) : ce paramètre dépend fortement de la qualité des miroirs utilisés dans le Fabry-Pérot. Il est donné par le rapport entre la séparation de deux ordres de transmission et la résolution [3] :

$$F = \frac{\Delta\lambda}{\delta\lambda} \quad (3.12)$$

- Le contraste (C) : on définit le contraste comme le rapport de l'intensité maximale transmise sur l'intensité minimale :

$$C = \frac{T_{\max}}{T_{\min}} = \left( \frac{1+R}{1-R} \right)^2 = 1 + \frac{4F^2}{\pi^2} \quad (3.13)$$

d'où R est la réflexion.

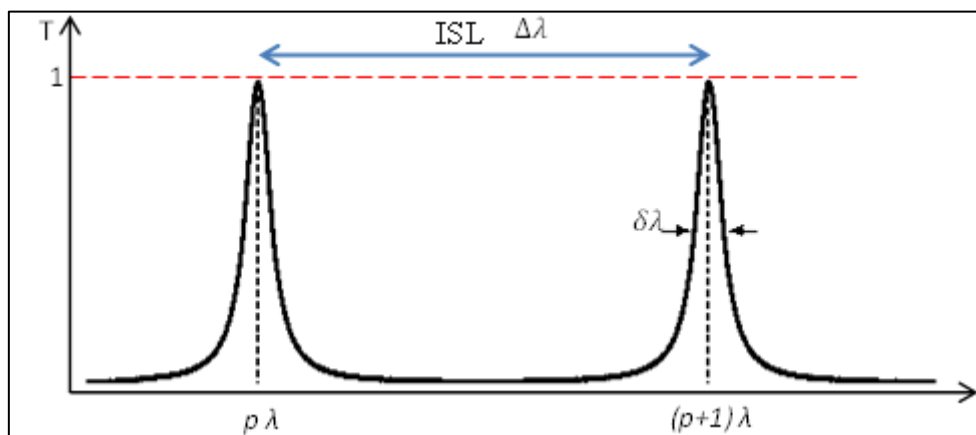


Figure 3.8 : Transmission du Fabry-Pérot en fonction de la longueur d'onde

Il est en principe difficile de faire une interprétation claire et nette des spectres à cause de la superposition des ordres supérieurs (cette cause provient de la périodicité de la fonction de transmission). Une solution à ce problème est d'augmenter l'intervalle spectral libre de deux ordres de transmission en diminuant l'espacement des deux miroirs. Par contre cette augmentation peut influencer négativement la résolution spectrale. D'un autre côté, les signaux inélastiques restent très peu intenses au voisinage de la raie élastique plus lumineuse

ce qui nécessite un contraste élevé du FP pour visualiser les signaux inélastiques. Pour résoudre ces problèmes importants, nous utilisons le système de tandem-FP (cf. *Figure 3.7(b)*) développé par Sandercock [2], [4].

Le tandem-FPP est constitué de la disposition en série de deux FP qui sont désorientés d'un angle  $\theta$  l'un par rapport à l'autre. L'un des deux miroirs de ces deux FP est fixé sur les cales piézoélectriques. L'écartement et le parallélisme des lames sont maintenus constants avec les cales piézoélectriques. Le balayage en fréquence est effectué en variant simultanément les distances entre les miroirs de chaque FP. Il s'agit d'un mouvement relatif entre les deux FP, c'est-à-dire, la variation de l'espacement  $\Delta e$  de premier FP1 va correspondre à un déplacement de  $\Delta e \cdot \sin\theta$  sur le deuxième FP2. La *figure 3.9* illustre la quasi-disparition des ordres voisins de transmission. Comme les ordres voisins du deuxième FP2 sont transmis un peu après par rapport au FP1, la fonction de transmission totale ( $T_{tot} = T_1 \cdot T_2$ ) des ordres voisins devient à peu près nul.

D'un autre côté, l'angle d'inclinaison  $\theta$  est fixé à  $18.1^\circ$  [4] permettant de maintenir les variations des distances entre les miroirs dans un rapport égale à  $\frac{e_1}{e_2} = \frac{1}{\cos\theta}$  d'où  $\cos 18.1^\circ \cong 0.95$ . Il en résulte un élargissement artificiel de l'intervalle spectral libre qui évite les confusions liées à des recouvrements d'ordre d'interférences différents [5].

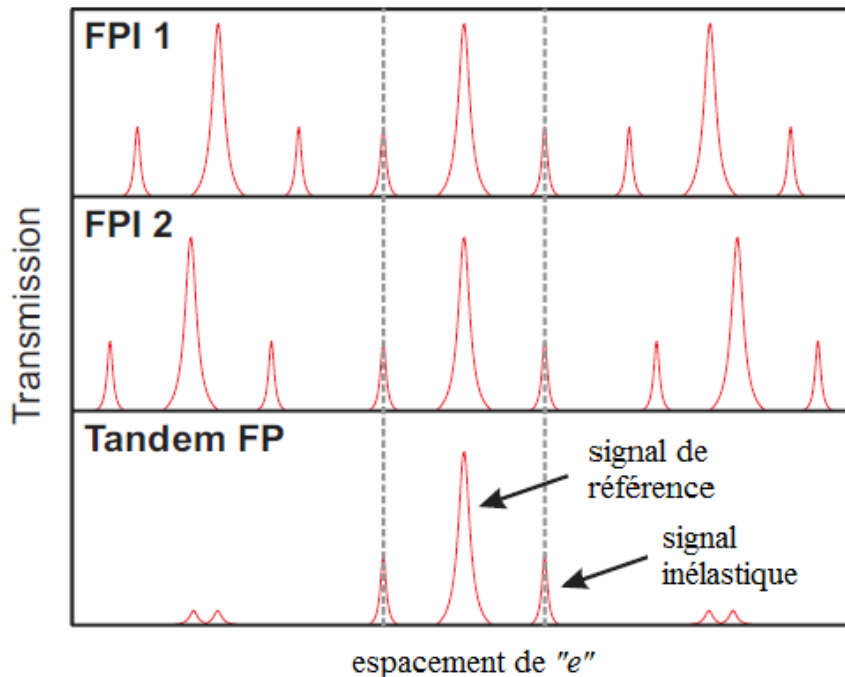


Figure 3.9 : Les fonctions de transmission des deux FP seuls et du tandem FP [6].

Le problème de contraste est résolu en utilisant un système de multi-passages et dans notre cas, il s'agit d'un interféromètre tandem 2x3 passages.

### 3.3.1.2 Les propriétés des spectres Brillouin dans les couches minces

Nous considérons un milieu magnétique semi-infini, la présence d'une interface crée un mode de surface. Dans ce cas, on peut obtenir deux raies différentes : une raie Stokes et une raie anti-Stokes.

Si une couche est assez épaisse, il existe deux modes de surface, associés aux deux interfaces de la couche, possédant des vecteurs d'ondes opposés mais, à cause de l'absorption de la lumière, on ne peut visualiser qu'un seul des deux modes. Pour une couche assez épaisse, on peut obtenir une asymétrie entre les deux raies Stokes et anti-Stokes du spectre Brillouin du fait que l'amplitude de la partie dynamique de l'aimantation est plus grande au niveau de la surface éclairée.

Il existe deux types de modes dans une couche mince. Le premier est le mode Damon Eschbach (DE), qui est un mode dipolaire de surface, nous donne des informations importantes sur le comportement dynamique de l'aimantation. Le profil de l'amplitude peut changer dans l'épaisseur de la couche magnétique et peut croître ou décroître exponentiellement, c'est ainsi qu'il peut présenter une intensité différente dans la partie Stokes et anti-Stokes. Si on inverse le sens du champ appliqué à la couche, les rapports d'intensité seront inversés.

Le deuxième type de modes sont des modes de volume dits stationnaires (Perpendicular Standing Spin Waves) qui dépendent de la composante perpendiculaire du vecteur d'onde, ( $\vec{k}_\perp$ ) dont la norme est donnée par l'expression  $k_\perp = n.2\pi/d$  où  $d$  est l'épaisseur de la couche magnétique et  $n$  est un nombre entier. Un exemple de spectre BLS illustrant les deux types de modes est présenté sur la *figure 3.10*.

L'étude de ces deux familles de modes permet de déterminer les paramètres magnétiques principaux comme la constante d'échange ( $A_{éch}$ ), l'aimantation effective  $4\pi M_{eff}$  et la constante d'anisotropie de surface ( $K_s$ ) par analyse de la dépendance de leur fréquences en fonction du champ magnétique appliqué et en fonction du vecteur d'onde. Ces paramètres sont obtenus par ajustement des spectres expérimentaux et simulés à l'aide d'un programme développé par Yves Roussigné [7].

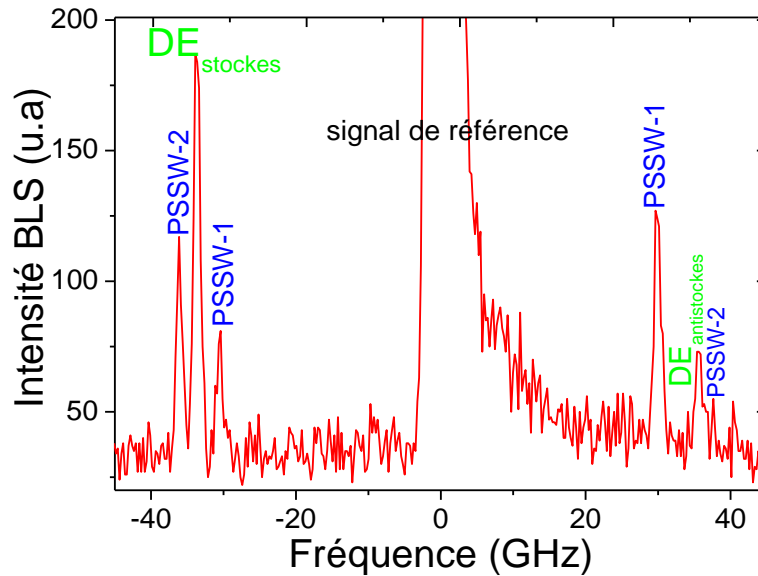


Figure 3.10 : Spectre BLS d'une couche de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  de 70 nm d'épaisseur obtenu pour un champ appliqué 0.5 T et  $\vec{k}_{11} \cong 1.67 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$ .

### 3.4 Magnétométrie à Effet Kerr (MOKE) \*

Les effets magnéto-optique sont basés sur l'interaction entre la lumière et un matériau aimanté. L'un de ces effets est l'effet de Kerr qui est un effet magnéto-optique en réflexion : quand une lumière polarisée linéairement est appliqué sur un matériau magnétique aimanté, l'onde électromagnétique réfléchi voit sa polarisation subir une rotation et une ellipticité. L'aimantation du matériau induit une modification de l'onde électromagnétique.

La magnétométrie MOKE est un outil efficace et puissant pour étudier les propriétés magnétiques statiques des couches minces et ultra mince. Il présente plusieurs avantages :

- Il permet de déterminer la distribution spatiale de l'aimantation
- Il permet de travailler sous vide ou *ex situ*
- Il permet des mesures même à haute température

Il existe trois géométries pour l'effet Kerr en fonction de l'orientation de l'aimantation par rapport au plan d'incidence de l'onde (cf. Figure 3. 11). Si l'aimantation est perpendiculaire au plan d'incidence, on parle de géométrie Kerr transverse. Elle ne présente pas particulièrement un changement de rotation de la lumière réfléchi mais touche à l'intensité de la lumière. Si l'aimantation est dans le plan d'incidence et est perpendiculaire à

\* Cette partie est préparée en bénéficiant de l'article de Dominique Berling et al. [8] et de la thèse de Stephan Zabrocki [9].

la surface de l'échantillon, on parle de l'effet Kerr polaire. Cet effet est maximal pour un angle d'incidence nul. Dans le cas de la géométrie Kerr longitudinale, l'aimantation est dans le plan d'incidence mais cette fois-ci elle se trouve parallèle à la surface de l'échantillon.

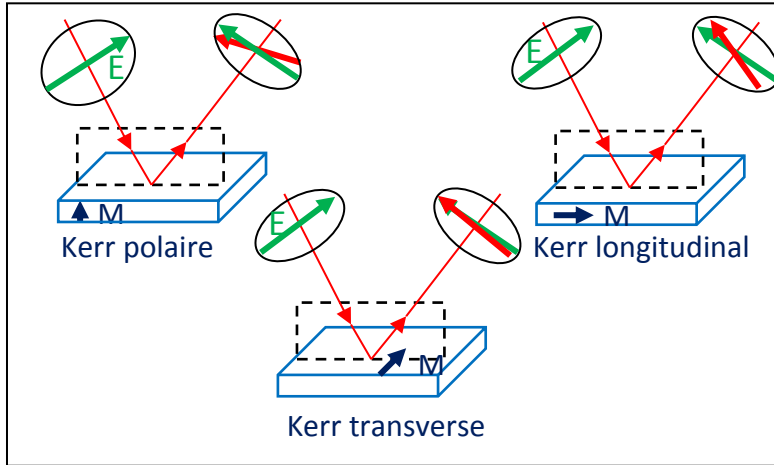


Figure 3.11: Les différentes géométries associées à l'effet Kerr

### 3.4.1 Banc expérimental magnéto-optique Kerr

Dans ce travail de thèse, la magnétométrie par effet Kerr longitudinale a été utilisée pour mesurer des cycles d'hystérésis. Ces mesures ont été faites à l'Institut de Sciences des Matériaux de Mulhouse (IS2M) en collaboration avec Dominique Berling. Dans ce banc qui utilise une technique de modulation de phase photo-élastique où le modulateur photo-élastique (PEM) est couplé à une détection synchrone (Lock-In) pour améliorer le rapport signal sur bruit, la source lumineuse utilisée est un laser ( $\lambda = 645$  nm) qui a une intensité très stable. Le faisceau laser suit un trajet à travers différents composants optiques et électroniques. Premièrement, il passe par un polariseur de Glan-Thomson qui permet d'assurer une polarisation rectiligne de faisceau. Il existe deux types de polarisation : s et p qui correspondent respectivement à une polarisation incidente perpendiculaire et parallèle au plan d'incidence. Ensuite le faisceau incident se réfléchit sur l'échantillon plongé dans un champ magnétique. Après la réflexion sur l'échantillon, il passe par le PEM qui a un axe principal perpendiculaire par rapport au plan d'incidence du faisceau laser. Le PEM assure le décalage de phase temporaire entre les composantes s et p de la réponse magnéto-optique elliptique à la fréquence  $f_0 = 50$  kHz avec une liaison de :

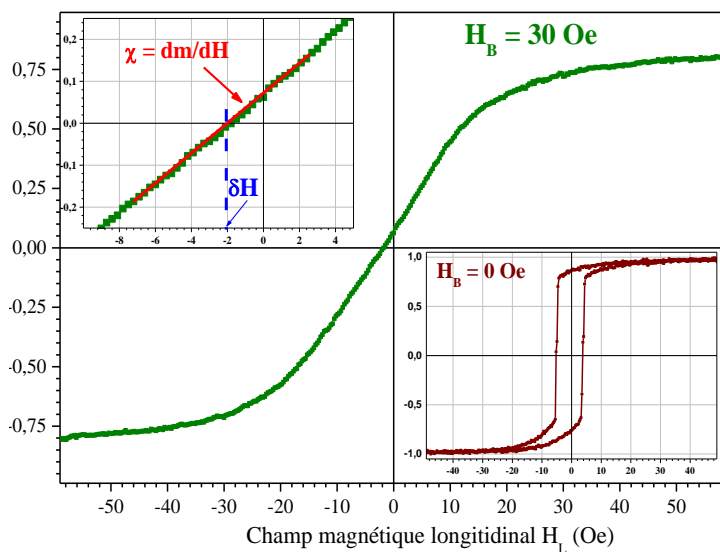
$$\varphi_H = \varphi_{H,0} \sin(2\pi f_0 t) \quad (3.14)$$

Un analyseur et une lentille collectent les signaux sur une photodiode connectée à un amplificateur synchrone Lock-In accordé à la fréquence du PEM. Le signal détecté à  $f_0$  est proportionnel à l'ellipticité Kerr. Le signal détecté à  $2f_0$  est proportionnel à la rotation Kerr.

L'acquisition des données et la rotation de l'échantillon sont contrôlées par un programme de Visual Basic et on obtient des résultats de la composante de l'aimantation en mode longitudinal.

### 3.4.2 Méthode du couple et susceptibilité initiale inverse sous champ transverse TBIIST (Transverse Bias Initial Inverse Susceptibility and Torque)

Dans cette technique (TBIIST transverse biased initial inverse susceptibility and torque) [8], un champ magnétique longitudinal  $H_L$  (parallèle au plan d'incidence) et un champ transverse  $H_B$  (perpendiculaire au plan d'incidence) sont appliqués dans le plan de la couche mince. La composante longitudinale d'aimantation réduite ( $m_L$ ) est ensuite mesurée en fonction de  $H_L$  pour diverses directions de  $H_L$  dans un banc classique de magnéto-optique Kerr en géométrie longitudinale. A partir des cycles d'hystérésis mesurés  $m_L(H_L)$ , la susceptibilité initiale inverse ( $\chi^{-1}$ ) et le champ de décalage ( $\delta H$ ), associés aux dérivées seconde et première de l'énergie d'anisotropie magnétique respectivement, sont obtenus (cf. *Figure 3.12*). L'analyse des valeurs mesurées de  $\chi^{-1}$  et de  $\delta H$ , en fonction de la direction du champ appliqué, par décomposition de l'énergie d'anisotropie en série de Fourier permet alors facilement d'identifier les diverses contributions de différentes symétries à l'anisotropie magnétique et donne les valeurs précises de leurs amplitudes et de l'orientation de leurs axes principaux. Les contributions d'ordre supérieur non linéaires (quadratiques) de  $m_L$  ainsi que des contributions polaires ou autres contributions au signal Kerr sont soigneusement déterminées et prises en compte dans les analyses.



*Figure 3.12: Illustration de la détermination expérimentale de la susceptibilité transverse initiale ( $\chi$ ) et de décalage en champ ( $\delta H$ ) pour une couche de Fe de 90 monocouche d'épaisseur: le champ  $H_L$  correspond à  $m_L=0$  et la pente autour de  $m_L=0$  donnent respectivement  $\delta H$  et  $\chi$ . Les cycles d'hystérésis correspondant aux champs transverses ( $H_B$ ) de 0 Oe et 30 Oe sont également représentés. Cette figure est fournie par D. Berling (Université Haute Alsace).*

Cette méthode TBIIST n'a sans doute ni la même puissance ni la réputation des techniques FMR, mais est complémentaire de la FMR, en particulier pour les échantillons présentant de



faibles signaux non détectables par les méthodes FMR. Nous allons montrer que la TBIIST est une technique statique puissante et sensible pour l'étude des anisotropies magnétiques. Elle fournit en particulier une valeur précise de l'intensité du champ d'anisotropie et détermine avec précision l'orientation des axes principaux d'anisotropie.

## Bibliographie

- [1] C.-K. Lo, “Instrumentation for Ferromagnetic Resonance Spectrometer,” in *Ferromagnetic Resonance - Theory and Applications*, O. Yaln, Ed. InTech, 2013.
- [2] J. R. Sandercock, “Tandem Fabry-Perot Interferometer TFP-1, Operateur Manual.” JRS Scientific Instruments.
- [3] B. E. A. Saleh, Teich, and John Wiley & Sons, *Fundamentals of photonics*. New York: Wiley, 1991.
- [4] B. Hillebrands, “Progress in multipass tandem Fabry–Perot interferometry: I. A fully automated, easy to use, self-aligning spectrometer with increased stability and flexibility,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 70, no. 3, p. 1589, 1999.
- [5] C. Dugautier, “Réalisation d’un dispositif interférométrique du type Fabry-Pérot multipassage, de mesure de diffusion inélastique de la lumière,” Paris XIII, Paris, 1978.
- [6] O. Gaier, “A study of exchange interaction, magnetic anisotropies, and ion beam induced effects in thin films of Co<sub>2</sub>-based Heusler compounds,” Universität Kaiserslautern, 2009.
- [7] Y. Roussigné, F. Ganot, C. Dugautier, P. Moch, and D. Renard, “Brillouin scattering in Co/Cu/Co and Co/Au/Co trilayers: Anisotropy fields and interlayer magnetic exchange,” *Phys. Rev. B*, vol. 52, no. 1, pp. 350–360, Jul. 1995.
- [8] D. Berling, S. Zabrocki, R. Stephan, G. Garreau, J. L. Bubendorff, A. Mehdaoui, D. Bolmont, P. Wetzal, C. Pirri, and G. Gewinner, “Accurate measurement of the in-plane magnetic anisotropy energy function in ultrathin films by magneto-optics,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 297, no. 2, pp. 118–140, Feb. 2006.
- [9] S. Zabrocki, “Corrélation entre la morphologie et les propriétés magnétique des couches minces de Fer sur Silicium (111),” Université Haute-Alsace, Mulhouse, 2007.

# Chapitre IV :

## Effet de l'épaisseur et du substrat sur les propriétés magnétiques et structurales de couches minces $\text{Co}_2\text{FeAl}$

---

4.1	Introduction .....	84
4.2	Préparation des échantillons .....	85
4.3	Les propriétés structurales .....	86
4.4	Les propriétés magnétiques .....	91
4.4.1	Quelques précisions sur le modèle utilisé .....	91
4.4.2	Propriétés statiques .....	94
4.4.3	Propriétés magnétiques dynamiques .....	98
4.5	Conclusion .....	112
	Bibliographie .....	115

## **4.1 Introduction**

L'un des alliages Heusler, à base de Co, les plus intéressants est le Co<sub>2</sub>FeAl (CFA). Il possède une grande température de Curie ( $T_C = 1000$  K) et, par conséquent, est prometteur pour des applications pratiques. En effet, il pourrait conduire à des taux de magnétorésistance tunnel élevés (360% à température ambiante)[1], [2] quand il est utilisé comme électrode dans les jonctions magnétiques tunnel. En outre, comme nous le montrons dans ce chapitre, le CFA présente l'un des plus faibles coefficients d'amortissement magnétiques observés jusqu'à présent, ce qui devrait réduire significativement les densités de courant nécessaires pour retourner l'aimantation dans les dispositifs à base de transfert de spin. Cependant, l'intégration de CFA en tant qu'électrode ferromagnétique dans les dispositifs spintroniques à faible consommation nécessite de bonnes connaissances permettant le contrôle précis de ses propriétés magnétiques, telles que son aimantation à saturation, son anisotropie magnétique, sa constante d'échange, son facteur gyromagnétique ainsi que les différents mécanismes d'amortissement régissant son comportement dynamique.

D'autre part, les propriétés structurales de ces couches minces sont étroitement liées aux propriétés du substrat sur lequel elles sont déposées. Ainsi, un substrat amorphe conduit à des couches polycristallines ou amorphes du fait de l'absence de directions préférentielles de croissance. Si, par contre, le substrat possède une surface ordonnée, les premiers atomes de la couche venant de se déposer sur celle-ci s'organisent de telle sorte que l'énergie de liaison entre ces atomes et le substrat soit minimisée. Il est donc énergétiquement favorable pour les atomes du film de dupliquer la structure cristalline du substrat. L'empilement subséquent des atomes du film se traduira par une croissance épitaxiale. Il est donc indispensable d'étudier les effets du substrat, et de l'épaisseur sur les propriétés magnétiques et structurales de ces couches de Co<sub>2</sub>FeAl.

Dans ce chapitre, nous avons utilisé la diffraction des rayons X (XRD), la résonance ferromagnétique en ligne micro-ruban (MS-FMR) sous champs magnétiques appliqués dans le plan et perpendiculairement au plan de la couche, la diffusion Brillouin de la lumière (BLS) et, enfin, la technique de susceptibilité transverse initiale inverse avec champ transverse (TBIIST), afin d'analyser complètement la corrélation entre les propriétés structurales et magnétiques (statiques et dynamiques) des couches minces de Co<sub>2</sub>FeAl de différentes épaisseurs déposées sur des substrats de MgO (001), de Si (001) et SrTiO<sub>3</sub>(001). La dépendance angulaire, dans le plan, des champs de résonance est utilisée pour identifier les types des anisotropies et, donc, évaluer les champs d'anisotropie qui leur sont associés.

L'analyse complète des champs de résonance (en configurations planaire et perpendiculaire) déduits des spectres du mode de précession uniforme et des modes d'ondes de spin stationnaires perpendiculaires (PSSW) conduit à la détermination de la plupart des paramètres magnétiques: aimantation effective, facteur gyromagnétique, constante d'échange et champs d'anisotropie. En outre, les variations de la largeur de raie FMR en fonction de l'orientation du champ magnétique appliqué dans le plan et en fonction de la fréquence d'excitation sont utilisés afin d'identifier les mécanismes responsables de la relaxation qui conduisent à l'élargissement des raies, ce qui permet ainsi d'évaluer les paramètres qui contrôlent les amortissements intrinsèque (coefficient de Gilbert) et extrinsèque (processus de diffusion à deux magnons, inhomogénéité et mosaïcité).

## 4.2 Préparation des échantillons

Dans ce travail de thèse, toutes les couches minces de CFA sont élaborées *via* notre collaboration avec le centre de supraconductivité, spintronique et sciences de surface à l'Université Technique de Cluj-Napoca en Roumanie (Mihai Gabor et son équipe). Les couches minces de CFA ont été déposées, en utilisant un système de pulvérisation à magnétron avec des pressions de base inférieures à  $3 \times 10^{-9}$  Torr, sur les substrats de MgO (001), de  $SrTiO_3$ (STO) et de Si(001) recouvert par une couche de  $SiO_2$  de 50 nm d'épaisseur obtenue par oxydation thermique de Si. Pour les substrats de MgO et de Si, avant le dépôt des couches de CFA, une couche tampon de MgO d'épaisseur 4 nm a été déposée à température ambiante, sur les deux substrats, par pulvérisation cathodique en mode RF à partir d'une cible polycristalline de MgO sous une pression d'Ar de 15 mTorr. Dans le cas du substrat STO, il a été recouvert par une couche de CoFe de 3 nm pour pallier aux difficultés de dépôt de MgO sur STO et pour assurer la croissance épitaxiale du CFA sur STO. Des couches de CFA d'épaisseurs variables ( $10 \text{ nm} \leq d \leq 115 \text{ nm}$ ) ont été ensuite déposées à température ambiante par pulvérisation cathodique en mode DC sous une pression d'Ar de 1 mTorr, à une vitesse de 0.1 nm/s. Enfin, les couches CFA ont été recouvertes par une bicouche de MgO (4 nm)/Cr(10 nm), de MgO(4 nm)/Ta(10 nm) ou de Cr (5nm) tel que le montre la *figure 4.1*. Après la croissance des multicouches, les structures sont recuites *ex-situ* à 600°C pour les substrats de Si et MgO et à 480°C pour STO pendant 15 minutes dans un vide inférieur à  $3 \times 10^{-8}$  Torr. La couche de 10 nm déposée sur Si a été initialement recuite à 400 °C et par la suite à 600 °C. Pour éviter les problèmes d'interdiffusion à cause de l'absence de la barrière MgO, les couches CFA déposées sur STO ont été recuites à une faible température (480°C).

Vu la très bonne qualité des couches CFA déposées sur MgO par rapport à celles déposées sur Si et STO, la discussion des propriétés structurales et magnétiques, présentée dans la suite de ce chapitre, sera principalement dédiée à ces couches. Les propriétés des couches déposées sur Si et STO seront ensuite brièvement présentées en insistant sur leur différence avec celles déposées sur MgO.

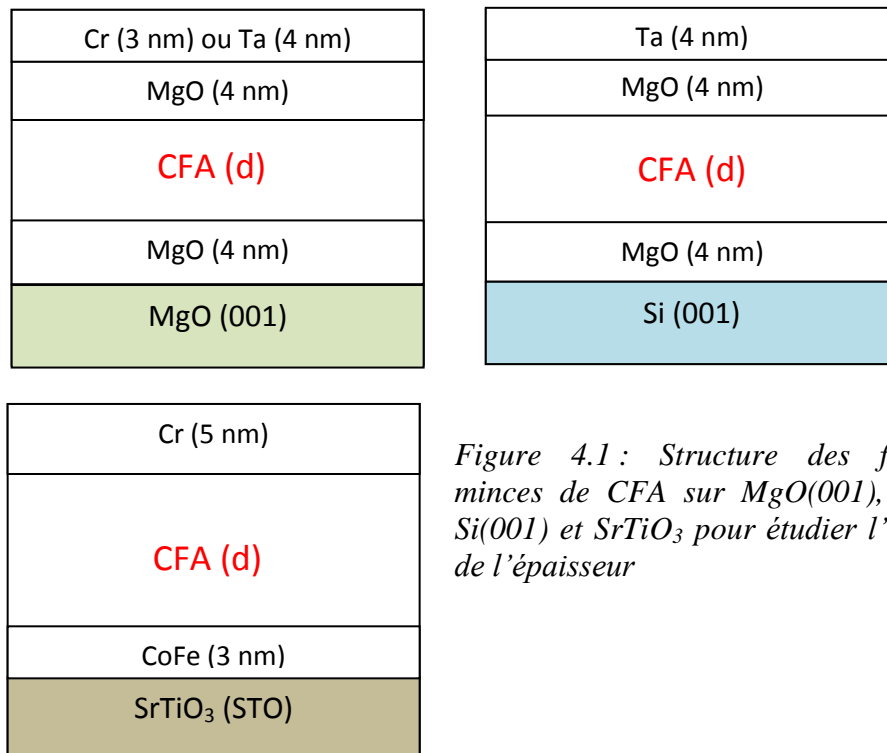


Figure 4.1 : Structure des films minces de CFA sur MgO(001), sur Si(001) et SrTiO<sub>3</sub> pour étudier l'effet de l'épaisseur

### 4.3 Les propriétés structurales

La figure 4.2 montre les diagrammes  $\theta$ - $2\theta$  de diffraction des rayons X pour les couches CFA de différentes épaisseurs déposées sur MgO, Si et STO. Ces diagrammes de diffraction montrent que, outre les pics (001) du substrat MgO, les échantillons recouverts d'une couche de Cr (Figure 4.2(a):  $\lambda = 0,15406$  nm) présentent seulement deux pics qui correspondent aux raies (002) et (004) des couches de CFA. Quant aux films CFA protégés par une couche de Ta (Figure 4.2(b):  $\lambda = 1,7902$  Å), ils montrent un pic supplémentaire (à environ  $2\theta = 63^\circ$ ) résultant de la raie (002) de la couche de Ta. Pour les couches minces déposées sur Si, les diagrammes de diffraction révèlent que l'axe (011) est perpendiculaire à leurs plans. Les raies satellites très étroites présentes sur la figure 4.2(c) sont dues à la faible résolution de notre système de rayons X, différent de celui qui a été utilisé pour l'obtention des spectres des figures 4.2(a) et 4.2(b). Le substrat de Si dégrade donc fortement la croissance des couches CFA. Cette orientation (011) défavorise l'utilisation des composés

CFA déposés sur Si dans les dispositifs spintroniques car selon Oogane [3], la texture (001) des composés à base de Co est essentielle puisque les atomes de Co à l'interface pourraient briser le caractère semi-métallique des alliages Heusler avec une texture (011).

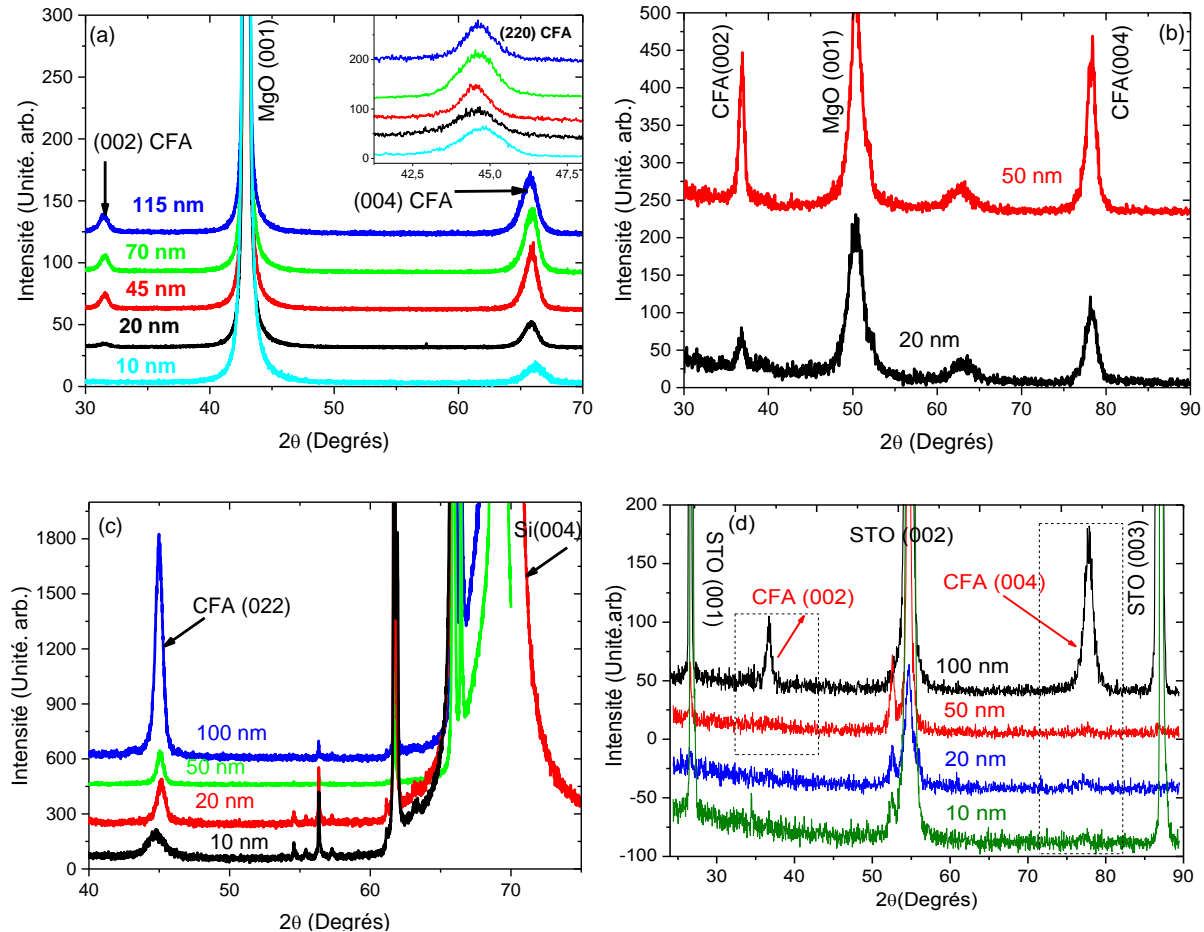


Figure 4.2 : Diagrammes de diffraction X pour les couches CFA déposées sur MgO et recouvertes (a) d'une couche de Cr (b) recouvertes d'une couche de Ta, (c) déposées sur un substrat de Si et recouvertes de couche de Ta et (d) déposées sur un substrat de STO. Les sources de rayons X sont Co pour (b) et (d) et Cu pour (a) et (c).

Dans le cas des couches déposées sur STO (Figure 4.2(d)), les diagrammes de diffraction X montrent une épitaxie hors du plan. Les pics de diffraction (002) et (004) du CFA sont nettement visibles pour la couche la plus épaisse (100 nm) et leur intensité se dégrade au fur et à mesure que l'épaisseur diminue suggérant une dégradation de la structure des couches avec la diminution de l'épaisseur.

Les figures de pôles représentées sur la figure 4.3 confirment la croissance épitaxiale des couches CFA sur MgO selon la relation épitaxiale prévue : CFA(001) [110]// MgO(001) [100]. Quant aux couches CFA déposées sur Si, la figure de pôle (Figure 4.3(b)) ne révèle aucune direction privilégiée. La croissance des couches de CFA dans le plan est isotrope. Pour les couches déposées sur STO, les diagrammes de diffractions X à incidence rasante

(Figure 4.3(c)) montrent l'existence de phases : une phase cristalline selon la relation  $\text{CFA}(001)[110]//\text{STO}(001)[100]$  et une autre phase polycristalline moins visible. La structure cristalline du CFA/STO est moins bonne que celle du CFA/MgO. On doit noter aussi que la croissance du CFA sur STO est très délicate et dépend énormément de la qualité de la surface du substrat de STO, surtout si aucun traitement chimique n'a été appliqué au STO. Ceci se traduit par une grande variation des propriétés structurales des couches déposées sur STO.

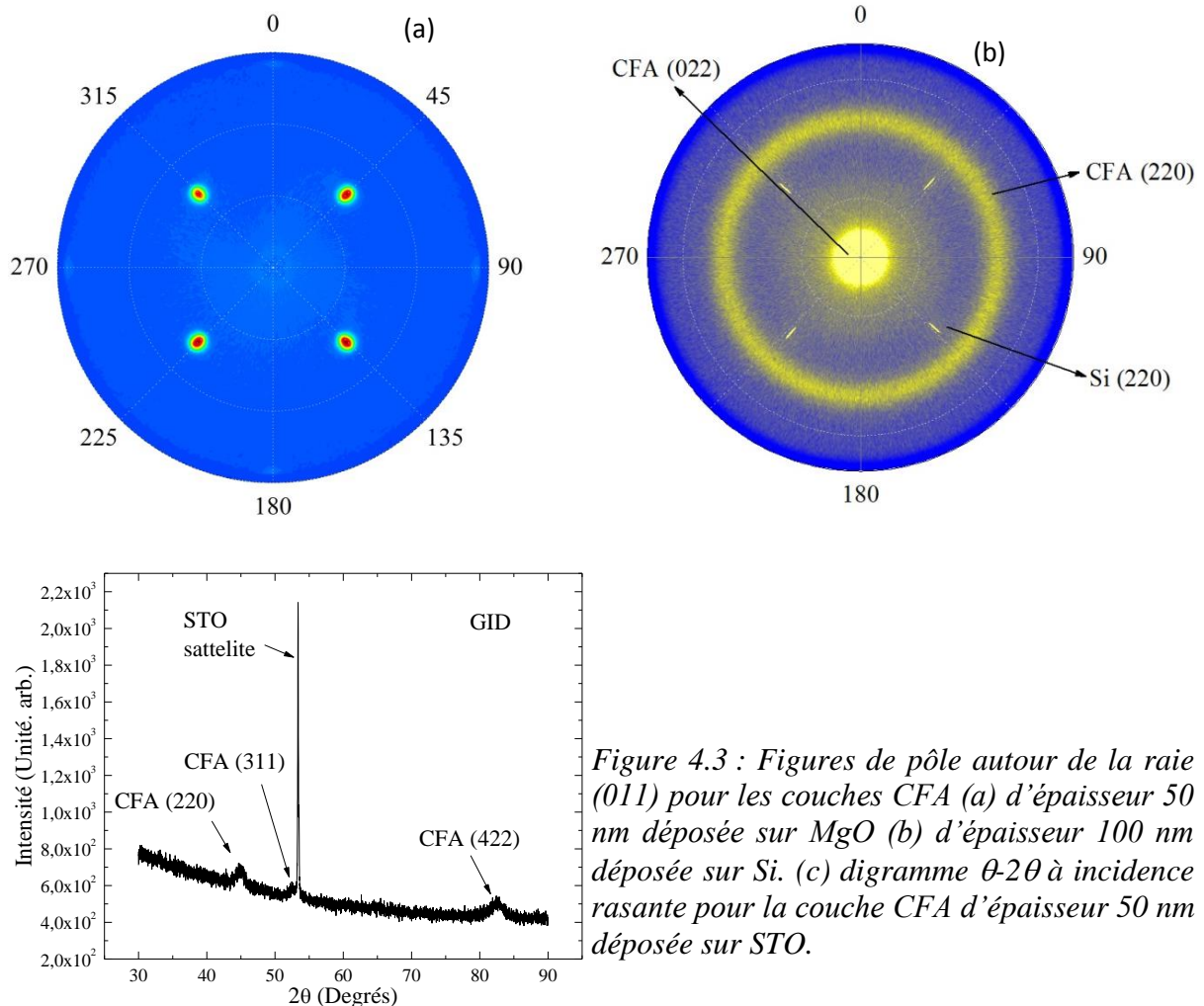


Figure 4.3 : Figures de pôle autour de la raie (011) pour les couches CFA (a) d'épaisseur 50 nm déposée sur MgO (b) d'épaisseur 100 nm déposée sur Si. (c) digramme  $\theta$ - $2\theta$  à incidence rasante pour la couche CFA d'épaisseur 50 nm déposée sur STO.

En utilisant un balayage à différentes orientations, les paramètres de maille hors du plan ( $a_{\perp}$ ) et dans le plan ( $a_{\parallel}$ ) ont été déduits (Figure 4.4(a)) pour les couches déposées sur MgO afin d'interpréter certaines propriétés magnétiques que ne présentent pas les couches déposées sur Si. Pour ces dernières et celles déposées sur STO, seul le paramètre  $a_{\perp}$  a été calculé ainsi que le montrent les figures 4.4(b) et 4.4(c). Pour une température de recuit de  $600^{\circ}\text{C}$ , les paramètres de maille hors du plan des couches CFA déposées sur les deux substrats (Si et MgO) sont du même ordre de grandeur et augmentent avec l'épaisseur  $d$ . Dans le cas des couches déposées sur Si, ce paramètre de maille augmente quand la température de



recuit diminue suggérant que les contraintes sont moins transmises du fait de la dégradation de la structure des couches (Figure 4.4(b)). Cet effet de température de recuit sera étudié en détails dans le chapitre V.

Pour les couches déposées sur STO, seulement  $a_{\perp}$  est déterminé et il diminue linéairement en fonction de l'épaisseur des couches CFA à partir de 20 nm de CFA. Ce comportement peut provenir des contraintes en compression appliquées aux couches déposées sur ce substrat.

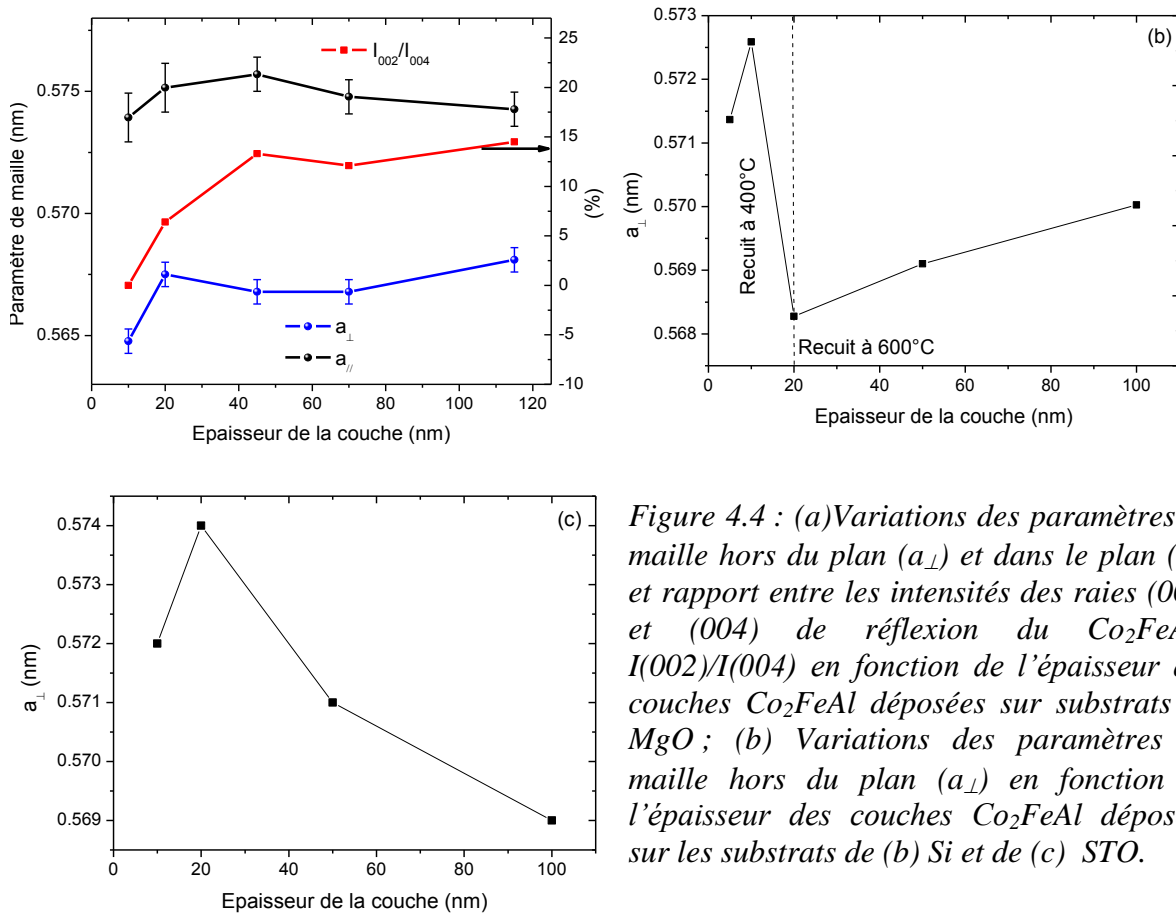


Figure 4.4 : (a) Variations des paramètres de maille hors du plan ( $a_{\perp}$ ) et dans le plan ( $a_{\parallel}$ ) et rapport entre les intensités des raies (002) et (004) de réflexion du  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  :  $I(002)/I(004)$  en fonction de l'épaisseur des couches  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  déposées sur substrats de  $\text{MgO}$  ; (b) Variations des paramètres de maille hors du plan ( $a_{\perp}$ ) en fonction de l'épaisseur des couches  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  déposées sur les substrats de (b) Si et de (c) STO.

Pour les couches déposées sur  $\text{MgO}$ , un modèle simple d'élasticité a permis de calculer également le paramètre de maille sans contrainte  $a_0$  ainsi que les déformations dans le plan ( $\varepsilon_{\parallel}$ ) et hors du plan des couches ( $\varepsilon_{\perp}$ ) qui s'écrivent comme suit:

$$a_0 = \frac{(C_{11}a_{\perp} + 2C_{12}a_{\parallel})}{(C_{11} + 2C_{12})} ; \varepsilon_{\parallel} = \frac{C_{11}}{(C_{11} + 2C_{12})} \frac{(a_{\parallel} - a_{\perp})}{a_0} ; \varepsilon_{\perp} = -\frac{2C_{12}}{(C_{11} + 2C_{12})} \frac{(a_{\parallel} - a_{\perp})}{a_0} \quad (4.1)$$

où les valeurs des constantes élastiques  $C_{11} = 253$  GPa et  $C_{12} = 165$  GPa ont été calculées précédemment[4]. En introduisant le coefficient de Poisson  $\nu = C_{12}/(C_{11} + C_{12})$ , les paramètres ci-dessus s'écrivent:

$$a_0 = \frac{((1-\nu)a_{\perp} + 2\nu v_{\parallel})}{(1+\nu)} ; \varepsilon_{\perp} = \frac{(1-\nu)(a_{\parallel} - a_{\perp})}{(1+\nu)a_0} ; \varepsilon_{\parallel} = -\frac{2\nu}{(1+\nu)} \frac{(a_{\parallel} - a_{\perp})}{a_0} \quad (4.2)$$

La *figure 4.5(a)* montre que le paramètre de maille  $a_0$  ne dépend pas de l'épaisseur, excepté pour la couche de 10 nm d'épaisseur où il présente une diminution importante. Sa valeur moyenne de  $0.5717 \pm 0.0005$  nm est légèrement plus petite que celle des composés massifs (0.574 nm) ayant la structure  $L2_1$ . La déformation planaire  $\varepsilon_{\parallel}$ , représentée sur la *figure 4.5(b)*, montre que les couches de CFA sont en tension en raison du désaccord entre leur paramètre de mailles et celui du substrat de MgO. Cependant, la valeur de cette déformation ne dépasse pas quelques % et reste bien au-dessous de sa valeur prévue (calculée à partir du désaccord Heusler/MgO), ce qui exclut un effet planaire suffisant pour obliger la couche à épouser la maille du substrat (clamping). Cette déformation planaire  $\varepsilon_{\parallel}$  diminue quand l'épaisseur augmente, au moins pour des épaisseurs au-dessus de 40 nm, comme illustré par la *figure 4.5(b)*.

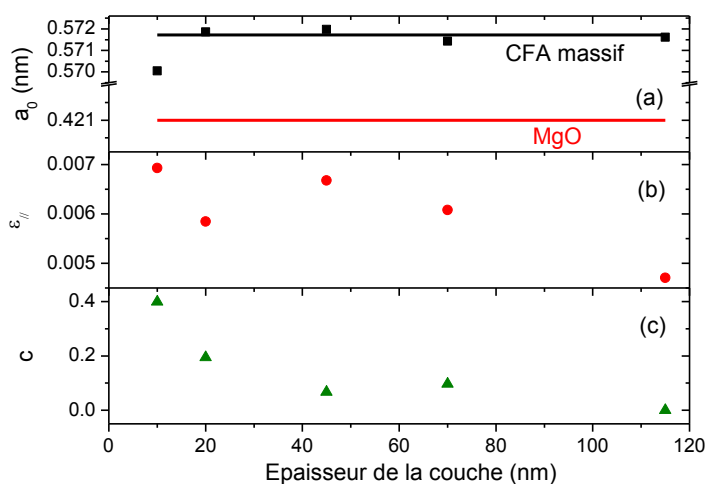


Figure 4.5 : Variations (a) du paramètre de maille cubique sans contrainte  $a_0$ , (b) de la contrainte planaire  $\varepsilon_{\parallel}$  et (c) de l'ordre chimique  $c$  en fonction de l'épaisseur des couches de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  déposées sur MgO.

Comme signalé dans le chapitre II, la phase  $L2_1$  se caractérise par des pics de diffraction ayant des indices de Miller impairs (par exemple: (111), (311), ...)[5]. En revanche, ces pics sont interdits dans le cas de la phase B2 qui est caractérisée par un désordre total entre les atomes Al et Fe mais une occupation régulière des sites de Co. Pour les couches de CFA déposées sur MgO, les raies (111) ou (311) n'ont pas été observées, ceci permet de conclure à l'absence de la phase  $L2_1$ . En revanche, l'observation des raies (002) est une indication que ces couches appartiennent à la phase B2. Ainsi, le rapport  $I_{002}/I_{004}$  des intensités intégrées des raies (002) et (004) est une mesure de degré d'ordre des sites de Co. Ce rapport, représenté sur la *figure 4.4*, augmente avec l'épaisseur de la couche et il est proportionnel à  $(1-2c)^2$ , où  $c$  caractérise le désordre chimique. En supposant que la couche la

plus épaisse appartient à la phase B2 ( $c = 0$ ) la variation de  $c$  en fonction de l'épaisseur des couches de CFA est représentée sur la *figure 4.5(c)*. Cette figure révèle que la phase A2 ( $c = 0.5$ ) est presque entièrement obtenue pour l'échantillon de 10 nm d'épaisseur. Ceci correspond à une transition graduelle entre la phase B2 vers la phase moins ordonnée A2 quand l'épaisseur diminue au-dessous de 45 nm. De plus, la phase A2 se caractérise par un paramètre de maille plus faible que la phase B2 [5] ce qui explique la diminution de paramètre de maille hors du plan pour la couche de 10 nm d'épaisseur. Pour les couches déposées sur Si, la coïncidence entre les pics (002) du CFA et les pics de diffraction du Si a empêché l'évaluation de l'évolution de l'ordre chimique avec l'épaisseur. De même, la faible intensité des pics (002) et (004) des couches CFA déposées sur STO n'a pas permis d'évaluer avec précision le degré de désordre chimique. Cependant on peut deviner une amélioration de l'ordre chimique et une évolution de la phase A2 à la phase B2 quand l'épaisseur augmente.

## 4.4 Les propriétés magnétiques

### 4.4.1 Quelques précisions sur le modèle utilisé

Avant de présenter et de discuter les propriétés magnétiques des structures étudiées ici, je présente quelques précisions sur le modèle utilisé.

#### 4.4.1.1 Calcul des fréquences de précession

Pour interpréter nos résultats expérimentaux, la dépendance angulaire des fréquences de résonance des différents modes excités (mode de précession uniforme et modes d'ondes de spin stationnaires perpendiculaires: PSSW), pour une couche mince d'épaisseur  $d$ , sera donnée dans ce paragraphe. Le système de coordonnées utilisé est représenté sur la *figure 4.6*.  $\varphi_H$  (resp.  $\varphi_M$ ) désigne l'angle dans le plan, du champ magnétique appliqué  $H$  (resp. de l'aimantation  $M$ ) avec l'un des axes cristallographiques principaux de la couche (qui coïncide avec le bord du substrat).  $\theta_H$  (resp.  $\theta_M$ ) est l'angle entre le champ  $H$  (resp. l'aimantation  $M$ ) et la normale au plan de l'échantillon. Les axes faciles des anisotropies uniaxiales et d'ordre 4, considérées ici, font respectivement les angles  $\varphi_u$  et  $\varphi_4$  avec l'axe cristallographique principal mentionné ci-dessus.

La densité d'énergie libre  $E$  d'une simple couche ferromagnétique est donné par:

$$E = E_{zee} + E_{éch} + E_{dem} + E_{anis} \quad (4.3)$$

Les trois premiers termes représentent respectivement les densités des énergies de Zeeman, d'échange et dipolaire. Elles sont données par leurs expressions habituelles en

fonction de l'aimantation, de ses dérivées spatiales, du champ magnétique appliqué et de la constante d'échange  $A_{éch}$ . Le dernier terme fait référence à la densité d'énergie d'anisotropie donnée par :

$$E_{anis} = K_{\perp} \sin^2 \theta_M - \frac{1}{2} (1 + \cos 2(\varphi_M - \varphi_u)) K_u \sin^2 \theta_M - \frac{1}{8} (3 + \cos 4(\varphi_M - \varphi_4)) K_4 \sin^4 \theta_M \quad (4.4)$$

où  $K_u$  et  $K_4$  sont respectivement les constantes des anisotropies planaires uniaxiale et d'ordre 4 tandis que  $K_{\perp}$  est la constante d'anisotropie uniaxiale perpendiculaire.

Les positions d'équilibre dans le plan et hors du plan de la couche sous champ appliqué sont déterminées par les minima de la densité d'énergie donnée par l'équation (4.1).

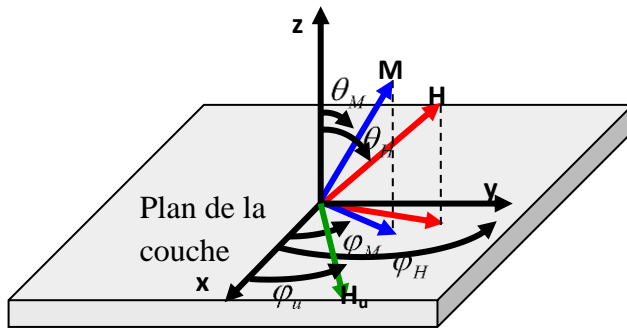


Figure 4.6 : : Système de coordonnées utilisé pour l'expression de la densité d'énergie magnétique et des fréquences de précession des différents modes excités pour une simple couche ferromagnétique d'épaisseur  $d$ .

La fréquence de précession uniforme peut être obtenue à partir de la densité d'énergie comme suit [4], [6], [7] :

$$F_r^2 = \left( \frac{\gamma}{2\pi} \right)^2 \frac{1}{M_s^2 \sin^2 \theta_M} \left[ \frac{\partial^2 E}{\partial \theta_M^2} \frac{\partial^2 E}{\partial \varphi_M^2} - \left( \frac{\partial^2 E}{\partial \theta_M \partial \varphi_M} \right)^2 \right] \quad (4.5)$$

où les dérivées sont évaluées à l'équilibre et où  $\gamma/(2\pi) = g \times 1.397 \times 10^6 \text{ Hz/Oe}$  est le facteur gyromagnétique relié au facteur de Landé  $g$ .

Dans le cas d'un champ magnétique appliqué dans le plan de la couche, l'aimantation et le champ magnétique appliqué sont dans le plan:  $\theta_M = \theta_H = 90^\circ$ . La fréquence de résonance  $F_n$  des différents modes excités est donnée par:

$$F_n^2 = \left(\frac{\gamma}{2\pi}\right)^2 \left[ \begin{aligned} & \text{H} \cos(\varphi_H - \varphi_M) + \frac{2K_4}{M_s} \cos 4(\varphi_M - \varphi_4) + \\ & \frac{2K_u}{M_s} \cos 2(\varphi_M - \varphi_u) + \frac{2A_{\text{éch}}}{M_s} \left(\frac{n\pi}{d}\right)^2 \end{aligned} \right] \times \left[ \begin{aligned} & \text{H} \cos(\varphi_H - \varphi_M) + 4\pi M_{\text{eff}} + \frac{K_4}{2M_s} (3 + \cos 4(\varphi_M - \varphi_4)) + \\ & \frac{K_u}{M_s} (1 + \cos 2(\varphi_M - \varphi_u)) + \frac{2A_{\text{éch}}}{M_s} \left(\frac{n\pi}{d}\right)^2 \end{aligned} \right] \quad (4.6)$$

Où  $4\pi M_{\text{eff}} = H_{\text{eff}} = 4\pi M_s - \frac{2K_{\perp}}{M_s} = 4\pi M_s - H_{\perp}$  est l'aimantation effective et où  $n$  est un

nombre entier se référant à l'indice du mode PSSW. Notons que le mode de précession uniforme correspond à  $n = 0$  dans les équations (4.6). En accord avec nos observations expérimentales, le terme d'anisotropie perpendiculaire effectif  $K_{\perp}$  (par conséquent le champ d'anisotropie perpendiculaire effectif  $H_{\perp}$ ) dépend de l'épaisseur et s'écrit comme :  $K_{\perp} = K_{\perp v} + 2K_{\perp s}/d$  où  $K_{\perp s}$  est la constante d'anisotropie perpendiculaire de surface. Dans ce qui suit, je définis  $H_u = 2K_u/M_s$  et  $H_4 = 4K_4/M_s$  respectivement comme les champs des anisotropies planaires uniaxiale et d'ordre 4.

Dans le cas d'un champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan de la couche, les fréquences de précession du mode uniforme et des modes d'ondes de spin stationnaires et perpendiculaires sont données par :

$$F_{\perp} = \left(\frac{\gamma}{2\pi}\right) \left[ \text{H} - 4\pi M_{\text{eff}} + \frac{2A_{\text{éch}}}{M_s} \left(\frac{n\pi}{d}\right)^2 \right] \quad (4.7)$$

#### 4.4.1.2 Largeur de raie FMR

Les valeurs expérimentales de la largeur FMR pic à pic  $\Delta H^{PP}$  sont analysées en considérant les contributions intrinsèques et extrinsèques.  $\Delta H^{PP}$  est donc la somme de la contribution intrinsèque  $\Delta H^{Gi}$  et de 3 autres termes extrinsèques qu'on désigne par  $\Delta H^{mos}$ ,  $\Delta H^{inh}$  et  $\Delta H^{2mag}$ .

$$\Delta H^{PP} = \Delta H^{Gi} + (\Delta H^{mos} + \Delta H^{inh} + \Delta H^{2mag}) \quad (4.8)$$

Lorsque le champ magnétique appliqué et l'aimantation sont parallèles, le terme intrinsèque  $\Delta H^{Gi}$  est indépendant de l'orientation du champ appliqué et se relie au coefficient d'amortissement de Gilbert  $\alpha$  et à la fréquence de précession  $f$  par la relation suivante:

$$\Delta H^{Gi} = \frac{2}{\sqrt{3}} \frac{\alpha}{\gamma} 2\pi f \quad (4.9)$$

Les mécanismes pertinents décrivant les contributions extrinsèques sont [8] :

1- Mosaïcité: elle décrit la contribution de la distribution de l'orientation des cristallites à la largeur de raie. Cette contribution est donnée par :

$$\Delta H^{mos} = \left| \frac{\partial H_{res}}{\partial \varphi_H} \Delta \varphi_H \right| \quad (4.10)$$

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

2- Le terme  $\Delta H^{inh}$  représente toute contribution, liée à divers types d'inhomogénéités, indépendante de la fréquence et de l'orientation du champ magnétique appliqué conduisant à l'élargissement de la raie FMR. Ce terme est dû aux diverses fluctuations locales comme la variation de l'épaisseur de la couche.

3- Processus de diffusion à deux magnons: cette contribution est donnée par [9]–[11]:

$$\Delta H^{2mag} = (\Gamma_0 + \Gamma_2 \cos 2(\varphi_H - \varphi_2) + \Gamma_4 \cos 4(\varphi_H - \varphi_4)) \arcsin \left( \frac{f}{\sqrt{f^2 + f_0^2 + f_0}} \right) \quad (4.11)$$

avec:  $f_0 = \gamma M_{eff}$ . La symétrie d'ordre 4 prévue donne naissance aux coefficients  $\Gamma_0$  et  $\Gamma_4$  alors que le coefficient  $\Gamma_2$  est introduit phénoménologiquement.

L'analyse des variations de la largeur de raie FMR  $\Delta H^{PP}$ , mesurée en fonction de la fréquence et en fonction de la direction du champ magnétique appliqué, permet d'évaluer  $\alpha$ ,  $\Delta \varphi_H$ ,  $\Delta H^{inh}$ ,  $\Gamma_0$ ,  $\Gamma_2$  (et  $\varphi_2$ ) et  $\Gamma_4$  (et  $\varphi_4$  qui pour des considérations de symétrie devrait être égal à  $0^\circ$  ou  $45^\circ$  selon le signe choisi pour  $\Gamma_4$ ).

#### 4.4.2 Propriétés statiques

L'aimantation moyenne à saturation mesurée par VSM pour toutes les couches de CFA déposées sur MgO et Si est estimée à  $M_s = 1000 \pm 50$  emu/cm<sup>3</sup>, ce qui correspond à un moment magnétique de  $5.05 \pm 0.25$  magnéton de Bohr ( $\mu_B$ ) par formule unitaire, en accord avec les valeurs déjà publiées pour la phase B2 [12].

Les cycles d'hystérésis ont été mesurés seulement pour les couches déposées sur MgO et Si par VSM et MOKE sous un champ magnétique appliqué dans le plan le long de différentes orientations. La *figure 4.7* illustre des cycles d'hystérésis représentatifs des différents films CFA déposés sur substrats de MgO et de Si. La forme des cycles d'aimantation dépend de l'orientation du champ à cause de l'anisotropie magnétique. Pour les couches déposées sur MgO, cette anisotropie est la superposition d'un terme d'ordre 4 et d'un terme d'anisotropie uniaxiale ayant des axes faciles parallèles. Cet axe commun des deux anisotropies coïncide avec l'un des bords du substrat et, par conséquent, avec l'un des axes

cristallographiques  $\langle 110 \rangle$  du CFA. Il en résulte que si une orientation (par exemple  $\varphi_H=0^\circ$  correspondant à  $[110]$ ) est la plus facile, la direction perpendiculaire ( $\varphi_H=90^\circ$  correspondant à  $\bar{1}\bar{1}0$ ) est la moins facile.

En fonction de la direction du champ magnétique appliqué, le retournement de l'aimantation se fait en une ou en deux étapes. En effet, lorsque le champ magnétique est appliqué le long de l'axe le plus facile ( $\varphi_H=0^\circ$ ), des cycles d'hystérésis carrés sont obtenus. Par contre, l'application d'un champ magnétique le long de l'axe le moins facile ( $\varphi_H=90^\circ$ ) donne un cycle d'hystérésis avec deux transitions irréversibles correspondant à un retournement en deux étapes (antiparallèle-perpendiculaire, perpendiculaire-parallèle) résultant de la superposition de deux termes d'anisotropie uniaxiale et d'ordre 4 [10]. Par conséquent, pour  $\varphi_H=90^\circ$ , l'aimantation bascule d'une façon cohérente non pas dans le sens opposé, mais plutôt vers l'axe le plus facile. L'aimantation est alors perpendiculaire au champ appliqué et, par conséquent, sa composante parallèle au champ appliqué est nulle ce qui correspond au plateau observé dans le cycle représenté sur la *figure 4.7*.

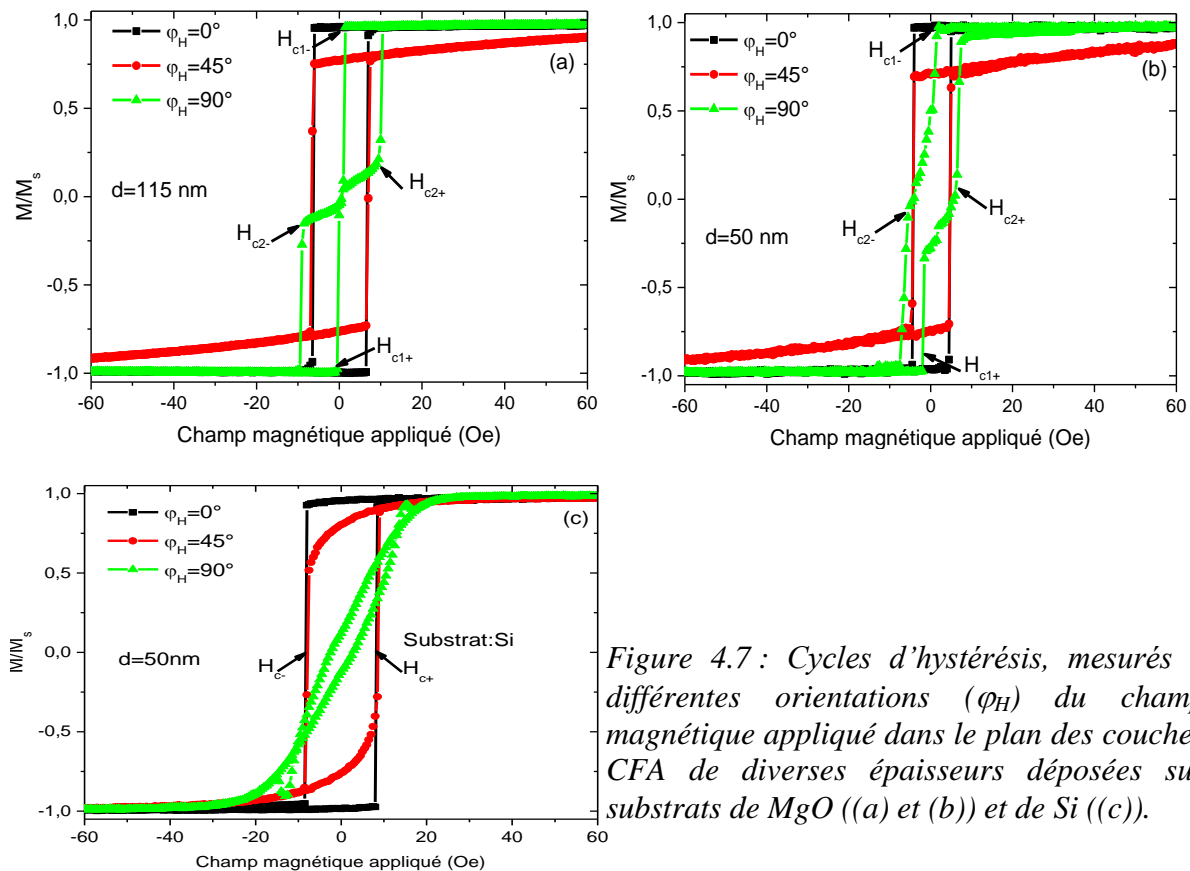


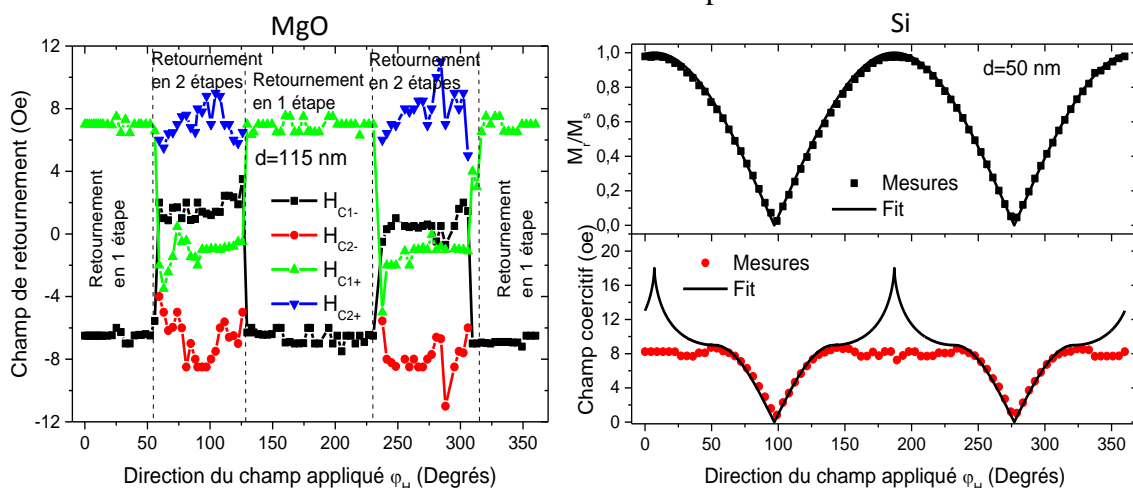
Figure 4.7 : Cycles d'hystérésis, mesurés à différentes orientations ( $\varphi_H$ ) du champ magnétique appliqué dans le plan des couches CFA de diverses épaisseurs déposées sur substrats de MgO ((a) et (b)) et de Si ((c)).

Ce plateau caractérise la première étape de retournement (ou saut) dans le cycle mesuré à  $90^\circ$ . Quand le champ augmente et devient suffisamment élevé, l'aimantation va subir la deuxième

étape de retournement afin de s'aligner parallèlement au champ magnétique. L'axe difficile est situé entre les deux axes faciles à  $45^\circ$ . Cette situation est similaire à celle qui a été étudiée et observée précédemment [13]. Pour toutes les couches déposées sur MgO le retournement en deux étapes a été observé pour  $\varphi_H$  dans l'intervalle  $\{55-130^\circ\}$ .

Pour les couches déposées sur substrat de Si, les cycles d'hystérésis MOKE typiques représentés sur la *figure 4.7* pour la couche de 50 nm d'épaisseur sont plus simples que ceux des couches déposées sur MgO. La forme de ces cycles est dictée par une anisotropie uniaxiale. Son axe facile, ici parallèle à l'un des bords du substrat, change de direction d'un échantillon à un autre comme nous le verrons en détail ci-dessous. La faible valeur du champ de saturation selon l'axe difficile suggère une faible anisotropie uniaxiale.

Les champs de retournement ou coercitifs des différents types de cycles d'hystérésis sont définis sur la *figure 4.7* et ont été mesurés en fonction de la direction du champ appliqué dans le plan des couches (*Figure 4.8*). Pour les couches déposées sur MgO, ces champs sont presque constants dans la zone de retournement en une seule étape et varient d'une façon non monotone dans la zone de retournement en deux étapes. Pour les couches de CFA déposées sur Si, contrairement à la dépendance angulaire de l'aimantation rémanente qui est complètement reproduite par le modèle de rotation cohérente, les valeurs du champ coercitif aux alentours de l'axe facile s'écartent de celles données par le modèle de rotation cohérente.



*Figure 4.8 : Dépendance angulaire des champs de retournement et coercitifs et de l'aimantation rémanente réduite des couches de CFA de 115 nm et 50 nm d'épaisseur déposées respectivement sur des substrats de MgO et de Si.*

Les champs coercitifs ( $H_C$ ) déduits des cycles d'hystérésis, obtenus pour un champ magnétique appliqué le long de la direction de l'axe le plus facile ( $\varphi_H=0$ ), sont illustrés sur la *figure 4.9* pour les couches de CFA, déposées sur les substrats de MgO et de Si, en fonction de l'inverse de l'épaisseur des couches.  $H_C$  augmente linéairement avec l'inverse de



l'épaisseur des films à cause de l'amélioration de l'ordre atomique et de la structure cristallographique quand l'épaisseur augmente. Les échantillons recouverts par une couche de Cr présentent des champs coercitifs plus élevés que ceux recouverts par Ta en raison de la différence dans la qualité des interfaces et l'ordre atomique. Ce champ coercitif augmente avec la diminution de la température de recuit, très probablement à cause de la dégradation de qualité cristallographique et structurale des couches.

Selon la direction du champ appliqué, on peut observer des cycles d'hystérésis non centrosymétriques comme le montre la *figure 4.7(b)* ( $\varphi_H = 90^\circ$ ). Cette asymétrie provient de la contribution de deux composantes signal Kerr magnéto-optique : symétrique (fonction paire du champ appliqué) et asymétrique (fonction impaire du champ appliqué). Il est bien connu que pour un système aimanté dans le plan, la contribution asymétrique observée dans les cycles d'hystérésis mesurés par effet Kerr longitudinal provient de la contribution de termes de deuxième ordre [14]. Nous nous sommes donc intéressés à cette contribution quadratique en étudiant la dépendance angulaire du signal Kerr dans les couches déposées sur MgO soumise à un champ magnétique planaire saturant.

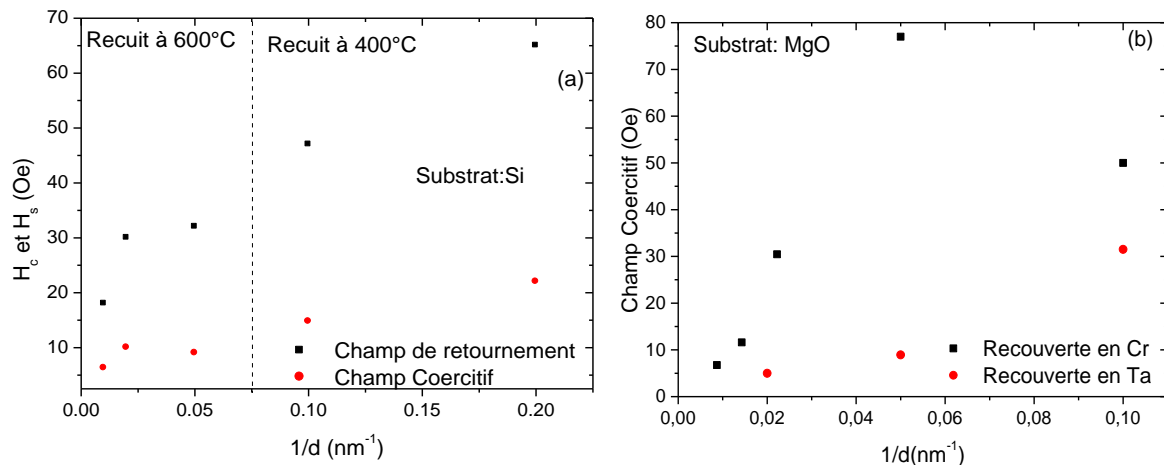


Figure 4.9: Variation des champs de retournement ( $H_s$ ) et coercitifs ( $H_c$ ) en fonction de l'inverse de l'épaisseur des couches de CFA déposées sur des substrats (a) Si et (b) MgO

Dans l'approximation cubique et dans le cas d'une surface (001), la rotation Kerr est donnée par :

$$\theta_K = \alpha_1 M_L + \alpha_2 (M_L^2 - M_T^2) \sin(4\psi) + (b_2 + 2a_2 \cos(4\psi)) M_L M_T \quad (4.12)$$

Où  $M_L$  et  $M_T$  sont respectivement les composantes longitudinale (dans le plan d'incidence) et transversale (perpendiculaire au plan d'incidence) de l'aimantation.  $\psi$  représente l'angle entre l'axe cubique  $\langle 110 \rangle$  et le plan d'incidence et  $a$  et  $b$  sont les amplitudes des signaux Kerr quadratiques. Le premier terme décrit la contribution linéaire et les deux autres termes

traduisent les contributions quadratiques. Les mesures expérimentales ont été effectuées à un angle d'incidence de  $46^\circ$  sous un champ magnétique largement plus élevé que le champ d'anisotropie. Les différentes contributions du signal Kerr ont été obtenues en fonction de  $\psi$  en utilisant la technique du champ tournant [15]. La *figure 4.10* représente l'évolution des composantes de rotation Kerr pour une couche de CFA de 115 nm d'épaisseur recouverte par une couche de Cr et pour la couche de CFA de 50 nm recouverte par Ta. En plus de la contribution longitudinale  $M_L$  dominante, on observe aussi l'existence des contributions quadratiques. L'ajustement des données par l'équation 4.12 montre que les variations des amplitudes des signaux  $(M_L^2 - M_T^2)$  et  $(2M_L M_T)$  sont du même ordre de grandeur suggérant que ce modèle cubique que nous avons appliqué est bien adapté à cette étude. De plus, les amplitudes des contributions quadratiques croissent avec l'épaisseur des films signifiant l'amélioration de l'ordre chimique et la transition de la phase A2 à la phase B2 quand l'épaisseur augmente.

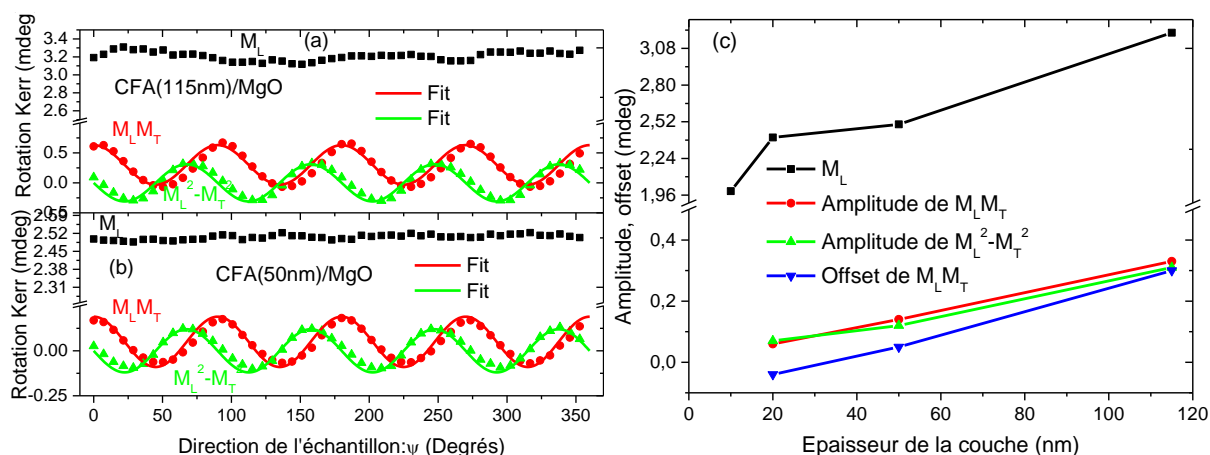


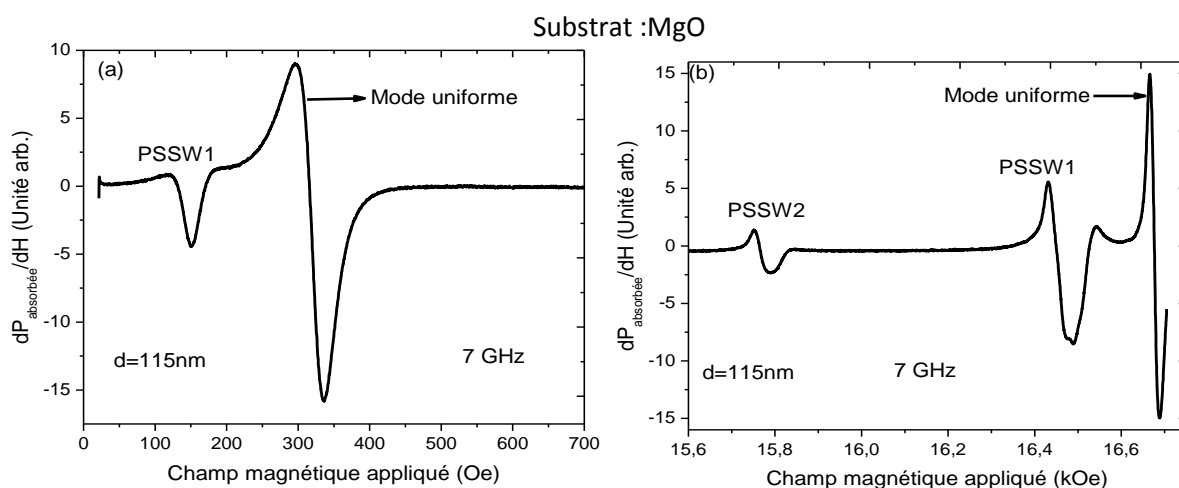
Figure 4.10: Séparation des différentes contributions à la rotation Kerr pour les couches de CFA de (a) 115 nm et de (b) 50 nm d'épaisseur. Les ajustements correspondants ont été obtenus en utilisant l'équation 4.12. (c) Variations des amplitudes et offset des différentes contributions Kerr en fonction de l'épaisseur des couches CFA déposées sur MgO.

#### 4.4.3 Propriétés magnétiques dynamiques

##### 4.4.3.1 Constante d'échange et aimantation effective

Pour cette partie, les méthodes MS-FMR et BLS ont été combinées. La technique MS-FMR en géométrie perpendiculaire permet de déduire les valeurs de l'aimantation effective et du facteur de Landé ( $g$ ) à partir de la variation de la fréquence de précession des modes excités en fonction du champ magnétique appliqué. Les spectres FMR typiques en configuration parallèle (champ magnétique appliqué dans le plan) et perpendiculaire au plan,

où la dérivée de la puissance absorbée est mesurée en fonction du champ magnétique, sont représentés sur la *figure 4.11* pour une couche d'épaisseur 115 nm déposée sur MgO. Ces spectres montrent l'existence d'au moins deux modes. Le mode le plus intense correspond au mode de précession uniforme et les autres modes observés à plus faibles champs représentent les modes d'ondes de spin stationnaires (PSSW). Le premier mode PSSW a été observé pour des champs magnétiques appliqués dans les plans ou perpendiculairement aux plans des couches pour les échantillons d'épaisseur supérieure à 45 nm déposés sur Si ou sur MgO. Pour la couche de CFA la plus épaisse (115 nm), il a même été possible d'observer le second mode PSSW en configuration perpendiculaire très probablement à cause de la faible largeur de raie FMR des modes (*Figure 4.11(b)*). Pour une épaisseur des films de CFA inférieure à 45 nm, les modes PSSW ne sont pas détectés en raison de leurs hautes fréquences dépassant la bande passante disponible (0-24 GHz). Dans les cas des couches déposées sur STO, seul le mode uniforme a été observé en configuration perpendiculaire. Cependant pour la couche de 100 nm d'épaisseur, le mode stationnaire se révèle en configuration planaire.



*Figure 4.11 : Spectres MS-FMR pour une couche de CFA de 115 nm déposée sur substrat de MgO. Le champ magnétique est appliqué (a) dans le plan de la couche (b) perpendiculairement au plan de la couche.*

Les dépendances typiques de la fréquence de résonance du mode uniforme et des modes PSSW en fonction des champs magnétiques appliqués dans le plan et perpendiculairement au plan des couches sont présentées sur les *figures 4.12* et *4.13* pour les couches de CFA de diverses épaisseurs et pour les trois types de substrats. L'ajustement linéaire des mesures permet de déterminer la valeur de la constante perpendiculaire d'anisotropie de surface  $K_{\perp s}$ :  $K_{\perp s} = -1.8 \text{ erg/cm}^2$ ,  $K_{\perp s} = -2.4 \text{ erg/cm}^2$  et  $K_{\perp s} = -2.15 \text{ erg/cm}^2$  respectivement pour les films déposés sur substrat de MgO, de Si et de STO.

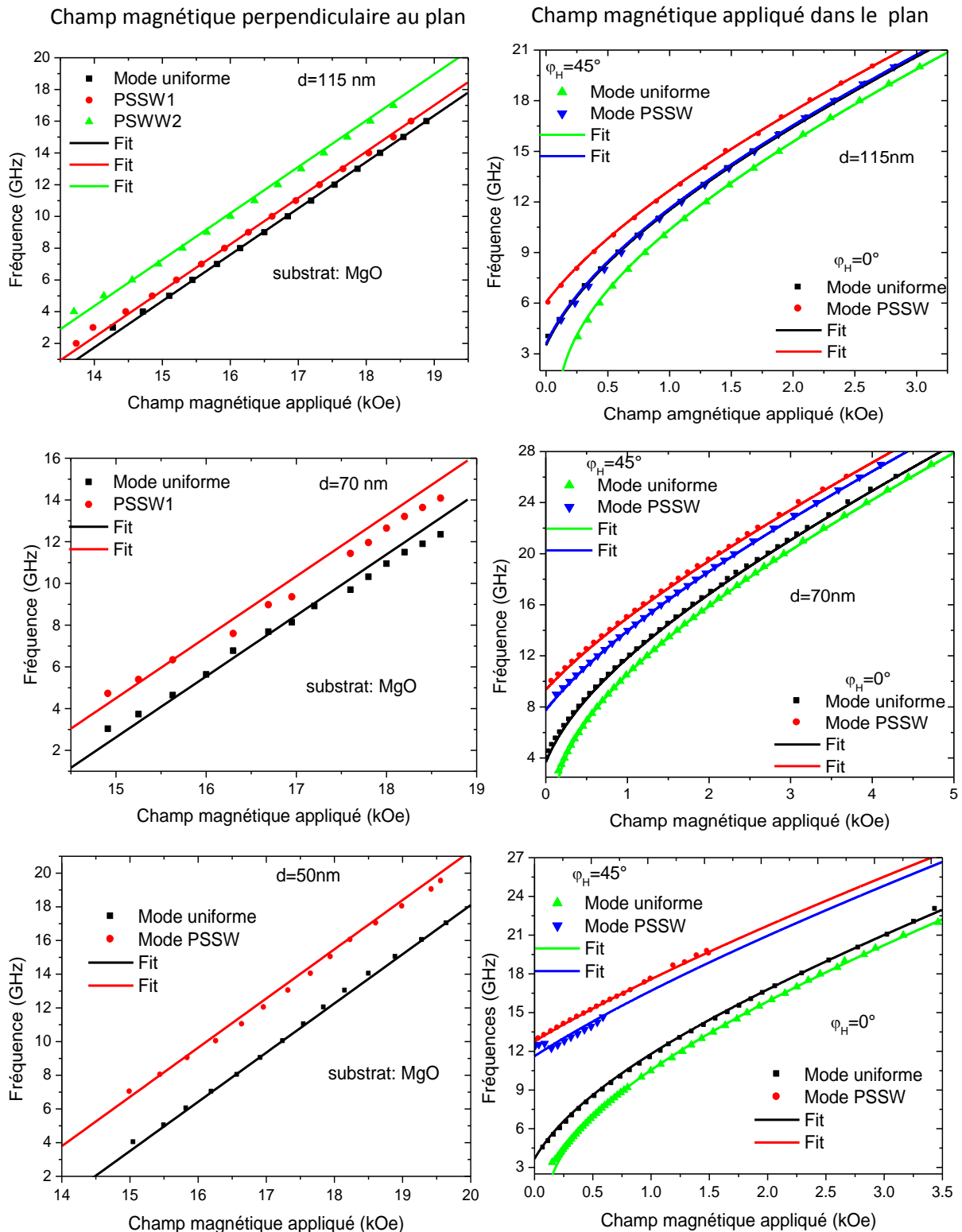


Figure 4.12 : Dépendance en champ des fréquences du mode uniforme et des modes PSSW pour des couches de CFA de différentes épaisseurs déposées sur substrats de MgO.

Pour le substrat Si, la valeur de  $4\pi M_{eff}$  correspondant à  $d = 10$  nm n'a pas été prise en compte car cette couche, initialement recuite à  $400^\circ\text{C}$ , a subi un deuxième recuit à  $600^\circ\text{C}$  et donc semble présenter des différences par rapport aux autres échantillons. Les valeurs limites de

$4\pi M_{eff}$  lorsque  $d$  tend vers l'infini sont égales à 12.2 kOe et 11.8 kOe, respectivement, pour les couches déposées sur substrats de MgO et de Si. En tenant compte de la précision expérimentale mentionnée ci-dessus pour l'aimantation à saturation (12.2 kOe et 11.8 kOe), ces valeurs ne diffèrent pas beaucoup de  $4\pi M_s$ . Les valeurs de la constante d'anisotropie de surface perpendiculaire sont du même ordre (1.3 erg/cm<sup>2</sup> [16] et 1.8 erg/cm<sup>2</sup> [17]), mais de signe opposé, que celles observées dans les jonctions magnétiques tunnel à base de MgO comportant des électrodes de CoFeB. Ikeda et al.[16] ont attribué cette anisotropie perpendiculaire dans les structures Ta/CoFeB/MgO à la contribution de l'interface CoFeB/MgO. Wang et al.[18] ont en outre affirmé que cette anisotropie est entièrement provoquée par l'interface CoFeB/MgO en se basant sur le constat qu'elle n'est observée que lorsque l'épaisseur de la couche de MgO dépasse 1 nm.

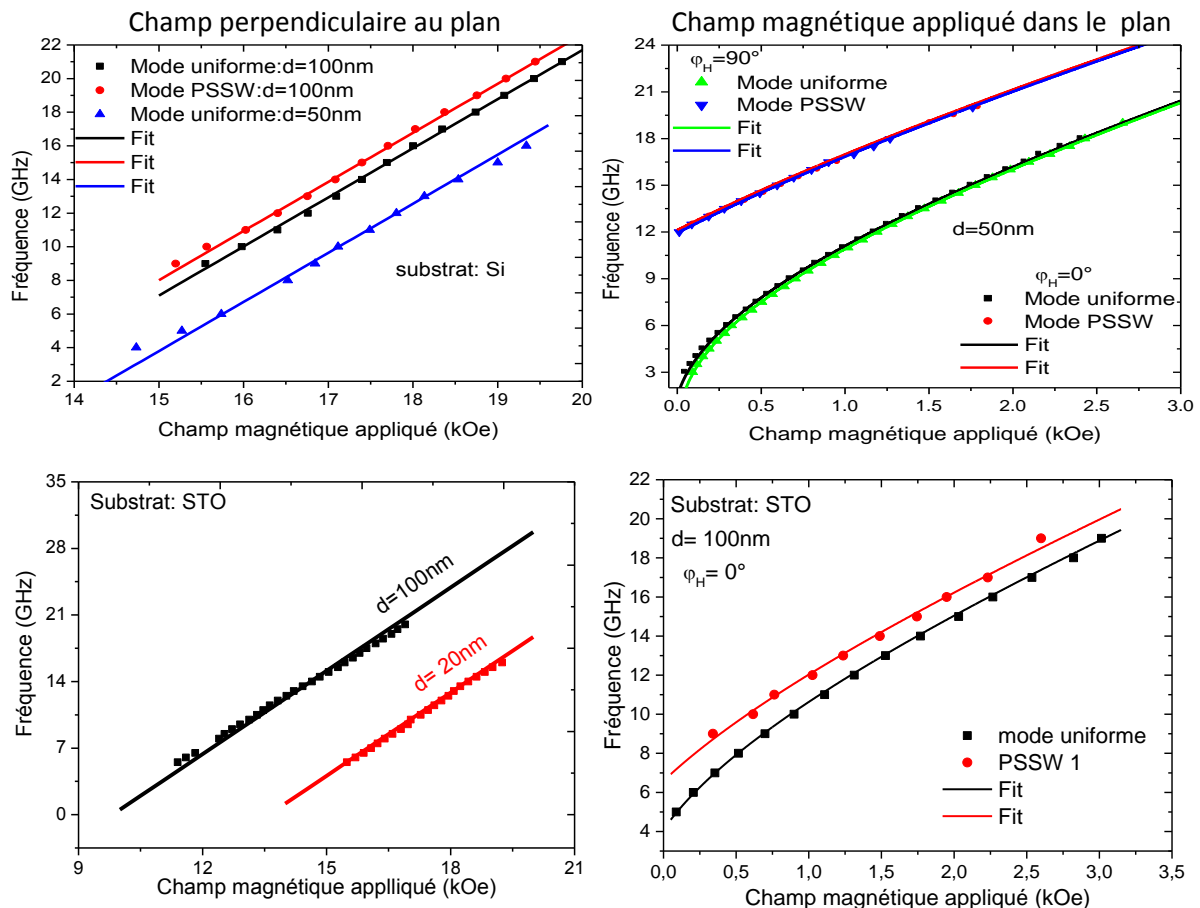


Figure 4.13: Dépendance en champ des fréquences du mode uniforme et des modes PSSW pour des couches de CFA de différentes épaisseurs déposées sur substrats de Si et STO.

Toutefois, Worledge et al.[17] ont affirmé que l'interface de Ta/CoFeB introduit aussi une anisotropie perpendiculaire importante du fait que les couches de Ta/CoFeB/MgO présentent une plus grande anisotropie que les films Ru/CoFeB/MgO. Nous concluons donc

que le champ d'anisotropie uniaxiale perpendiculaire présenté par les couches CFA déposées sur les différents substrats (STO, Si et MgO) dérive d'un terme d'énergie de surface. Sa valeur négative favorise et renforce l'orientation de l'aimantation dans le plan. L'origine de cette anisotropie est très probablement due à l'interface CFA/MgO pour les couches déposées sur MgO et Si et à l'interface CFA/Cr pour les films déposés sur substrats de STO. Dans le cas du substrat STO, l'aimantation à saturation est trouvée vers 9.4 kOe. Cette valeur est vraiment inférieure par rapport à l'aimantation à saturation qu'on a déterminée. Cette différence peut provenir de deux facteurs : la température de recuit des films minces de CFA et l'effet de l'interface CoFe/CFA.

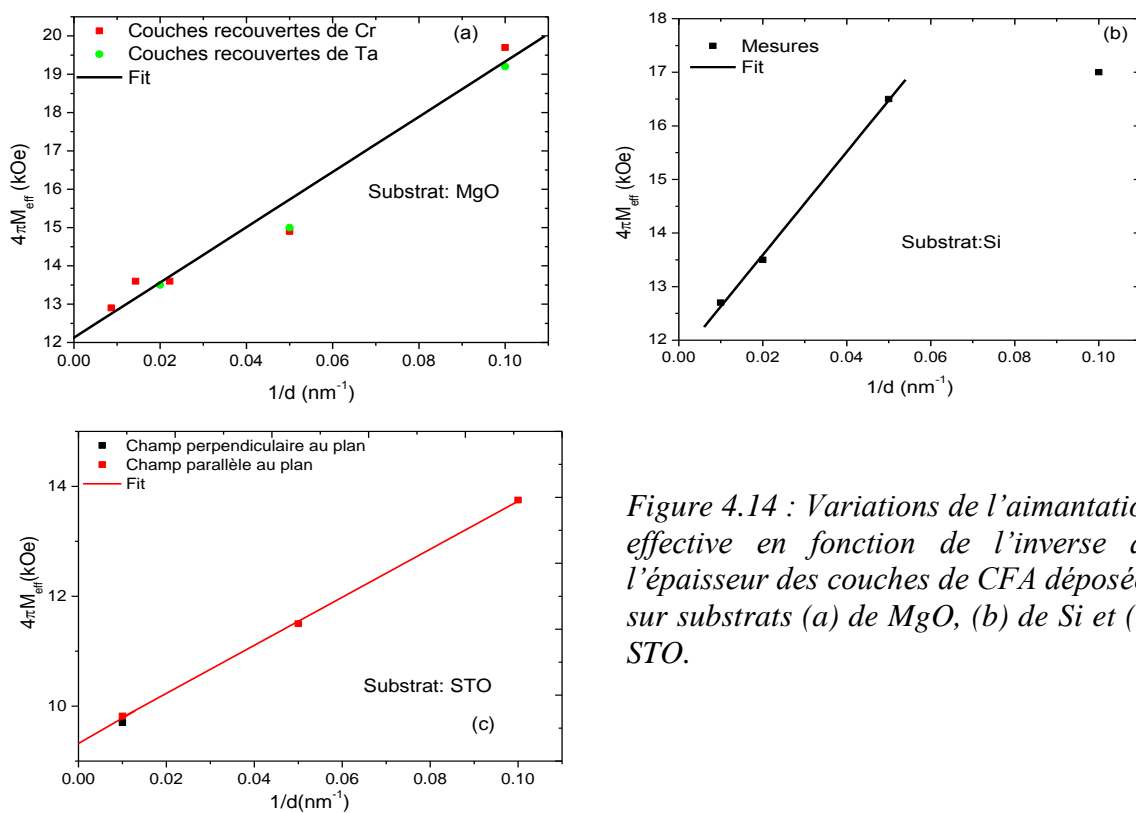
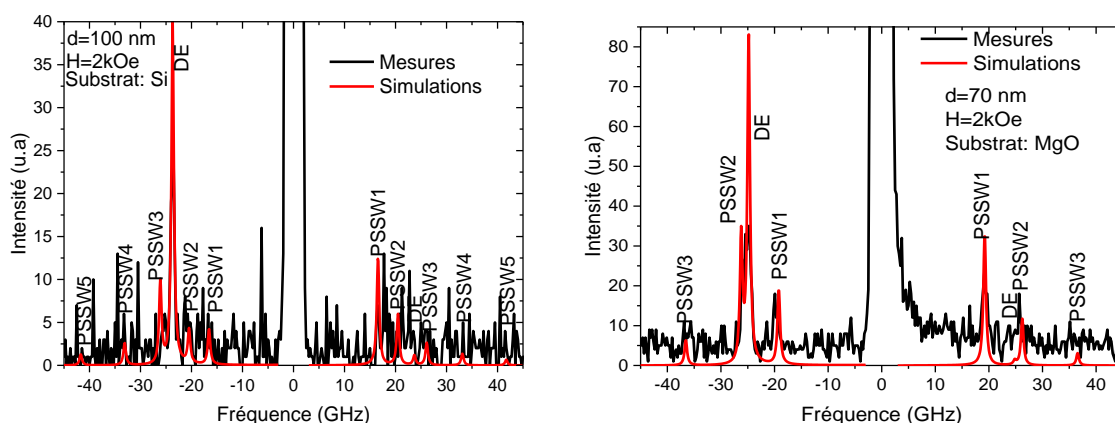


Figure 4.14 : Variations de l'aimantation effective en fonction de l'inverse de l'épaisseur des couches de CFA déposées sur substrats (a) de MgO, (b) de Si et (c) STO.

Les mesures BLS constituent un complément aux expériences MS-FMR car elles donnent accès aux modes d'ondes de spin de vecteurs d'onde non nuls. De plus, elles permettent de vérifier la validité des paramètres magnétiques extraits ci-dessus et fournissent une autre évaluation de  $g$ , de  $M_{eff}$  et de  $A_{ech}$ , qui sont des paramètres importants aussi bien du point de vue fondamental que de celui des applications. Comme nous l'avons indiqué aux chapitres précédents, deux différents types de modes sont sondés par notre banc BLS : le mode Damon Eschbach (DE) et les modes stationnaires (PSSW). Dans cette technique, les ondes de spin régnant dans la couche diffusent inélastiquement un faisceau de lumière monochromatique incident. Le décalage en fréquence, analysé grâce à un interféromètre de

Fabry-Pérot, couvre typiquement la plage de fréquences 3-300 GHz. Pour chaque échantillon (couches déposées sur substrats de Si et MgO), les différentes ondes de spin sondées ont été étudiées par rétrodiffusion BLS en fonction du champ magnétique, appliqué dans le plan des couches, et en fonction de l'angle d'incidence du faisceau laser qui détermine le vecteur d'onde ( $\vec{k}_{//}$ ). Cette dernière étude permet l'identification des modes et donc de séparer le mode DE et les modes PSSW. Dans les conditions expérimentales utilisées (champ magnétique appliqué supérieur à 1 kOe), les termes d'anisotropie peuvent être négligés (pour  $d \geq 20$  nm) et les spectres ne dépendent pratiquement que de  $g$ , de  $M_{\text{eff}}$ , du produit  $\vec{k}_{//}d$  et de  $A_{\text{éch}}$ . Afin d'obtenir des spectres comprenant un grand nombre de modes PSSW, nous avons principalement axé cette étude sur les couches de CFA de 100 nm et de 70 nm d'épaisseur déposées sur des substrats de Si et de MgO respectivement. Les spectres typiques concernant ces échantillons soumis à un champ magnétique de 2 kOe appliqué parallèlement à l'axe facile et perpendiculairement au vecteur d'onde ( $\vec{k}_{//} = 0.1677 \mu\text{m}^{-1}$ ) sont représentés sur la *figure 4.15*. Ces spectres contiennent le mode pseudo-dipolaire ou mode Damon Eshbach (provenant du mode uniforme lorsque le vecteur d'onde est nul) et plusieurs modes PSSW. Remarquons que les maxima fournissent directement les fréquences des ondes de spin impliquées dans le processus de diffusion.



*Figure 4.15: Spectres BLS mesurés à vecteur d'onde planaire  $k_{//}=0.167\mu\text{m}^{-1}$  pour des couches de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  d'épaisseurs 100 et 70 nm déposées sur des substrats Si et MgO et soumises à un champ magnétique de 2 kOe appliqué dans leur plan. Les simulations correspondantes sont obtenues en utilisant le modèle présenté dans l'article de Roussigné et al. [19] et les paramètres indiqués dans le texte.*

La forme du spectre peut être calculée numériquement [19] permettant ainsi d'ajuster les spectres avec les paramètres appropriés. La *figure 4.16* représente les variations des fréquences mesurées des différents modes comparées aux meilleurs ajustements obtenus en utilisant  $g=2.09$  et  $A_{\text{éch}}=1.5\mu\text{erg/cm}$  qui sont en très bon accord avec les valeurs déduites de



l'ajustement des mesures MS-FMR. Pour tous les échantillons étudiés, l'accord entre les valeurs calculées et observées des spectres est satisfaisant en utilisant ces valeurs de  $g$  et  $A_{éch}$ . La dépendance linéaire de l'aimantation effective, des couches de CFA déposées sur MgO et Si, extraite des mesures BLS en fonction de l'épaisseur a conduit à une constante d'anisotropie perpendiculaire de surface de  $-1.85 \text{ erg/cm}^2$  et de  $-2.7 \text{ erg/cm}^2$ , respectivement pour MgO et Si, qui sont en très bonne accord avec celles déduites des mesures FMR.

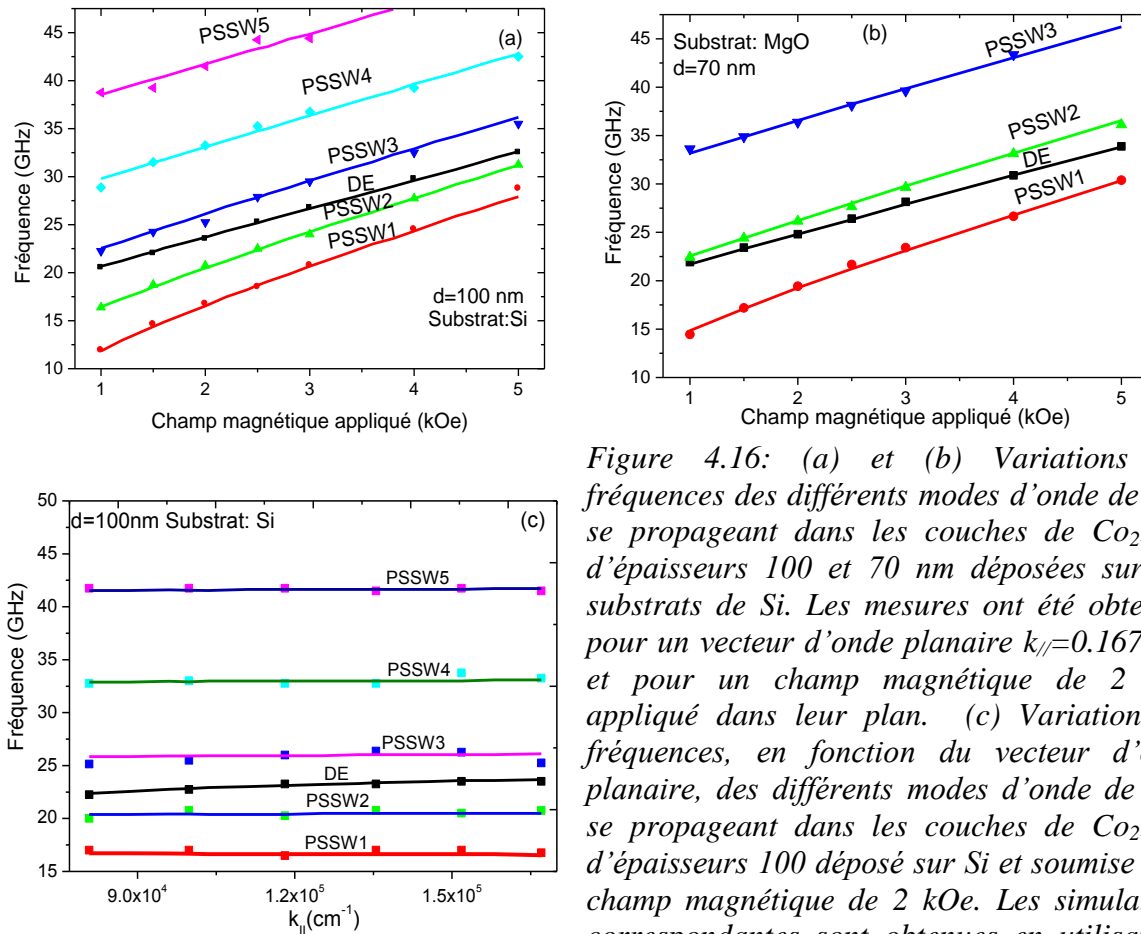


Figure 4.16: (a) et (b) Variations des fréquences des différents modes d'onde de spin se propageant dans les couches de  $Co_2FeAl$  d'épaisseurs 100 et 70 nm déposées sur des substrats de Si. Les mesures ont été obtenues pour un vecteur d'onde planaire  $k_{||}=0.167 \mu\text{m}^{-1}$  et pour un champ magnétique de 2 kOe appliqué dans leur plan. (c) Variation des fréquences, en fonction du vecteur d'onde planaire, des différents modes d'onde de spin se propageant dans les couches de  $Co_2FeAl$  d'épaisseurs 100 nm déposées sur Si et soumises à un champ magnétique de 2 kOe. Les simulations correspondantes sont obtenues en utilisant le modèle présenté dans l'article de Roussigné et al. [19] et les paramètres indiqués dans le texte.

#### 4.4.3.2 Anisotropie magnétique

Dans cette partie, la technique MS-FMR a été combinée à la méthode TBIIST pour une étude comparative. Cette dernière disponible à l'université de Mulhouse (Institut des sciences des matériaux de Mulhouse : IS2M) a été utilisée seulement pour les couches déposées sur Si et MgO. La figure 4.17 représente les dépendances angulaires des champs de résonance (à fréquence d'excitation fixe) et des fréquences de résonance (à champ magnétique fixe) comparées aux mesures TBIIST pour deux couches de CFA déposées sur substrat de MgO. Les mesures FMR et TBIIST montrent que le comportement angulaire des



champs et des fréquences de résonance est régi par la superposition des termes d'anisotropie uniaxiale et d'ordre 4 ayant les axes faciles mentionnés ci-dessus (axe [110] et axes équivalents). Ces axes d'anisotropie d'ordre 4 sont en bon accord avec les directions cristallographiques principales illustrées ci-dessus par les figures de pôle. Les variations des champs d'anisotropie uniaxiale et d'ordre 4 extraits de l'ajustement des mesures TBIIST et FMR, en fonction de l'inverse de l'épaisseur du CFA sont représentées sur la *figure 4.18*. Le tableau 4.1, où ces valeurs sont aussi résumées, montre un très bon accord entre les deux déterminations. Pour tous les échantillons, l'anisotropie d'ordre 4 est dominante.

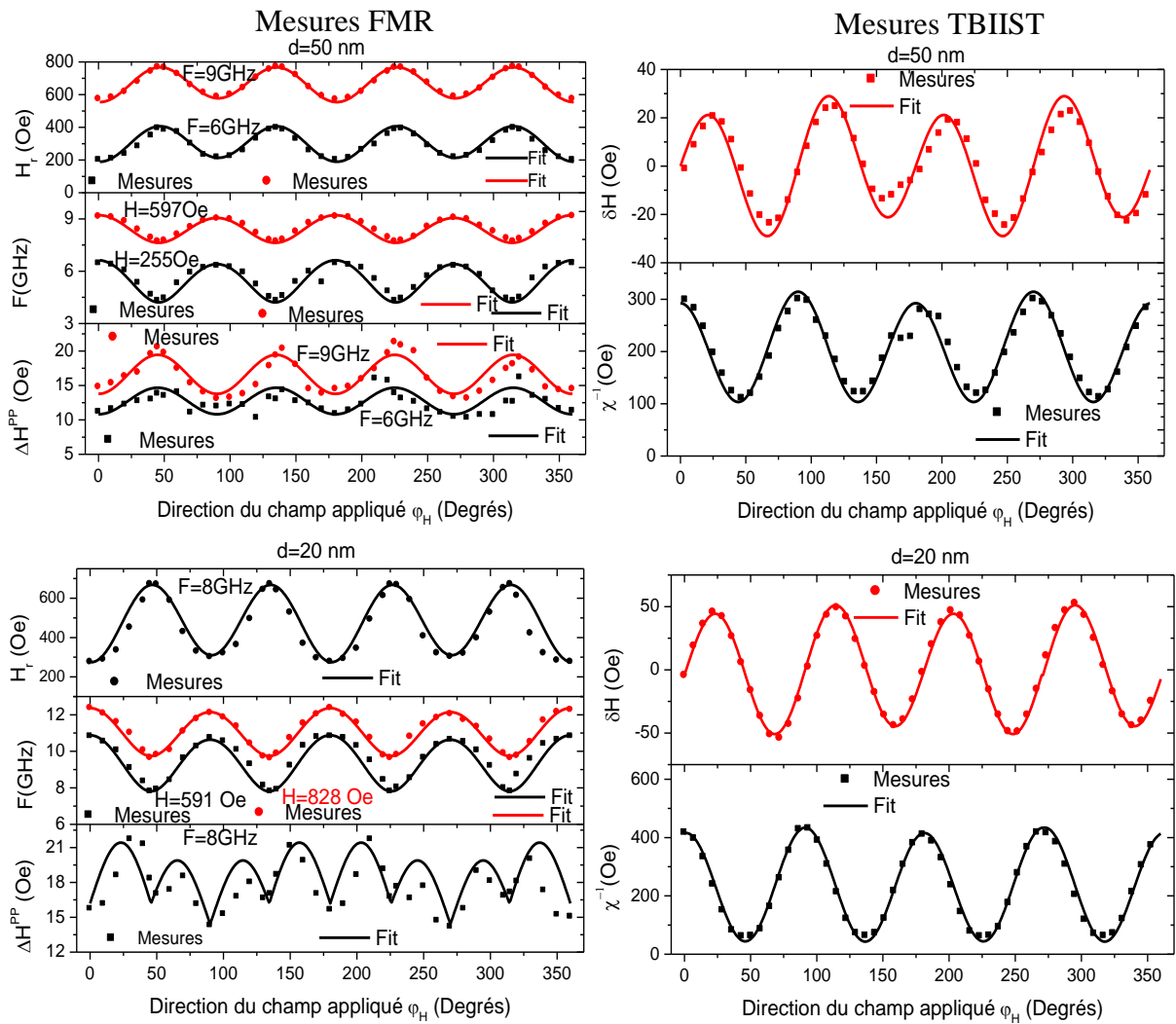


Figure 4.17: Dépendance angulaire de la fréquence ( $F_r$ ), du champ de résonance ( $H_r$ ), de la largeur de raie FMR ( $\Delta H^{PP}$ ), de la susceptibilité inverse ( $\chi^{-1}$ ) et du décalage en champ ( $\delta H$ ) pour des couches  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  de 20 et 50 nm d'épaisseur recouvertes de Ta déposées sur  $\text{MgO}$ . Les mesures TBIIST ont été obtenues en utilisant un champ transverse  $H_B=200$  Oe et 225 Oe respectivement pour les épaisseurs 50 nm et 20 nm. Les lignes continues correspondent aux ajustements par le modèle décrit dans le texte.

Alors que le champ d'anisotropie uniaxiale ( $H_u$ ) des couches recouvertes par une couche de Cr est faible et ne semble pas dépendre de l'épaisseur,  $H_u$  est plus élevé pour les couches de CFA recouvertes de Ta, peut-être en raison des effets d'interface, et décroît quand l'épaisseur augmente (Figure 4.18). Cette anisotropie uniaxiale est peut-être due à la structure vicinale du substrat induite par son découpage. La diminution de l'effet des marches lorsque l'épaisseur augmente pourrait alors expliquer la variation de  $H_u$  en fonction de l'épaisseur. Cependant, jusqu'à présent, je n'ai pas d'interprétation complètement satisfaisante de la présence de  $H_u$  ni de ses variations en fonction de la nature de la couche de protection.

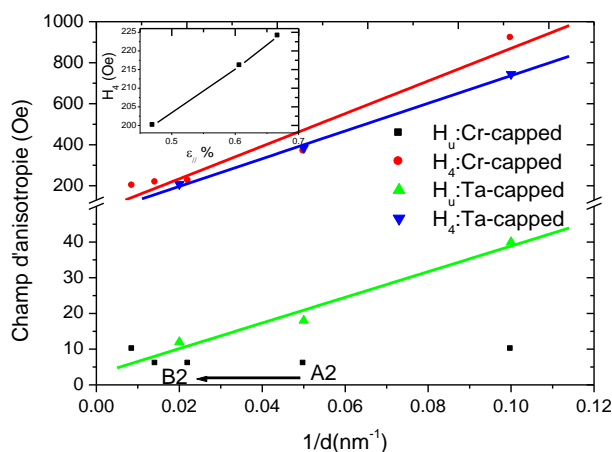


Figure 4.18 : Variations des champs d'anisotropie uniaxiale ( $H_u$ ) et d'ordre 4 ( $H_4$ ) extraits des ajustements des mesures FMR. Les lignes continues correspondent à l'ajustement linéaire. La petite figure en arrière-plan (insert) représente l'évolution de  $H_4$  pour les couches de CFA d'épaisseur 45, 70 et 115 en fonction de la déformation bi-axiale dans le plan.

Pour les couches CFA déposées sur substrat Si, la dépendance angulaire typique des champs de résonance représentée sur la figure 4.19 pour des épaisseurs de 20 nm et 50 nm ne révèle que la présence d'une anisotropie uniaxiale. Les champs d'anisotropie uniaxiale extraits de l'ajustement des mesures FMR par le modèle décrit ci-dessus sont résumés dans le tableau 4.1. Le champ  $H_u$ , représenté sur la figure 4.20(a), varie linéairement avec l'inverse de l'épaisseur des couches.

En supposant que cette dépendance en fonction de l'épaisseur est due à une anisotropie uniaxiale de surface ( $H_u = H_{uV} + 4K_{us}/M_s d$ ), les constantes d'anisotropie uniaxiale de surface estimées à partir de l'ajustement linéaire des champs d'anisotropie uniaxiale sont  $K_{us} = 7 \times 10^{-3}$  erg/cm<sup>2</sup> et  $K_{us} = 9 \times 10^{-3}$  erg/cm<sup>2</sup>, pour les couches CFA déposées sur Si et sur MgO, respectivement. Cependant, la direction facile de cette anisotropie uniaxiale, déterminée à 90° près, change avec l'épaisseur (voir tableau 4.1 et figure 4.20(b)), ce qui complique l'identification de son origine. L'absence d'anisotropie d'ordre 4 pour les couches de CFA déposées sur Si est en bon accord avec la nature isotrope du dépôt dans le plan et suggère qu'au moins une partie de l'anisotropie d'ordre 4 est d'origine magnétocristalline.

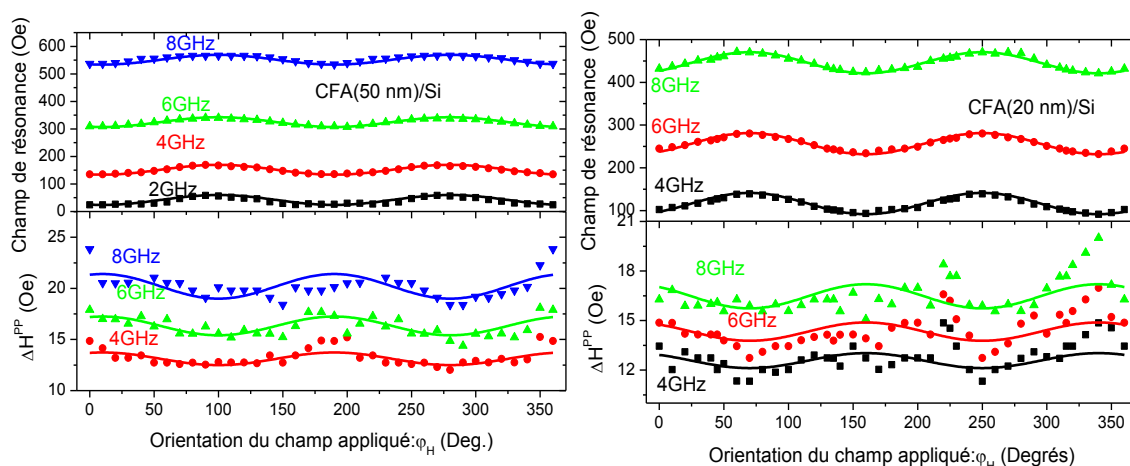


Figure 4.19: Dépendance angulaire des champs de résonance ( $H_r$ ) et de la largeur de raie FMR ( $\Delta H^{PP}$ ) pour des couches de  $Co_2FeAl$  de 20 et 50 nm d'épaisseur recouvertes de Ta et déposées sur Si. Les lignes continues correspondent aux ajustements par le modèle décrit ci-dessus.

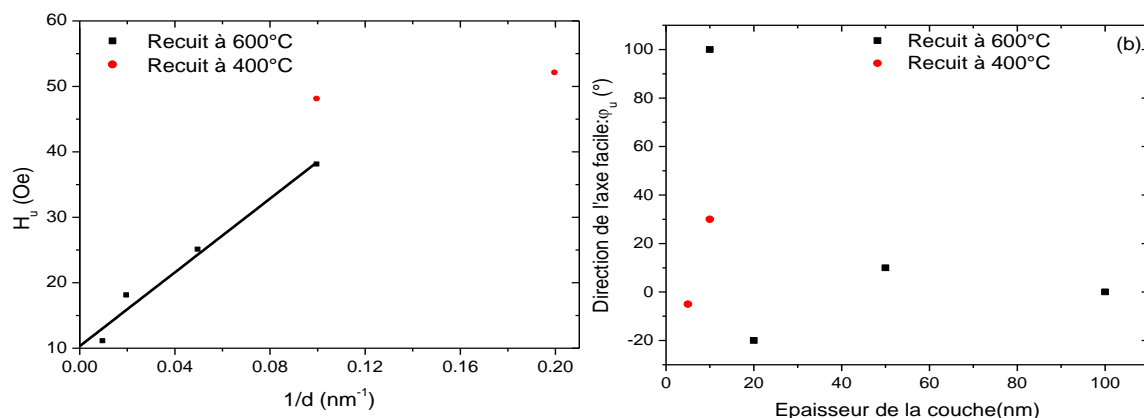


Figure 4.20 : Variations (a) des champs d'anisotropie uniaxiale ( $H_u$ ) et (b) de la direction de l'axe facile ( $\phi_u$ ) extraits des ajustements des mesures FMR. La ligne continue correspond à l'ajustement linéaire.

Pour les couches déposées sur STO, la dépendance angulaire des champs de résonance est représentée sur la figure 4.21(a) pour trois fréquences d'excitation et pour une couche de 20 nm d'épaisseur. Comme dans le cas des couches minces déposées sur MgO, cette dépendance angulaire montre que l'anisotropie magnétique résulte de la superposition d'une forte anisotropie d'ordre 4 à une faible anisotropie uniaxiale ayant un axe facile commun selon [110]. Les couches de 50 nm et 10 nm d'épaisseurs ont montré une certaine inhomogénéité qui s'est manifestée par l'apparition de deux modes uniformes traduisant probablement les deux phases, épitaxiale et polycristalline, mentionnées ci-dessus. Ceci a rendu difficile l'évaluation avec précision des champs d'anisotropie planaire. Les champs d'anisotropie extraits de l'ajustement des mesures FMR par le modèle décrit ci-dessus sont résumés dans le tableau 4.1.

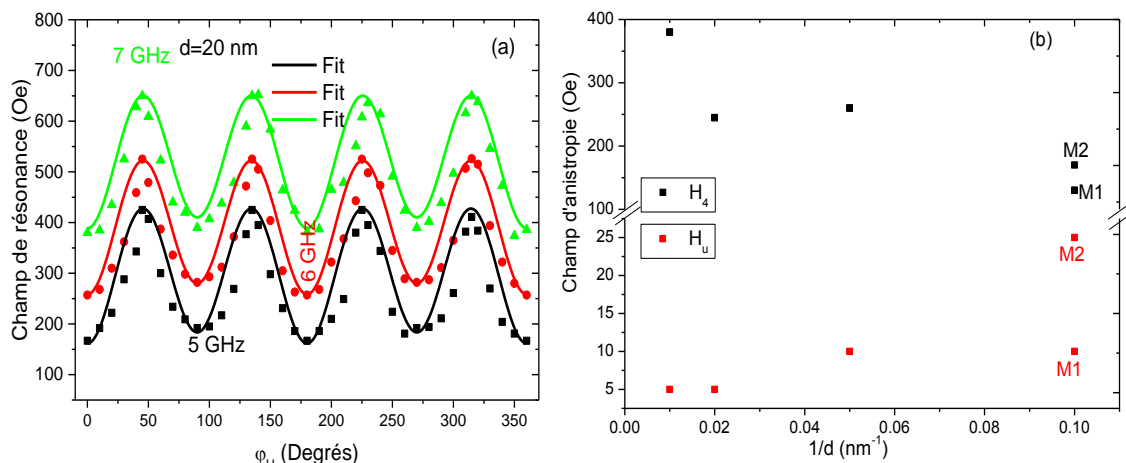


Figure 4.21: (a) Dépendance angulaire des champs de résonance pour une couche de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  de 20 nm d'épaisseur déposée sur STO. Les lignes continues correspondent aux ajustements par le modèle décrit ci-dessus. (b) Variations, en fonction de l'inverse de l'épaisseur des couches CFA déposées sur STO, des champs d'anisotropie uniaxiale ( $H_u$ ) et d'ordre 4 ( $H_4$ ) extraits des ajustements des mesures FMR.

d(nm)	$H_u$ (Oe)		$H_4$ (Oe)		$\varphi_u$ (°)		$\varphi_4$ (°)		$4\pi M_{\text{eff}}$ (kOe)	$\gamma/2\pi$ (GHz/kOe)	$A_{\text{éch}}$ ( $\mu\text{erg/cm}$ )	$T_{\text{recuit}}^\circ$ (°C)	
	FMR	TBIIST	FMR	TBIIST	FMR	TBIIST	FMR	TBIIST					
<b>Substrat MgO, couche de couverture Cr</b>													
115	10	9.5	200	200.5	0	0	0	0	12.9	2.92	1.45	600	
70	6	12	216	202	0	0	0	0	13.6	2.92	1.5	600	
45	6	10	224	201	0	0	0	0	13.6	2.92	1.5	600	
20	6	7	368	375	0	0	0	0	14.8	2.92	nd	600	
10	10	nm	920	nm	0	nm	0	nm	19.7	2.92	nd	600	
<b>Substrat MgO, couche de couverture Ta</b>													
50	12	11	208	200	0	0	0	0	13.5	2.92	1.5	600	
20	18	18.5	384	376	0	0	0	1.3	15	2.92	nd	600	
10	40	38	744	776	0	0	0	0	19.2	2.92	nd	600	
<b>Substrat Si, couche de couverture Ta</b>													
100	11	9.5	0	0	0	11	nn	nn	12.7	2.92	1.5	600	
50	18	17	0	0	10	7	nn	nn	13.2	2.92	1.5	600	
20	25	21	0	0	-20	-16	nn	nn	16.5	2.92	nd	600	
10	48	nm	0	0	30	nm	nn	nn	10.9	2.92	nd	400	
10	38	32	0	0	100	101	nn	nn	17	2.92	nd	600	
5	52	nm	0	0	-5	nm	nn	nn	11.5	2.92	nd	400	
<b>Substrat STO, couche de couverture CoFe</b>													
100	5	nm	380	nm	0	nm	0	nm	9.82	2.92	1.5	480	
50	5	nm	245	nm	0	nm	0	nm		2.92	nd	480	
20	10	nm	260	nm	0	nm	0	nm	11.5	2.92	nd	480	
10	M1 10	M2 25	nm	M1 130 M2 170	nm	M1 0 M2 90	nm	0	nm	13.75	2.92	nd	480

Tableau 4.1 : Paramètres magnétiques obtenus pour les meilleurs ajustements des mesures FMR et TBIIST sur les couches CFA de différentes épaisseurs déposées sur substrats de MgO, Si et de STO. nd : non déterminé, nn : non nécessaire et nm : non mesuré.

#### 4.4.3.3 Largeur de raie FMR

Contrairement aux couches déposées sur MgO, le champ d'anisotropie des couches de CFA déposées sur STO diminue linéairement en fonction de l'inverse de l'épaisseur des couches CFA (*Figure 4.21(b)*). Ceci est dû aux contraintes en compression infligées aux couches déposées sur STO. L'existence de cette anisotropie d'ordre 4 est un autre indicateur d'une bonne épitaxie planaire des couches de CFA.

La dépendance angulaire de la largeur de raie FMR pic à pic ( $\Delta H^{PP}$ ) des couches de CFA de 50 nm et 20 nm d'épaisseur, recouvertes de Ta et déposées sur MgO est représentée sur la *figure 4.17* pour trois fréquences d'excitation: 6, 8, et 9 GHz.  $\Delta H^{PP}$  est définie comme étant la différence entre les champs correspondants aux extrema du spectre FMR. La majorité des échantillons montre qualitativement un comportement semblable à celui des couches présentées ici. Les positions des extrema dépendent de l'échantillon. L'anisotropie prononcée de la largeur de raie ne peut pas être due à la contribution de l'amortissement de Gilbert, qui devrait être isotrope, et doit provenir d'autres mécanismes d'amortissement extrinsèques. Pour la couche de 50 nm d'épaisseur les variations de  $\Delta H^{PP}$  présentent une symétrie d'ordre 4 parfaite (en accord avec la variation du champ de résonance). Un tel comportement est caractéristique du processus de diffusion à deux magnons. Cet effet est lié à la présence de défauts orientés préférentiellement suivant des directions cristallographiques spécifiques. En ce qui concerne la couche de 20 nm d'épaisseur, la dépendance angulaire de  $\Delta H^{PP}$  est plus compliquée et présente huit maxima, indiquant ainsi une contribution supplémentaire induite par la mosaïcité. Dans ces conditions, la dépendance angulaire de la largeur de raie FMR dans ces échantillons peut être expliquée comme résultant des quatre contributions apparaissant dans l'équation (4.8). Les variations des largeurs  $\Delta H^{PP}$  obtenues à partir des spectres FMR mesurés pour des champs appliqués le long des axes facile et difficile (pour ce dernier cas, seulement pour la couche de 10 nm d'épaisseur :  $\varphi_H=45^\circ$ ), en fonction de la fréquence sont représentées sur la *figure 4.22(a)*. En principe, les paramètres pertinents pourraient être extraits de l'analyse conjointe des variations de  $\Delta H^{PP}$  en fonction de la fréquence et de la direction du champ appliqué. Toutefois, en raison de la précision expérimentale limitée, des hypothèses supplémentaires sont nécessaires afin de permettre une détermination complète de l'ensemble des paramètres décrivant l'amortissement intrinsèque (Gilbert) et les contributions liées à la diffusion à deux magnons. Pour la plupart des mesures présentées ici, les fréquences d'excitation ne sont pas supérieures à  $f_0$  et sont généralement plus petites ( $f_0$  varie de 18.5 à 28.5 GHz, selon l'épaisseur des couches). Il en résulte que les contributions à deux magnons

sont pratiquement proportionnelles à  $f$  et que la somme des largeurs des raies dues aux amortissements de Gilbert et à la diffusion à deux magnons peut s'écrire (voir les équations (4.9) et (4.11)):

$$\Delta H^{\text{Gi}+2\text{mag}} \cong \left( \left( \frac{\alpha}{\sqrt{3}} + \frac{\Gamma_0}{2H_{\text{eff}}} \right) + \frac{\Gamma_2}{2H_{\text{eff}}} \cos 2(\varphi_{\text{H}} - \varphi_2) + \frac{\Gamma_4}{2H_{\text{eff}}} \cos 4(\varphi_{\text{H}} - \varphi_4) \right) \frac{4\pi}{\gamma} f \quad (4.13)$$

Il n'est donc pas possible d'identifier complètement les contributions séparées de Gilbert et de type "deux magnons" en n'utilisant que l'équation (4.13). La variation quasi-linéaire de  $\Delta H^{\text{PP}}$  en fonction de la fréquence (*Figure 4.22a*) permet d'extraire un paramètre d'amortissement efficace  $\alpha_{\text{eff}}$ , qui dépend de la direction du champ appliqué en raison de la diffusion à deux magnons. Les valeurs de  $\alpha_{\text{eff}}$  déterminées expérimentalement, à partir de l'ajustement linéaire des données présentées dans la *figure 4.22(a)*, varient de 0.0068 à 0.00154. Les dépendances angulaires de la largeur de raie permettent d'évaluer ( $\Gamma_2$ ,  $\varphi_2$ ) et ( $\Gamma_4$ ,  $\varphi_4$ ) mais pour le terme isotrope figurant dans l'équation (4.13) seule la somme  $\left( \alpha + \frac{\sqrt{3}\Gamma_0}{2H_{\text{eff}}} \right)$  peut être estimée. Cependant, puisque  $\alpha$  ne peut pas être négatif, la valeur maximale de  $\Gamma_0$  (correspondant à  $\alpha = 0$ ) est obtenue facilement. De plus, la valeur minimale de  $\Gamma_0$  peut être estimée en remarquant que l'équation (4.13) peut aussi s'écrire sous la forme:

$$\Delta H^{\text{Gi}+2\text{mag}} \cong \left( \left( \frac{\alpha}{\sqrt{3}} + \frac{\Gamma_0 - |\Gamma_2| - \Gamma_4}{2H_{\text{eff}}} \right) + \frac{\Gamma_2}{2H_{\text{eff}}} (1 \pm \cos 2(\varphi_{\text{H}} - \varphi_2)) + \frac{|\Gamma_4|}{2H_{\text{eff}}} (1 \pm \cos 4(\varphi_{\text{H}} - \varphi_4)) \right) \frac{4\pi}{\gamma} f \quad (4.14)$$

où le troisième et le quatrième termes représentent les contributions d'ordre 2 et d'ordre 4. La contribution à deux magnons résiduelle isotrope supplémentaire (représentée par le deuxième terme) ne peut pas être négative. Par conséquent:  $\Gamma_0 > |\Gamma_2| + |\Gamma_4|$ . En introduisant cette valeur minimale accessible de  $\Gamma_0$ , la valeur maximale du coefficient d'amortissement de Gilbert  $\alpha$  est facilement obtenue. En résumé, pour chaque échantillon, les données expérimentales fournissent les intervalles des valeurs possibles de  $\alpha$  et de  $\Gamma_0$ , qui sont respectivement  $[0, \alpha_{\text{min}}]$  et  $[ (|\Gamma_2| + |\Gamma_4|), \Gamma_{0\text{Max}} ]$ . La valeur de  $\alpha$  choisie dans l'intervalle  $[0, \alpha_{\text{min}}]$  permet de déduire  $\Gamma_0$ . Le plus petit intervalle calculé pour  $\alpha$ , égal à  $[0, 1.4 \times 10^{-3}]$ , est obtenu pour la couche de 70 nm d'épaisseur. Prenant en compte la valeur de  $\alpha = 1.1 \times 10^{-3}$  rapportée par Mizukami et al.[20], j'ai supposé que  $\alpha = 1.1 \times 10^{-3}$  pour tous les échantillons et j'ai pu alors calculer  $\Gamma_0$  pour chacun d'entre eux. Les valeurs de  $\Gamma_0$ ,  $\Gamma_2$ ,  $\Gamma_4$ ,  $\varphi_2$ ,  $\varphi_4$  sont indiquées dans le tableau 4.2 qui contient également les paramètres décrivant les contributions dues à la mosaïcité et à l'inhomogénéité.

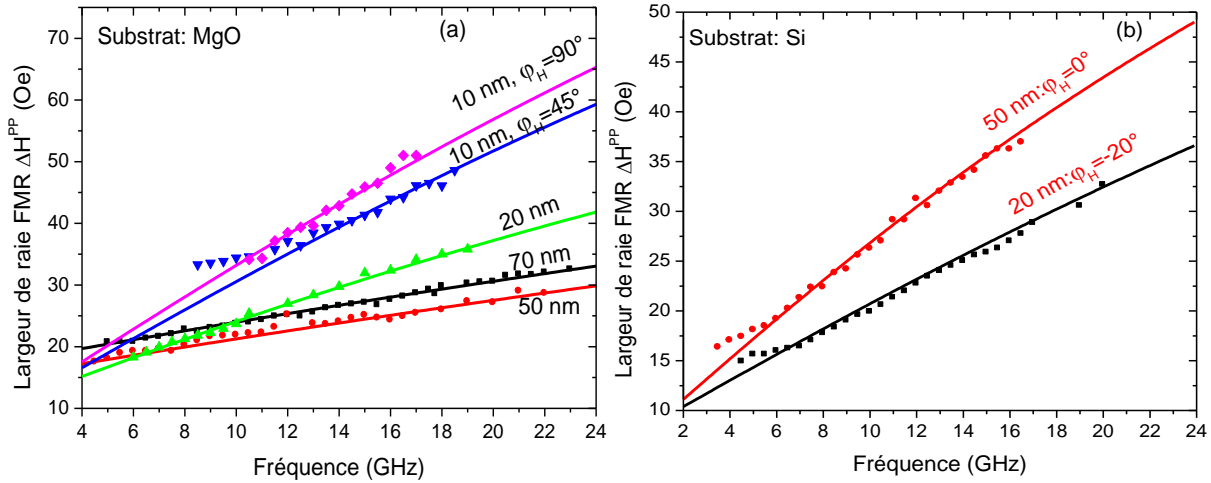


Figure 4.22: Dépendance fréquentielle des largeurs des raies FMR pic à pic ( $\Delta H^{PP}$ ), mesurées pour des champs magnétiques appliqués selon l'axe facile, des couches minces de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  de différentes épaisseurs déposées sur substrats (a) de MgO et (b) de Si. Pour la couche de 10 nm d'épaisseur la largeur de raie mesurée selon l'axe difficile ( $\phi_H=45^\circ$ ) est aussi représentée. Les lignes continues représentent les ajustements de ces largeurs de raie en utilisant les équations 4.8-4.11.

Les contributions de types “deux magnons” et “mosaïcité” à la largeur de raie  $\Delta H^{PP}$  augmentent quand l'épaisseur diminue à cause de la dégradation de la structure et de l'ordre chimique, mentionnés plus haut. Le terme d'ordre uniaxial  $\Gamma_2$  est observé uniquement dans les couches les plus minces (20 nm et 10 nm).  $\phi_4$  est égale à 0, mais le signe de  $\Gamma_4$  dépend de l'épaisseur. Enfin, il est important de noter que la très faible valeur de l'amortissement intrinsèque dans les couches de CFA étudiées fait du CFA un matériau prometteur pour les applications spintroniques.

Pour les couches de CFA déposées sur Si, la dépendance angulaire typique des largeurs des raies FMR, représentée sur la *figure 4.19*, révèle une anisotropie uniaxiale très probablement due à une faible contribution du processus de diffusion à deux magnons. Les variations de cette largeur de raie en fonction de la fréquence sont illustrées sur la *figure 4.22(b)* pour les couches de 20 et de 50 nm d'épaisseur. Contrairement au cas des couches déposées sur MgO, cette largeur de raie ne présente pas de dépendance régulière en fonction de l'épaisseur. En suivant la même démarche que ci-dessus, on utilise une valeur du coefficient d'amortissement ( $\alpha=1.3 \times 10^{-3}$ ) légèrement supérieure à celle des couches déposées sur MgO du fait de la meilleure qualité cristallographique de ces dernières. Les autres paramètres régissant ces largeurs de raie, extraits des ajustements de leurs dépendances angulaires et fréquentielles sont résumés dans le tableau 4.2.

Dans le cas des couches déposées sur STO, comme nous l'avons noté ci-dessus, mis à part le CFA de 100 nm d'épaisseur, tous les films, plus particulièrement les 50 nm et 10 nm,

ont montré une certaine inhomogénéité qui s'est manifestée par l'apparition de deux modes uniformes. En fonction de l'orientation du champ appliqué dans le plan et de la fréquence, ces deux modes ont présenté des difficultés pour la détermination de la largeur de raie qui a empêché l'analyse des dépendances angulaires et fréquentielles et par conséquent d'extraire la valeur du coefficient d'amortissement de Gilbert.

d(nm)	Substrat	Cap-layer	$\alpha$	$\Delta H^{inh}$ (Oe)	$\Delta\varphi_H$ (°)	$\Gamma_0$ (Oe)	$\Gamma_2$ (Oe)	$\Gamma_4$ (Oe)	$\varphi_2$ (°)	$\varphi_4$ (°)
70	MgO	Cr	$1.1 \times 10^{-3}$	16.8	0.17	7.5	0	2.5	np	0
50	MgO	Ta	$1.1 \times 10^{-3}$	14.5		24	0	-14	np	0
20	MgO	Ta	$1.1 \times 10^{-3}$	7	0.37	49.5	5	-2.5	0	0
10	MgO	Ta	$1.1 \times 10^{-3}$	6.5	0.51	124	3.5	12.5	0	0
50	Si	Ta	$1.3 \times 10^{-3}$	8	nn	53.5	6.5	0	10	np
20	Si	Ta	$1.3 \times 10^{-3}$	8	nn	34	5	0	-20	np

Tableau 4.2: Paramètres magnétiques obtenus pour les meilleurs ajustements des dépendances angulaire et en fréquence de la largeur de raie FMR des couches CFA de différentes épaisseurs déposées sur substrats de Si et de MgO. np : non pertinent.

#### 4.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à l'effet de l'épaisseur sur les propriétés structurales et magnétiques des couches minces de CFA déposées sur différents substrats: MgO, Si et STO. Nous avons utilisé la diffraction X pour analyser la croissance des films CFA. Ainsi, les films déposés sur MgO et STO présentent une épitaxie impliquant une rotation de  $45^\circ$  dans le plan du CFA par rapport au substrat. Les valeurs de paramètres de mailles déduites ont montré que les couches déposées sur MgO sont en traction dans le plan alors que celle déposées sur STO sont en compression du fait de la différence de paramètre de maille entre STO et MgO. Cependant, dans le cas de Si, les CFA ne présentent aucune direction privilégiée avec le substrat à cause très probablement de la couche amorphe de  $\text{SiO}_2$ . Ces études de diffraction X ont aussi révélé que lorsque l'épaisseur augmente, une amélioration de l'ordre chimique est observée et une évolution de la phase A2 vers B2, pour tous les films CFA, est constatée.

Les mesures magnétiques statiques ont été réalisées par les méthodes VSM et MOKE, elles conduisent à un moment magnétique de  $5.05 \pm 0.25 \mu_B/\text{f.u.}$  Pour toutes les couches déposées sur MgO, nous avons observé un retournement de l'aimantation en une ou deux étapes selon l'orientation du champ appliqué. Ce comportement provient du fait que l'on a une superposition d'une anisotropie uniaxiale et d'une anisotropie d'ordre 4. Cependant, les films déposés sur Si présentent typiquement des cycles gérés par une anisotropie uniaxiale et les champs coercitifs, déduits des cycles mesurés selon l'axe facile montrent une dépendance



angulaire en accord avec le modèle de rotation cohérente. Ces champs coercitifs, augmentent linéairement avec l'inverse de l'épaisseur des couches de CFA probablement à cause de l'amélioration de l'ordre chimique.

Les mesures magnétiques dynamiques ont été effectuées par les méthodes MS-FMR et BLS. Les spectres MS-FMR ont révélé la présence du mode uniforme et de modes stationnaires, dépendant de l'épaisseur de la couche. Mis à part les échantillons déposés sur STO, le premier mode stationnaire est observé pour tous les films possédant une épaisseur supérieure à 45 nm permettant de déterminer la constante d'échange de nos films CFA, estimée à 1.5  $\mu\text{erg/cm}$ , en bon accord avec la valeur déduite des ajustements des mesures BLS. Les mesures MS-FMR ont été effectuées en fonction d'un champ magnétique appliqué dans le plan et perpendiculairement au plan pour tous les substrats. Les ajustements de nos mesures, conduisent à un facteur de Landé :  $g = 2.09$  et à une aimantation effective qui augmente linéairement en fonction de l'inverse de l'épaisseur de tous les films CFA. Une valeur, de signe négatif, de la constante de l'anisotropie perpendiculaire de surface a ainsi été obtenue pour tous les films déposés sur les différents substrats. Le signe négatif de cette constante favorise et renforce l'orientation de l'aimantation dans le plan des films. Nous avons également déterminé les anisotropies magnétiques en comparant les résultats obtenus par les méthodes MS-FMR et TBIIST où un très bon accord a été obtenu. Dans le cas des substrats MgO et STO, les échantillons de CFA ont présenté une faible anisotropie uniaxiale se superposant à une forte anisotropie d'ordre 4 alignée selon les directions cristallographiques [110]. Ces deux anisotropies ont montré des comportements différents en fonction de l'inverse de l'épaisseur qui peut être corrélée aux contraintes planaires infligées aux couches par les substrats. En effet, dans le cas du substrat MgO, l'anisotropie d'ordre 4 augmente en fonction de l'inverse de l'épaisseur et dépend de la transition de phase B2  $\rightarrow$  A2 et des contraintes en traction des couches déposées. Cependant, pour les films CFA déposés sur STO, cette anisotropie augmente avec l'épaisseur du fait des contraintes en compression existantes. Les résultats obtenus, nous amènent à penser que l'anisotropie d'ordre 4 peut avoir une origine magnétocristalline.

*A contrario*, l'absence d'une croissance privilégiée du CFA sur le substrat de Si, a conduit à la présence d'une anisotropie uniaxiale, en bon accord avec la nature isotrope du dépôt. Cette anisotropie augmente avec l'inverse de l'épaisseur pour les films recouverts par

Ta sur MgO ainsi que pour les films déposés sur STO et Si. Nous avons alors déterminé une constante d'anisotropie uniaxiale de surface.

Enfin, nous avons étudié les mécanismes de relaxation à partir de l'analyse des largeurs de raie pic à pic ( $\Delta H^{PP}$ ) à partir des spectres MS-FMR. Nous avons montré que  $\Delta H^{PP}$  est régie par des contributions extrinsèques (deux magnons, mosaïcité et inhomogénéité) et intrinsèques (Gilbert). En suivant la démarche exposée dans le texte, nous avons obtenu un coefficient d'amortissement de  $1.1 \times 10^{-3}$  pour les films déposés sur MgO et de  $1.3 \times 10^{-3}$  pour les films déposés sur Si. Par conséquent, puisque les films sur STO ont montré une certaine inhomogénéité, on n'a pas étudié le comportement de cette largeur de raie et extraire la valeur du coefficient de l'amortissement.

## Bibliographie

- [1] W. Wang, E. Liu, M. Kodzuka, H. Sukegawa, M. Wojcik, E. Jedryka, G. H. Wu, K. Inomata, S. Mitani, and K. Hono, "Coherent tunneling and giant tunneling magnetoresistance in  $\text{Co}_2\text{FeAl}/\text{MgO}/\text{CoFe}$  magnetic tunneling junctions," *Phys. Rev. B*, vol. 81, no. 14, Apr. 2010.
- [2] W. Wang, H. Sukegawa, and K. Inomata, "Temperature dependence of tunneling magnetoresistance in epitaxial magnetic tunnel junctions using a  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  Heusler alloy electrode," *Phys. Rev. B*, vol. 82, no. 9, Sep. 2010.
- [3] M. Oogane, presented at the ATI and IFCAM international workshop on spin-currents, Tohoku University, 20 fevrier-2007.
- [4] M. S. Gabor, T. Petrisor, C. Tiusan, M. Hehn, and T. Petrisor, "Magnetic and structural anisotropies of  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  Heusler alloy epitaxial thin films," *Phys. Rev. B*, vol. 84, no. 13, Oct. 2011.
- [5] H. P. J. Wijn, Ed., *Alloys and Compounds of d-Elements with Main Group Elements. Part 2*, vol. 19c. Berlin/Heidelberg: Springer-Verlag, 1988.
- [6] O. Acher, S. Queste, M. Ledieu, K.-U. Barholz, and R. Mattheis, "Hysteretic behavior of the dynamic permeability on a Ni-Fe thin film," *Phys. Rev. B*, vol. 68, no. 18, Nov. 2003.
- [7] K. Lenz, E. Kosubek, K. Baberschke, H. Wende, J. Herfort, H.-P. Schönherr, and K. Ploog, "Magnetic properties of  $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{GaAs}(001)$  hybrid structures," *Phys. Rev. B*, vol. 72, no. 14, Oct. 2005.
- [8] K. Zakeri, J. Lindner, I. Barsukov, R. Meckenstock, M. Farle, U. von Hörsten, H. Wende, W. Keune, J. Rucker, S. Kalarickal, K. Lenz, W. Kuch, K. Baberschke, and Z. Frait, "Spin dynamics in ferromagnets: Gilbert damping and two-magnon scattering," *Phys. Rev. B*, vol. 76, no. 10, Sep. 2007.
- [9] R. Arias and D. L. Mills, "Extrinsic contributions to the ferromagnetic resonance response of ultrathin films," *J. Appl. Phys.*, vol. 87, no. 9, p. 5455, 2000.
- [10] R. Arias and D. Mills, "Extrinsic contributions to the ferromagnetic resonance response of ultrathin films," *Phys. Rev. B*, vol. 60, no. 10, pp. 7395–7409, Sep. 1999.
- [11] D. L. Mills and R. Arias, "The damping of spin motions in ultrathin films: Is the Landau–Lifschitz–Gilbert phenomenology applicable?," *Phys. B Condens. Matter*, vol. 384, no. 1–2, pp. 147–151, Oct. 2006.

- [12] S. Trudel, O. Gaier, J. Hamrle, and B. Hillebrands, "Magnetic anisotropy, exchange and damping in cobalt-based full-Heusler compounds: an experimental review," *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 43, no. 19, p. 193001, May 2010.
- [13] R. P. Cowburn, S. J. Gray, J. Ferré, J. A. C. Bland, and J. Miltat, "Magnetic switching and in-plane uniaxial anisotropy in ultrathin Ag/Fe/Ag(100) epitaxial films," *J. Appl. Phys.*, vol. 78, no. 12, p. 7210, 1995.
- [14] D. Berling, "Corrélation entre structure – morphologie – anisotropies magnétique et magnéto-optique de couches minces de Fer épitaxiées sur Silicium," Université de Haute-Alsace, Mulhouse, 2006.
- [15] D. Berling, S. Zabrocki, R. Stephan, G. Garreau, J. L. Bubendorff, A. Mehdaoui, D. Bolmont, P. Wetzel, C. Pirri, and G. Gewinner, "Accurate measurement of the in-plane magnetic anisotropy energy function in ultrathin films by magneto-optics," *J. Magn. Mater.*, vol. 297, no. 2, pp. 118–140, Feb. 2006.
- [16] S. Ikeda, K. Miura, H. Yamamoto, K. Mizunuma, H. D. Gan, M. Endo, S. Kanai, J. Hayakawa, F. Matsukura, and H. Ohno, "A perpendicular-anisotropy  $\text{CoFeB-MgO}$  magnetic tunnel junction," *Nat. Mater.*, vol. 9, no. 9, pp. 721–724, Sep. 2010.
- [17] D. C. Worledge, G. Hu, D. W. Abraham, J. Z. Sun, P. L. Trouilloud, J. Nowak, S. Brown, M. C. Gaidis, E. J. O'Sullivan, and R. P. Robertazzi, "Spin torque switching of perpendicular Ta| $\text{CoFeB}$ | $\text{MgO}$ -based magnetic tunnel junctions," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 98, no. 2, p. 022501, 2011.
- [18] W.-G. Wang, M. Li, S. Hageman, and C. L. Chien, "Electric-field-assisted switching in magnetic tunnel junctions," *Nat. Mater.*, vol. 11, no. 1, pp. 64–68, Nov. 2011.
- [19] Y. Roussigné, F. Ganot, C. Dugautier, P. Moch, and D. Renard, "Brillouin scattering in  $\text{Co/Cu/Co}$  and  $\text{Co/Au/Co}$  trilayers: Anisotropy fields and interlayer magnetic exchange," *Phys. Rev. B*, vol. 52, no. 1, pp. 350–360, Jul. 1995.
- [20] S. Mizukami, D. Watanabe, M. Oogane, Y. Ando, Y. Miura, M. Shirai, and T. Miyazaki, "Low damping constant for  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  Heusler alloy films and its correlation with density of states," *J. Appl. Phys.*, vol. 105, no. 7, p. 07D306, 2009.

# Chapitre V :

## Effet de la température de recuit sur les propriétés structurales et magnétique des films $\text{Co}_2\text{FeAl}$

---

5.1	Introduction .....	118
5.2	Préparation des échantillons .....	118
5.3	Propriétés structurales.....	119
5.4	Propriétés magnétiques.....	121
5.4.1	Propriétés magnétiques statiques .....	121
5.4.2	Propriétés magnétiques dynamiques .....	123
5.5	Conclusion.....	128
	Bibliographie .....	130

## 5.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, nous avons discuté l'effet du substrat et de l'épaisseur sur les propriétés magnétiques et structurales des couches de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$ . Nous avons vu que les propriétés structurales de ces couches minces sont étroitement liées aux propriétés du substrat sur lequel elles sont déposées et de l'épaisseur de la couche. Outre ces effets, La température de recuit des alliages Heusler est un facteur important pour l'établissement de l'ordre atomique et la cristallisation. Des mesures analogues à l'influence de l'épaisseur de la couche CFA, discutées précédemment, sur les propriétés magnétiques ont été effectuées afin d'obtenir la température de recuit optimale. Nous montrerons par la suite que la température de recuit est un paramètre très efficace pour optimiser plusieurs propriétés importantes permettant la production de couches de CFA de haute qualité.

## 5.2 Préparation des échantillons

Les couches CFA sont déposés sur les substrats de MgO (001) de Si(001)/ $\text{SiO}_2$  et  $\text{SrTiO}_3$  (STO) avec le système de pulvérisation sous pression de  $3 \times 10^{-9}$  Torr. Par la suite et pour les échantillons sur MgO et Si, une couche tampon de MgO de 4 nm est déposée à température ambiante par la méthode de la pulvérisation cathodique en mode *rf* (radiofréquence) à partir d'une cible polycristalline de MgO sous une pression d'argon de 15 mTorr. Dans le cas du substrat STO, nous avons utilisé une couche tampon CoFe de 3 nm. Nous avons ensuite procédé au dépôt des couches de CFA en de 10 nm et de 50 nm par pulvérisation cathodique en mode *dc* (courant continu) et à température ambiante sous une pression d'argon de 1 mTorr avec une vitesse de 0.1 nm/s.

Substrat	d(nm)	Composition	Température de recuit (°C)			
MgO	50	MgO/MgO(4nm)/CFA(50nm)/MgO(4nm)/Ta(4nm)	315	415	515	615
STO	10	STO/CoFe(3nm)/CFA(10nm)/Cr(5nm)	415	515	565	615
Si	10	$\text{SiO}_2$ /MgO(4nm)/CFA(10nm)/MgO(4nm)/Ta(4nm)	415	515	615	
Si	50	$\text{SiO}_2$ /MgO(4nm)/CFA(50nm)/MgO(4nm)/Ta(4nm)	415	515	615	RT

Tableau 5.1 : caractéristiques des différents échantillons utilisés pour étudier l'effet de la température de recuit sur les propriétés structurales et magnétiques

Enfin, les films sur MgO et Si sont recouverts par une bicouche de MgO(4nm)/Ta(4nm) tandis qu'une couche de Cr est utilisée pour protéger les couches déposées sur STO. Les échantillons ont été recuits à plusieurs températures pendant 15 minutes comme le montre le tableau 5.1. La couche de 10 nm d'épaisseur est choisie pour étudier l'effet de la

température de recuit sur l'anisotropie de surface (aimantation effective) alors que la couche de 50 nm a servi à l'investigation de cet effet sur la constante d'échange.

### 5.3 Propriétés structurales

Par manque du temps, seules les propriétés structurales des échantillons déposés sur MgO et Si ont été caractérisées par XRD. La *figure 5.1* montre les diagrammes  $\theta$ - $2\theta$  de diffraction X pour les couches CFA de 50 nm d'épaisseur déposées sur des substrats de MgO, recuites à différentes températures et sur des substrats de Si (en configuration d'incidence rasante (GI)) recuite à 615° C, respectivement.

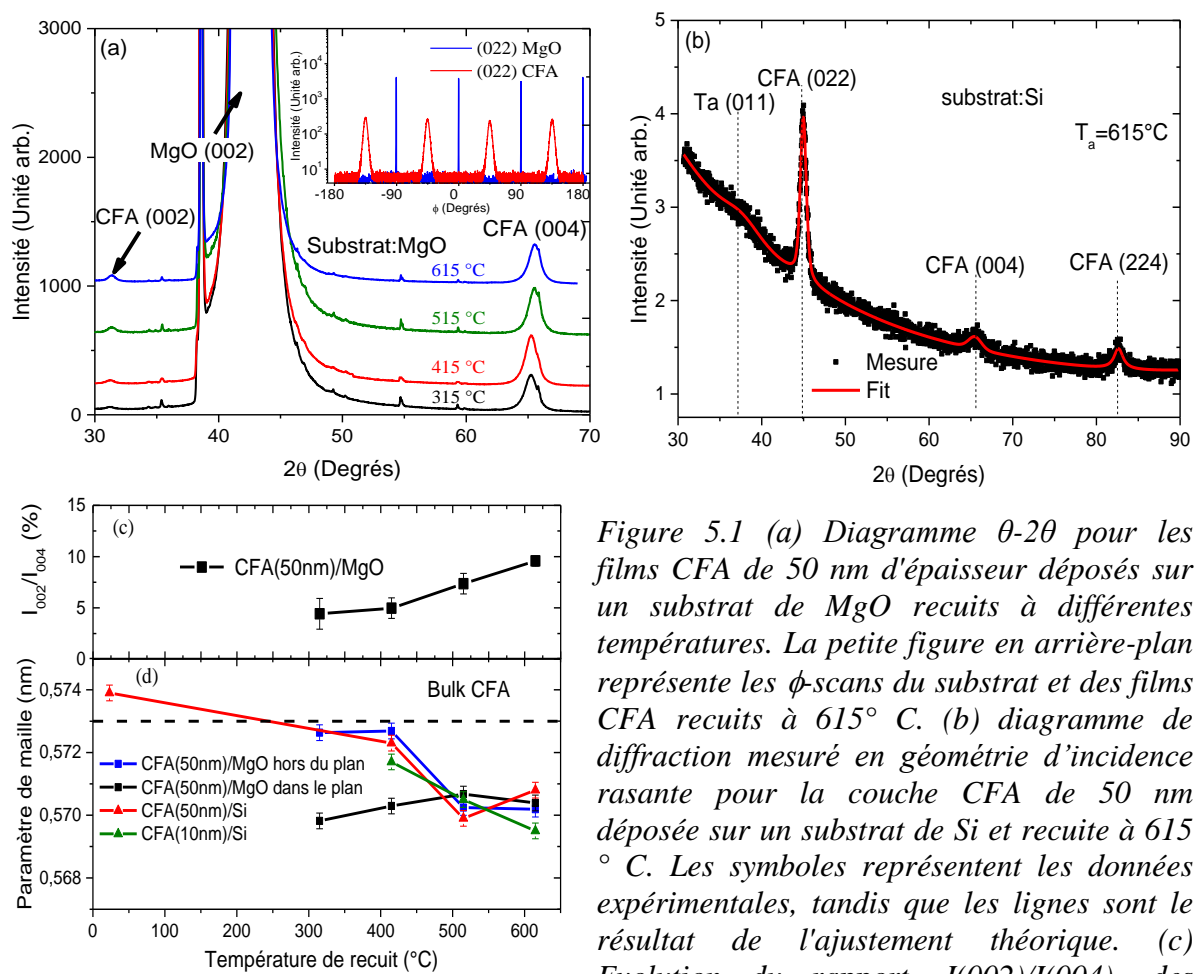


Figure 5.1 (a) Diagramme  $\theta$ - $2\theta$  pour les films CFA de 50 nm d'épaisseur déposés sur un substrat de MgO recuits à différentes températures. La petite figure en arrière-plan représente les  $\phi$ -scans du substrat et des films CFA recuits à 615° C. (b) diagramme de diffraction mesuré en géométrie d'incidence rasante pour la couche CFA de 50 nm déposée sur un substrat de Si et recuite à 615° C. Les symboles représentent les données expérimentales, tandis que les lignes sont le résultat de l'ajustement théorique. (c) Evolution du rapport,  $I(002)/I(004)$ , des intensités de pics (002) et les crêtes (004) de  $Co_2FeAl$  en fonction de à la température de recuit pour la couche de 50 nm déposée sur MgO substrats. (d) Evolution du paramètre de réseau comme fonction de la température de recuit pour les couches CFA de 10 nm et 50 nm déposées sur des Si et MgO.

Cette figure montre qu'en plus de la raie (002) du substrat de MgO, les couches de CFA (*Figure 5.1(a)*) présentent seulement deux pics qui sont attribués aux raies de diffraction (002) et (004) de CFA. Le pic (004) est prévu pour la structure de type A2, tandis que

l'existence d'une raie supplémentaire (002) indique une structure de type B2. Puisque le rapport  $I_{002}/I_{004}$  de l'intensité intégrée des pics (002) et (004) augmente en fonction de la température du recuit  $T_a$  (Figure 5.1(c)), l'ordre chimique varie de la phase B2 vers la phase A2 lors de la diminution de  $T_a$  [1]. Cependant, le rapport  $I_{002}/I_{004}$  est nettement inférieur à la valeur théorique attendue pour un cristal entièrement en phase B2 [2]. Ceci suggère que, dans l'échantillon étudié et recuit à  $615^\circ\text{C}$ , au moins une partie du film maintient un désordre chimique important et certaines régions amorphes sont probablement présentes. En outre, à partir de l'analyse des données des rayons X, nous avons déduit que les films déposés sur MgO se forment principalement d'un ensemble de cristallites présentant une taille moyenne d'environ 10 nm quelle que soit la température de recuit. Les mesures de rayons X suggèrent une dispersion non négligeable de l'ordre chimique entre ces cristallites. Cette dispersion, ainsi que la quantité relative des régions amorphes évoluent en fonction de la température. Qualitativement, l'augmentation de  $I_{004}$  et de  $I_{002}/I_{004}$  en fonction de  $T_a$  indiquent respectivement une augmentation de la zone cristallisée et une amélioration de l'ordre chimique, mais ces processus ne sont pas complètement atteints à  $615^\circ\text{C}$ .

En revanche, le diagramme de diffraction GIXRD de la couche de CFA déposée sur Si (Figure 5.1(b)) montre clairement des pics correspondant aux raies de réflexion (022), (004) et (224) du CFA, révélant ainsi l'absence d'une croissance épitaxiale de ces couches sur Si, ce qui donne lieu à une structure polycristalline. Les pics de diffraction (hkl) correspondant uniquement aux raies vérifiant la relation  $h+k+l=4n$  (où  $n$  est un entier) suggérant que les films adoptent la structure A2 avec un désordre entre les sites des atomes Co, Fe, et Al. Toutefois, une évaluation précise de l'ordre chimique est difficile à réaliser, en raison du faible signal diffracté. En outre, les figures de pôles (non représentées ici) ont révélé que les couches de CFA déposées sur Si ne présentent pas de directions de croissance préférentielles dans le plan. Contrairement, les  $\phi$ -scans des films déposés sur MgO (Figure 5.1(a)) permettent d'affirmer leur croissance épitaxiale, selon la relation épitaxiale attendue CFA (001)[110]// MgO(001)[100], dans la gamme de température de  $T_a$  explorée.

La figure 5.1(c) montre les variations du paramètre de maille en fonction de la température de recuit pour les différents échantillons. La ligne pointillée représente la valeur pour le CFA massif dans la phase  $L2_1$  la plus ordonnée [3]. Pour les films déposés sur Si, le paramètre de maille a été obtenu à partir de la raie (022) en appliquant l'équation de Bragg. Ce paramètre de maille de la couche non recuite est plus grand que la valeur de référence du CFA



massif et pour les deux substrats; il diminue avec l'augmentation de la température de recuit. Pour les films déposés sur MgO les paramètres de maille dans le plan et hors du plan ont été calculés en utilisant les pics de diffraction (004) et (002), respectivement. La *figure 5.1(d)* montre que la couche non recuite sur Si subit relativement une forte distorsion tétragonale. Lorsque la température de recuit augmente, cette déformation se réduit: pour les films recuits à des températures supérieures à 515 ° C, les paramètres dans et hors du plan présentent des valeurs pratiquement identiques. Cette évolution des échantillons de CFA/MgO(001) a été observée précédemment [1] et la distorsion tétragonale a été attribuée à des contraintes résiduelles résultant de la méthode de dépôt. Malheureusement, dans le cas de films déposés sur Si(001), leur caractère polycristallin ne permet pas une telle étude détaillée et seul le paramètre de maille hors plan a été déterminé. Cependant, nous avons observé que les paramètres de maille de films d'épaisseurs identiques (50 nm), déposés sur Si ou sur MgO sont très proches dans la gamme des  $T_a$  étudiée suggérant que cette diminution de paramètre de maille est due principalement aux contraintes résiduelles.

## 5.4 Propriétés magnétiques

Toutes les mesures magnétiques sont analysées par le modèle de la densité d'énergie qu'on a présentée au chapitre 4. Les mesures magnétiques sont effectuées avec les techniques VSM, MS-FMR et BLS pour déterminer les paramètres magnétiques les plus pertinents.

### 5.4.1 Propriétés magnétiques statiques

Les cycles d'hystérésis ont été mesurés par VSM pour différentes orientations du champ magnétique appliqué et l'aimantation à saturation a été extraite à partir des cycles mesurés selon l'axe facile. Cette dernière (non représentée ici) augmente légèrement (10% de changement) avec l'augmentation de  $T_a$  pour les trois échantillons, ce qui indique une amélioration de l'ordre atomique. La valeur maximale de 1120 emu/cm<sup>3</sup> est obtenue pour un film d'une épaisseur de 10 nm CFA déposé sur un substrat de STO et recuit à 615° C. Cette valeur est plus élevée, par rapport à celle d'une couche similaire déposée sur un substrat de Si, très probablement à cause de diffusion du CoFe à de très hautes températures de recuit. On note aussi que les couches déposées sur MgO présentent une aimantation à saturation légèrement supérieure à celle des couches de même épaisseur déposées sur Si, très probablement à cause de l'amélioration de la qualité cristallographique et l'ordre chimique quand la température de recuit augmente.

La figure 5.2 montre les cycles d'hystérésis typiques, pour un champ magnétique appliqué le long de l'axe facile, pour les couches de CFA de 50 nm d'épaisseur déposées sur les substrats de Si et de MgO. Pour les deux substrats un comportement nettement différent est observé entre les échantillons en fonction de température. La diminution du champ coercitif ( $H_c$ ) avec augmentation de  $T_a$  est une indication de l'amélioration de la structure cristallographique et de l'ordre chimique dans les échantillons recuits. Il convient de mentionner que la dépendance angulaire de l'aimantation rémanente réduite ( $M_r/M_s$ ) (non représentée ici) des films déposés sur Si montre un comportement dominé par l'anisotropie uniaxiale. Lorsque la température de recuit augmente, la qualité de l'échantillon et de l'ordre chimique s'améliorent et l'anisotropie uniaxiale augmente. On mentionne aussi la variation de la direction de l'axe facile de l'anisotropie uniaxiale en fonction de  $T_a$  comme nous le montrons ci-dessous suggérant que cette anisotropie est liée aux conditions de dépôt.

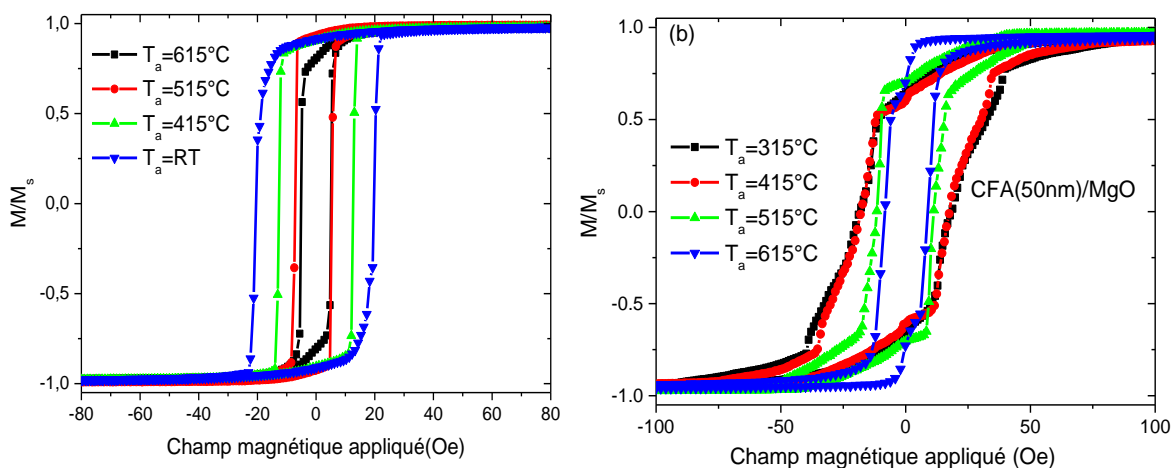


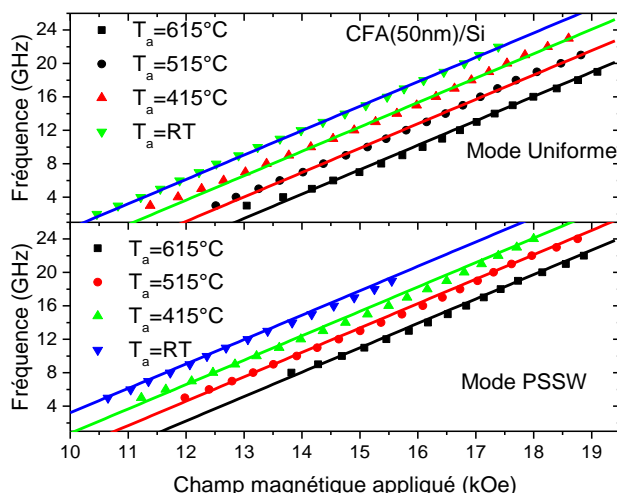
Figure 5.2: Cycles d'hystérésis, pour un champ magnétique appliqué selon l'axe facile, des couches de CFA de 50 nm d'épaisseur recuites à différentes température ( $T_a$ ) et déposées sur (a) substrat de Si (b) substrat de MgO.

Pour les couches de 50 nm d'épaisseur déposées sur le substrat de MgO, les cycles d'hystérésis ont révélé la superposition d'une faible anisotropie uniaxiale à une forte anisotropie d'ordre 4 ayant des axes facile et difficile selon les directions (110) et (100), respectivement. Le mélange des régions présentant différents désordres chimiques, ou encore, des régions amorphes, comme l'a révélé les diffractons des rayons X, génère des zones présentant différentes anisotropies planaires magnétocristallines. Par conséquent, les cycles d'hystérésis mesurés pour les films déposés sur les substrats de MgO présentent une forme non carrée qui s'améliore lorsque la température de recuit augmente. Ceci est confirmé par la forme carrée plein du cycle d'hystérésis obtenu selon l'axe facile lorsque la couche de CFA est recuite à  $750^\circ\text{C}$  (non représenté ici).

## 5.4.2 Propriétés magnétiques dynamiques

### 5.4.2.1 Constante d'échange, aimantation effective et anisotropie

Pour tous les échantillons, les champs, les fréquences de résonance et la largeur de raie FMR (balayage en champ) ont été mesurés en fonction de l'amplitude et de l'orientation du champ magnétique appliqué dans le plan. Le modèle décrit dans le chapitre 4 a été utilisé pour ajuster les données FMR pour déterminer certains paramètres magnétiques. L'analyse de ces mesures FMR a révélé que le facteur gyromagnétique (2.92 GHz/kOe) est indépendant de la température de recuit comme le montre la *figure 5.3* où les variations des fréquences des modes uniforme et PSSW sont représentées en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan de couche CFA de 50 nm d'épaisseur déposée sur Si.



*Figure 5.3 : Variations des fréquences des modes uniforme et PSSW en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan de la couche de CFA de 50 nm déposée sur substrat de Si et recuite à différentes températures.*

Pour tous les substrats, l'aimantation effective augmente avec l'augmentation de la température de recuit comme le montre la *figure 5.4(a)*. Cet effet est plus prononcé pour la couche de 10 nm d'épaisseur déposée sur le substrat de Si via une couche tampon de MgO : la pente de cette fonction linéaire, dans la gamme 415° C-615° C, diminue de 32 Oe/°C à 9 Oe/°C, respectivement, pour les couches de 10 nm et de 50 nm d'épaisseur déposées sur Si. Le film de 50 nm d'épaisseur présente une plus grande pente (13 Oe/°C) par rapport au film CFA similaire déposée sur Si. Cet effet provient de l'interface CFA/MgO, qui est améliorée par l'augmentation de la température de recuit. Le faible effet pour la couche de 10 nm d'épaisseur déposée sur un substrat de STO (pente de 3.2 Oe/°C) en utilisant une couche tampon de CoFe est la preuve que l'origine de cet effet est l'interface CFA/MgO qui s'améliore avec l'augmentation de la température de recuit. Cette anisotropie de surface a également été observée dans les structures à base de CoFeB/MgO, mais contrairement au cas étudié ici, l'interface CoFeB/MgO favorise une orientation de l'aimantation perpendiculaire

au plan des couches  $\text{CoFeB}$ . La constante d'échange, représentée sur la *figure 5.4(b)*, augmente aussi avec la température de recuit en raison de l'amélioration de la structure et de l'ordre atomique. Des valeurs similaires sont obtenues pour les couches de CFA déposées sur les substrats de Si et de  $\text{MgO}$ . La petite différence est due à l'erreur sur l'estimation de l'aimantation à saturation et de l'épaisseur des films. Un comportement similaire a été observé dans les couches de  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$  par Trudel et al.[4].

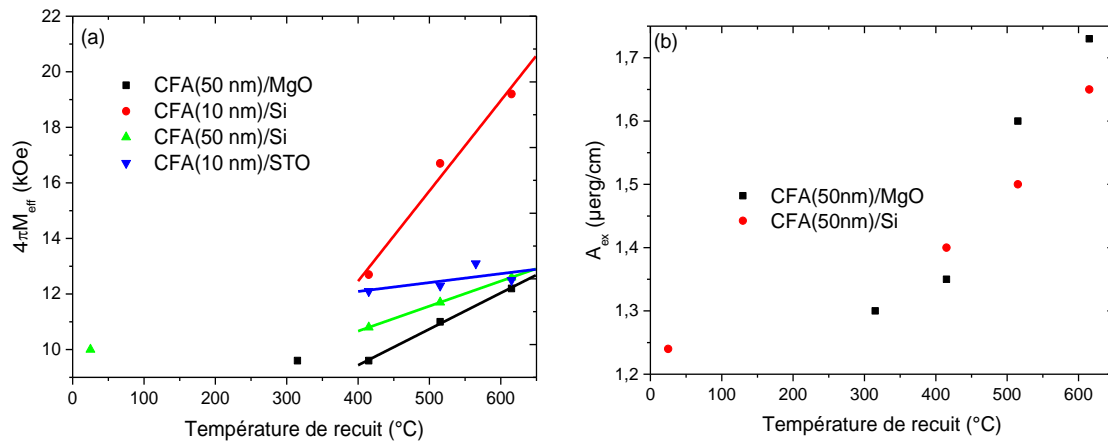


Figure 5.4 : Variations, en fonction de la température de recuit, pour des couches de CFA de différentes épaisseurs déposées sur plusieurs substrats, de (a) l'aimantation effective ( $4\pi M_{\text{eff}}$ ) et (b) la constante d'échange ( $A_{\text{éch.}}$ ).

La *figure 5.5* présente les spectres BLS, mesurés pour la couche de CFA de 50 nm déposée sur  $\text{MgO}$  et recuite à  $615^\circ\text{C}$ , pour différents champs magnétiques appliqués et pour différents vecteur d'ondes  $k_{\parallel}$ . Le comportement de la constante d'échange, de l'aimantation effective et de l'aimantation à saturation en fonction de la température de recuit est obtenu en analysant les fréquences des ondes stationnaires et des modes uniformes. Cette analyse des spectres BLS a confirmé les comportements de la constante d'échange et de l'aimantation effective décrits ci-dessus et un bon accord entre les paramètres est obtenu à partir des mesures BLS et MS-FMR.

La température de recuit a aussi un impact très clair et diversifié sur les différentes anisotropies présentes dans ces couches de CFA, comme le montre la *figure 5.6*. Alors que les champs d'anisotropie uniaxiale ne semblent pas affectés, les champs d'anisotropie d'ordre 4 diminuent avec l'augmentation de la température de recuit, peut-être en raison de l'amélioration de l'ordre atomique. Ces champs d'anisotropie d'ordre 4 pour les couches déposées sur STO sont nettement supérieurs à ceux des couches de même épaisseur déposées sur  $\text{MgO}$  peut être du fait d'une contribution de l'interface CFA/ $\text{MgO}$  à cette anisotropie ou de la meilleur qualité cristallographique des couches déposées sur  $\text{MgO}$ .

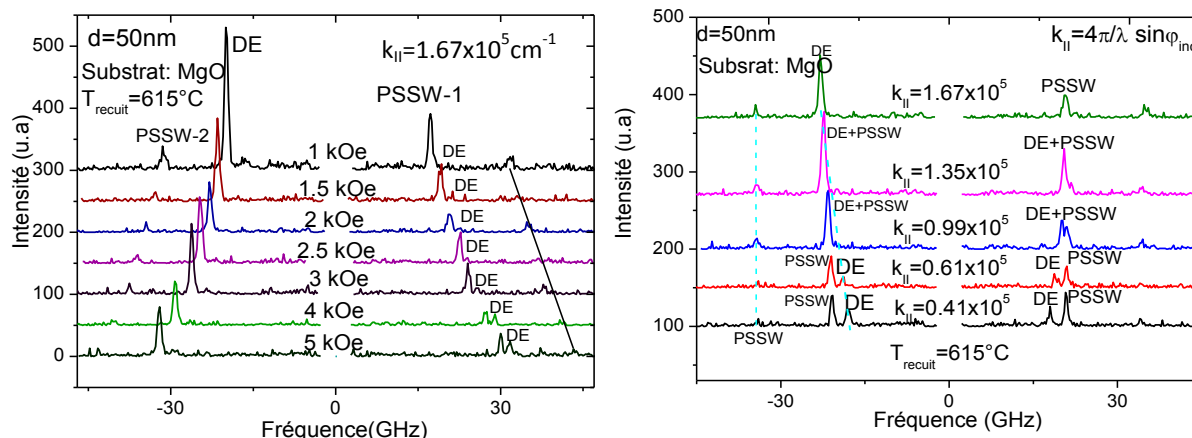


Figure 5.5 : Spectres BLS du film CFA de 50 nm d'épaisseur déposé sur MgO et recuit à 615°C. Ces spectres sont mesurés pour différents champs magnétiques appliqués et différents angles d'incidence. Les lignes noires et cyans sont utilisés pour montrer les positions des pics attendus.

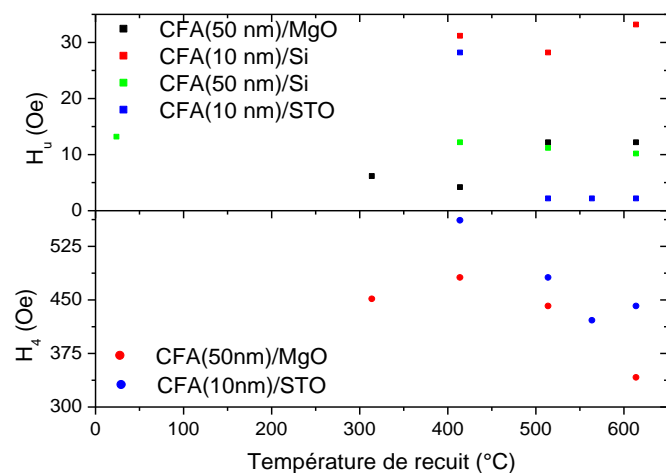


Figure 5.6 : Variations, en fonction de la température de recuit des couches de CFA de différentes épaisseurs déposées sur plusieurs substrats, des champs d'anisotropie d'ordre 4 ( $H_4$ ) et uniaxiale ( $H_u$ ).

Il est clair qu'au moins une partie de cette anisotropie d'ordre 4 est d'origine magnétocristalline puisqu'elle est observée dans les couches de CFA épitaxiées dans le plan (cas des substrats de MgO et STO) et disparaît en l'absence de cette épitaxie (cas du substrat de Si). On note également que la direction de l'axe facile de l'anisotropie planaire uniaxiale (voir tableau 5.2), observée pour les couches déposées sur Si, change avec la température de recuit et que son origine microscopique reste floue. L'effet de la température de recuit sur l'anisotropie d'ordre 4 et sur l'aimantation effective est similaire à l'effet de l'épaisseur du CFA, observée dans le chapitre 4.

Substrat : MgO							
$d_{CFA}$ (nm)	$T^{\circ}_{recuit}$ (°C)	$4\pi M_{eff}$ (kOe)	$H_u=2K_u/M_s$ (Oe)	$H_4=4K_4/M_s$ (Oe)	$\phi_u$ (deg)	$\Phi_4$ (deg)	$A_{éch}$ ( $\mu\text{erg/cm}$ )
50	315	9.5	5	430	0	0	1.3
50	415	9.3	2	465	0	0	1.35
50	515	10.8	12	440	0	0	1.6
50	615	12	12	337	0	0	1.74
Substrat : Si							
10	415	12.7	32	nn	-20	nn	nd
10	515	16.7	29	nn	-10	nn	nd
10	615	19.2	32	nn	-40	nn	nd
50	RT	10	12	nn	-40	nn	1.24
50	415	10.9	11.2	nn	0	nn	1.4
50	515	11.8	10.5	nn	-60	nn	1.5
50	615	12.5	9.5	nn	-50	nn	1.65
Substrat : STO							
10	415	12.1	62	591	0	0	nd
10	515	12.1	45	487	0	0	nd
10	565	12.7	20	425	0	0	nd
10	615	12.8	24	433	0	0	nd

Tableau 5.2 : Paramètres magnétiques pour les couches déposées sur MgO, Si et STO obtenus à partir des ajustements MS-FMR. nn : non nécessaire, nd : non déterminé

#### 5.4.2.2 Largeur de raie FMR

La figure 5.7 représente les variations de la largeur de raie FMR pic à pic ( $\Delta H^{PP}$ ), pour les couches de CFA de 50 nm déposées, sur le substrat MgO et recuit à 615° C, en fonction de l'angle de champ magnétique ( $\phi_H$ ) par rapport au bord du substrat pour deux fréquences d'excitation : 6 GHz et 7 GHz, Pour comparaison, les champs de résonance correspondant sont également représentés sur cette figure. Cette dépendance angulaire de  $\Delta H^{PP}$  présente une symétrie parfaite d'ordre 4 (en accord avec la variation de la position des champs de résonance), contrairement aux couches déposées sur Si où elle présente un comportement uniaxial. Pour les couches déposées sur STO, à cause des inhomogénéités, l'étude de la largeur de raie n'était pas possible on se limitera dans la suite à la discussion de cette largeur de raie dans les couches déposées sur MgO et Si. Ce comportement angulaire de la largeur de raie est une caractéristique de la contribution de diffusion à deux magnons. Cet effet est corrélé à la présence de défauts préférentiellement orientés selon des directions cristallographiques spécifiques, conduisant ainsi à un amortissement anisotrope. Tous les autres échantillons recuits à des différentes températures présentent un comportement qualitativement similaire à l'un des échantillons présentés ici. Les positions des extrema dépendent de l'échantillon. L'anisotropie prononcée de la largeur de raie observée ne peut pas être due à la contribution de l'amortissement Gilbert, qui devrait être isotrope, et doit être due à des mécanismes extrinsèques d'amortissement supplémentaires.

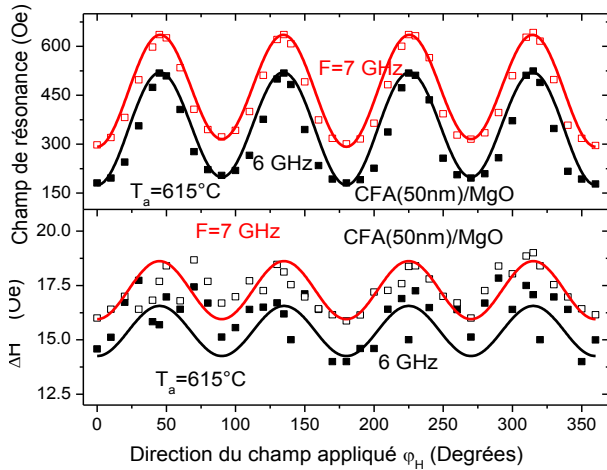


Figure 5.7 : Dépendance angulaire du champ de résonance et de la largeur de raie FMR pic à pic ( $\Delta H^{PP}$ ) des couches CFA de 50 nm d'épaisseur déposées sur les substrats de MgO. Les traits pleins se rapportent à l'ajustement en utilisant le modèle décrit dans le chapitre 4.

La figure 5.8 présente la dépendance en fréquence des largeurs de raie FMR, pour des champs magnétiques appliqués parallèlement aux axes faciles et difficiles et les couches minces de CFA de 50 nm et 10 nm d'épaisseur recuites à des différentes températures et déposées respectivement sur des substrats de MgO et de Si.

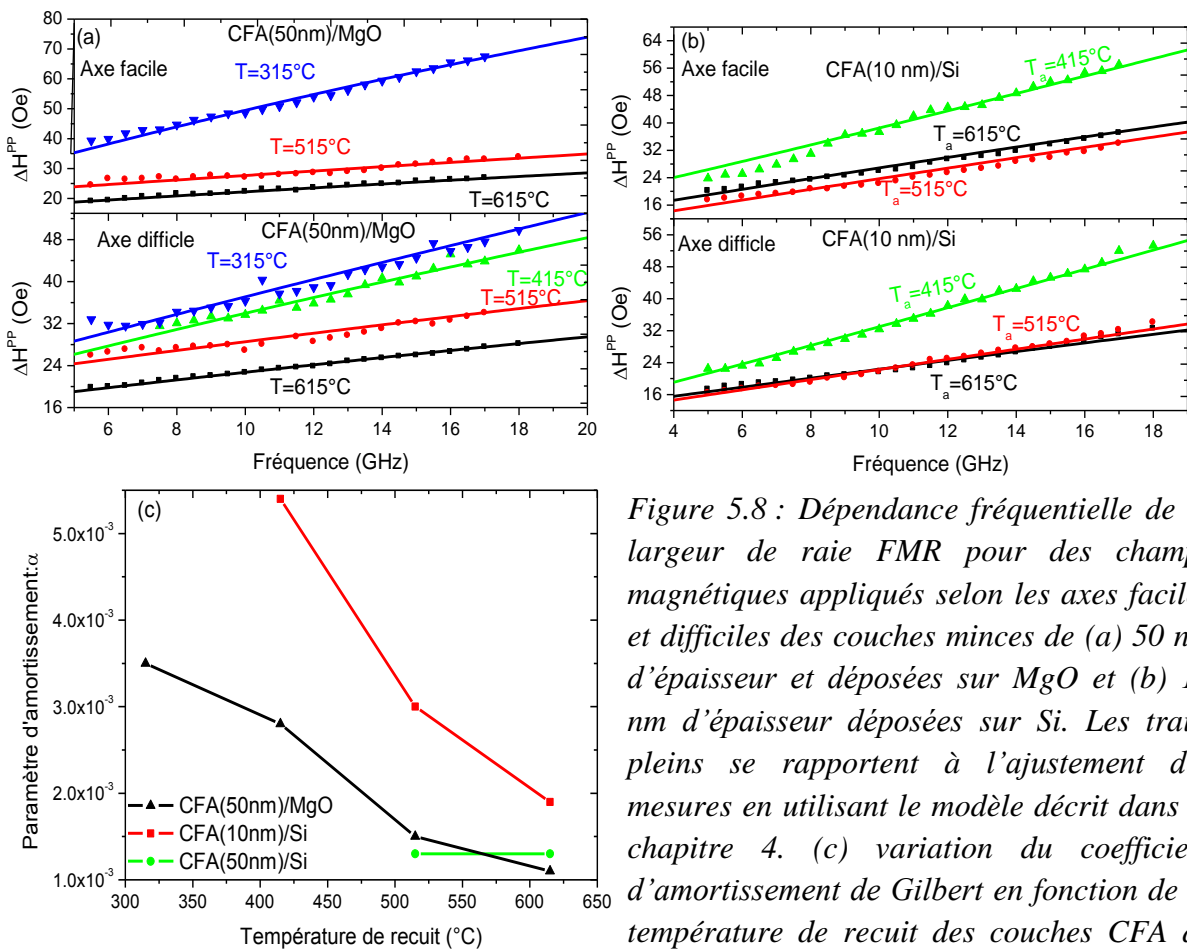


Figure 5.8 : Dépendance fréquentielle de la largeur de raie FMR pour des champs magnétiques appliqués selon les axes faciles et difficiles des couches minces de (a) 50 nm d'épaisseur et déposées sur MgO et (b) 10 nm d'épaisseur déposées sur Si. Les traits pleins se rapportent à l'ajustement des mesures en utilisant le modèle décrit dans le chapitre 4. (c) variation du coefficient d'amortissement de Gilbert en fonction de la température de recuit des couches CFA de 10 nm et de 50 nm CFA d'épaisseur déposées sur les substrats de Si et MgO.

Les dépendances angulaires et fréquentielles des largeurs des raies observées ont été analysées conjointement en considérant la contribution intrinsèque, la diffusion à deux magnons et les inhomogénéités, et en utilisant le modèle décrit dans le chapitre 4. Les différents paramètres extraits de cet ajustement sont résumés dans le tableau 5.3.

La *figure 5.8(c)* montre la dépendance en température de recuit de la constante d'amortissement de Gilbert ( $\alpha$ ). Les films CFA déposés sur MgO présentent un paramètre d'amortissement plus faible par rapport à ceux qui sont déposés sur Si. La couche de 50 nm d'épaisseur déposée sur MgO et recuite à 615° C, montre la valeur la plus faible à cet amortissement ( $\alpha=0.0011$ ), qui est comparable à celle de FeV, considéré comme le métal ferromagnétique ayant le coefficient  $\alpha$  le plus bas [5]. Cependant, l'échantillon de 10 nm d'épaisseur montre relativement des valeurs de  $\alpha$  plus grandes qui diminuent avec l'augmentation de  $T_a$ . Ce comportement de  $\alpha$  avec  $T_a$ , est très probablement dû à l'augmentation du degré d'ordre chimique [6].

d (nm)	$T_{recuit}^{\circ}$ (°C)	$\alpha$	$\Delta H^{inh}$	$\Gamma_0$ (Oe)	$\Gamma_2$ (Oe)	$\Gamma_4$ (Oe)	$\varphi_2$ (deg)	$\varphi_4$ (deg)
Substrat : MgO								
50	615	$1.1 \times 10^{-3}$	15.2	11	np	-1	np	0
50	515	$1.5 \times 10^{-3}$	20	8	np	-1	np	0
50	315	$3.5 \times 10^{-3}$	20	29	np	17	np	0
Substrat : Si								
10	615	$1.9 \times 10^{-3}$	11	35	13	np	-40	np
10	515	$3 \times 10^{-3}$	8.5	12	-8	np	-10	np
10	415	$5.4 \times 10^{-3}$	1	31.5	-7.5	np	-20	np

Tableau 5.3 : Représentation des paramètres d'amortissement magnétique obtenus à partir de l'ajustement de la largeur de raie FMR avec le modèle décrit dans le chapitre 4. np : non pertinent

## 5.5 Conclusion

La température de recuit joue un rôle important pour l'établissement de l'ordre chimique c'est pourquoi, dans ce chapitre, nous avons étudié l'effet de la température sur les propriétés structurales et magnétiques des couches minces de CFA déposées sur différents substrats: MgO, Si et STO. En tenant compte des résultats de l'étude en fonction de l'épaisseur, présentée dans le chapitre 4, les couches de 50 nm d'épaisseur ont été choisies pour étudier les effets sur la constante d'échange et sur la largeur de raie où les contributions extrinsèques sont minimales. Les couches de 10 nm présentant un champ d'anisotropie de surface maximal ont été choisies pour l'investigation des effets de la température de recuit sur l'aimantation effective. La diffraction X a révélé que les films déposés sur MgO et STO



présentent une parfaite épitaxie selon la relation d'épitaxie observée lors de l'étude en fonction de l'épaisseur et que l'ordre chimique s'améliore avec l'augmentation de la température de recuit. Les mesures FMR sous champs magnétiques appliqués perpendiculairement et parallèlement aux plans des couches montrent que le facteur gyromagnétique est indépendant du recuit alors que la constante d'échange et la largeur de raie FMR diminue et augmente, respectivement, quand la température de recuit diminue. La dépendance angulaire du champ de résonance révèle que les couches déposées sur MgO et STO présentent une forte anisotropie d'ordre 4 qui diminue avec l'augmentation de la température de recuit. Cette diminution peut être due à l'amélioration de l'ordre chimique de ces films quand la température de recuit augmente. Cependant, le champ d'anisotropie uniaxiale ne montre pas un comportement clair en fonction de la température de recuit. Pour les couches déposées sur Si, l'anisotropie planaire apparaît comme d'ordre 2 et son axe facile change de direction en fonction de la température. Les dépendances angulaire et fréquentielle de la largeur de raie FMR ont été étudiées pour les couches déposées sur MgO et Si. L'ajustement de ces mesures avec le modèle décrit précédemment au chapitre 4 ont montré que le paramètre d'amortissement de Gilbert diminue aussi avec l'augmentation de la température de recuit.

## Bibliographie

- [1] M. S. Gabor, T. Petrisor Jr., C. Tiusan, M. Hehn and T. Petrisor, “Magnetic and structural anisotropies of  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  Heusler alloy epitaxial thin films,” *Phys. Rev. B* **84**, 134413 (2011)
- [2] K. Inomata, N. Ikeda, N. Tezuka, R. Goto, S. Sugimoto, M. Wojcik and E. Jedryka, “Highly spin-polarized materials and devices for spintronics,” *Sci. Technol. Adv. Mater.* **9**, 014101, (2008)
- [3] H. J. Elmers, S. Wurmehl, G. H. Fecher, G. Jakob, C. Felser and G. Schönhense, “Field dependence of orbital magnetic moments in the Heusler compounds  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  and  $\text{Co}_2\text{Cr}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{Al}$ ,” *Appl. Phys. A* **79**, 557 (2004)
- [4] S. Trudel, G. Wolf, J. Hamrle, B. Hillebrands, P. Klaer, M. Kallmayer, H.-J. Elmers, H. Sukegawa, W. Wang, and K. Inomata, “Effect of annealing on  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$  thin films: A magneto-optical and x-ray absorption study,” *Phys. Rev. B* **83**, 104412 (2011)
- [5] C. Scheck, L. Cheng, I. Barsukov, Z. Frait and W. E. Bailey, “Low Relaxation Rate in Epitaxial Vanadium-Doped Ultrathin Iron Films,” *Phys. Rev. Lett.* **98**, 117601 (2007).
- [6] S. Mizukami, D. Watanabe, M. Oogane, Y. Ando, Y. Miura, M. Shirai and T. Miyazaki, “Low damping constant for  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  Heusler alloy films and its correlation with density of states,” *J. Appl. Phys.* **105**, 07D306 (2009).

# Chapitre VI :

## Confinement latéral des ondes de spin dans les réseaux de lignes à base de $\text{Co}_2\text{FeAl}$

---

6.1	Introduction .....	132
6.2	Procédé de fabrication des échantillons.....	133
6.3	Propriétés Magnétiques .....	134
6.3.1	Propriétés Statiques .....	134
6.3.2	Propriétés Dynamiques .....	135
6.4	Conclusion .....	140
	Bibliographie .....	141

## **6.1 Introduction**

La dynamique hyperfréquence des nanostructures magnétiques est d'un grand intérêt pour des raisons fondamentales et technologiques. En effet, ces nanostructures sont des candidats potentiels pour l'enregistrement sur disques durs. Elles permettraient de réduire considérablement le bruit de transition entre deux bits adjacents et d'améliorer la stabilité thermique de bit. Elles pourraient, en principe, augmenter significativement les densités d'enregistrement, par rapport aux technologies actuelles. De plus, les excitations dynamiques (les ondes de spin) définissent l'échelle de temps du processus de retournement d'aimantation, et par conséquent, elles sont d'une importance fondamentale pour la compréhension de la maîtrise de ce temps de retournement. Du point de vue fondamental, à la fois la taille et l'arrangement spatial de ces nanostructures influencent largement leurs propriétés magnétiques. La réduction de la dimensionnalité provoque l'apparition de nouveaux phénomènes physiques, modifiant, par exemple, le processus de retournement de l'aimantation dans une nanostructure, comparée à une couche continue. Cette réduction de taille pourrait faire apparaître des effets de quantification (ou confinement) [1]-[2], qui conduisent à des changements spectaculaires du spectre des ondes de spin, lorsque la taille des nanostructures devient comparable à la longueur d'onde de ces ondes de spin. A partir de l'étude de ces ondes, les informations de base sur des propriétés magnétiques, telles que l'anisotropie magnétique, l'homogénéité du champ interne, ainsi que le couplage entre nanostructures, souvent difficiles à obtenir par d'autres méthodes, peuvent être extraites.

Les effets de confinement des ondes de spin ont été sondés en utilisant la diffusion Brillouin de la lumière [3]-[7]. La FMR est une autre technique qui peut être utilisée avec succès pour étudier ces effets en raison de ses nombreux avantages par rapport à la BLS. En effet, la FMR offre une très grande précision dans la détermination des positions des pics de résonance qui se traduit par une résolution beaucoup plus élevée dans la détermination des fréquences propres du système étudié. De plus, dans une expérience FMR il est plus facile d'étudier les structures à aimantation planaire avec un champ appliqué sous un certain angle par rapport au plan du système et, en particulier, perpendiculairement au plan des nanostructures.

Dans cette partie de la thèse, nous présentons les résultats préliminaires des mesures MS-FMR sur des réseaux de lignes de CFA déposés sur substrats de MgO. Les pistes du travail complémentaire de cette étude sera dégagé dans les perspectives et fera l'objet d'un prochain travail de thèse.

## 6.2 Procédé de fabrication des échantillons

Pour observer la quantification et faciliter l'interprétation du spectre des ondes de spin, l'épaisseur des échantillons étudiés doit être bien choisie. En effet, les réseaux épais génèrent des modes quantifiés de haute fréquence alors que pour les faibles épaisseurs, les fréquences des modes quantifiés diminuent et se rapprochent de celles du mode uniforme de la couche continue rendant ainsi leur observation difficile. Par conséquent, des épaisseurs de l'ordre de 20 nm à 50 nm sont un bon choix pour les études de la quantification des ondes de spin.

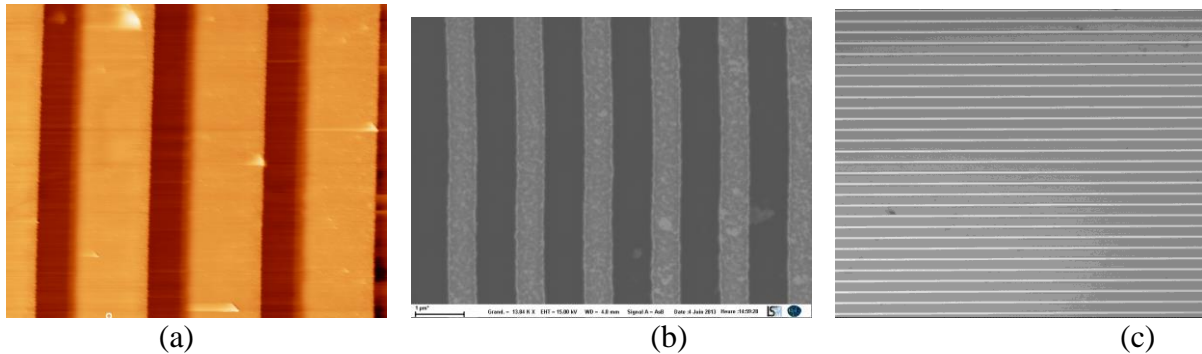


Figure 6.1 : Images des microscopies (a) à force atomique, (b) électronique à balayage et (c) optique pour un réseau de lignes espacées de 1 µm et de largeur de (a) 2 µm et d'épaisseur 24 nm, (b) 0.5 µm et d'épaisseur 50 nm (c) 0.2 µm et d'épaisseur 50 nm.

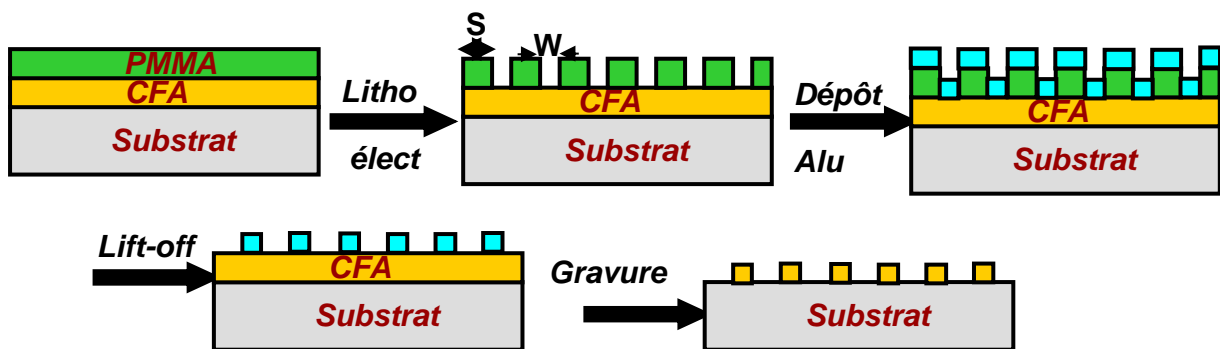


Figure 6.2 : Procédé technologique illustrant les différentes étapes de la réalisation des réseaux de lignes de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$ .

Des réseaux de lignes de CFA d'épaisseur 25 et 50 nm, de largeur  $W$  ( $0.2 \leq W \leq 2$  µm) et espacées de  $S$ , variant de 0.5 à 2 µm ont été réalisés sur des surfaces de  $500$  µm  $\times$   $500$  µm comme le montre la *figure 6.1*. Ces réseaux ont été obtenus à partir de couches de CFA, déposées sur MgO et étudiées dans le chapitre 4, par lithographie électronique combinée à un procédé de lift-off suivi de gravure sèche des couches de CFA à travers un masque d'Aluminium défini lors du lift-off comme le montre la *figure 6.2*. Notons que pour l'échantillon de 25 nm d'épaisseur, l'épaisseur initiale de CFA de 115 nm a été réduite à 25 nm à la fin de la gravure ionique à travers le masque d'Aluminium de 50 nm d'épaisseur ; ce

dernier n'ayant pas résisté tout le long de la gravure. Pour l'échantillon de 50 nm d'épaisseur, un masque plus épais (100 nm) a été utilisé pour éviter la gravure du CFA. La bonne qualité du procédé de nanostructuration a été vérifiée par microscopies optique, à force atomique et électronique à balayage (*Figure 6.1*).

### 6.3 Propriétés Magnétiques

#### 6.3.1 Propriétés Statiques

Les cycles d'hystérésis pour les divers réseaux de lignes d'épaisseur 25 nm et 50 nm, de différentes largeurs et d'espacement variable ont été mesurés par MOKE sous un champ magnétique appliqué dans le plan le long de différentes orientations  $\varphi_H$  (angle entre H et l'axe [110] de CFA qui est le long des lignes). A titre de comparaison, le cycle d'hystérésis, le long de l'axe facile, de la couche continue de 50 nm est également présenté sur la *figure 6.3.a* où quelques cycles typiques des réseaux de lignes sont représentés. Pour une direction donnée du champ magnétique appliqué, la forme du cycle d'hystérésis dépend des caractéristiques du réseau, suggérant une différence significative en termes des champs d'anisotropie planaire. Lorsque H est appliqué le long des fils ( $\varphi_H = 0^\circ$ ) le cycle de forme carrée, typique d'un axe facile, est observé, avec une aimantation rémanente normalisée maximale ( $M_r/M_s = 0.99$ ) et un champ coercitif dépendant de W et largement supérieur à celui de la couche continue. En augmentant  $\varphi_H$ ,  $M_r/M_s$  diminue et le cycle d'hystérésis a tendance à se transformer en un cycle typique caractérisant l'axe difficile. Ce dernier est obtenu lorsque le champ est appliqué le long de la largeur des lignes ( $\varphi_H = 90^\circ$ ), alors que les couches continues présentent des cycles d'hystérésis de formes plus carrées avec un retournement en deux étapes (non représentés ici pour plus de clarté (voir chapitre 4)) pour cette direction. Ces comportements des réseaux de lignes sont qualitativement en accord avec la description de l'anisotropie planaire en termes d'une anisotropie uniaxiale dominante, due à leur forme, et une superposition d'une anisotropie uniaxiale et d'ordre 4 pour les couches continues comme nous l'avons mentionné dans le chapitre 4.

Le champ coercitif ( $H_c$ ) déduit des cycles d'hystérésis obtenus pour un champ magnétique appliqué le long de l'axe facile, les champs de saturation le long de l'axe difficile ( $H_{\text{sat}}$ ) et les champs d'anisotropie uniaxiale ( $H_u$  : obtenus à partir de mesures TBIIST) sont présentés dans la *figure 6.3(b)* en fonction de  $d/W$ . Cette figure montre que  $H_c$ ,  $H_{\text{sat}}$  et  $H_u$  varient linéairement en fonction de  $d/W$  avec des pentes correspondant à  $4\pi M_s/5$  (pour  $H_c$ ) et à  $4\pi M_s$  pour ( $H_u$  et  $H_{\text{sat}}$ ). Cette dernière pente est en parfait accord avec la valeur théorique attendue de l'anisotropie de forme des lignes alors que celle des  $H_c$  est plus faible puisque les

champs coercitifs déduits des cycles autour de l'axe facile sont plus petits que ceux obtenus à partir du modèle de rotation cohérente puisqu'ils sont habituellement fixés par d'autres mécanismes de retournement tels que la nucléation et la propagation de domaines.

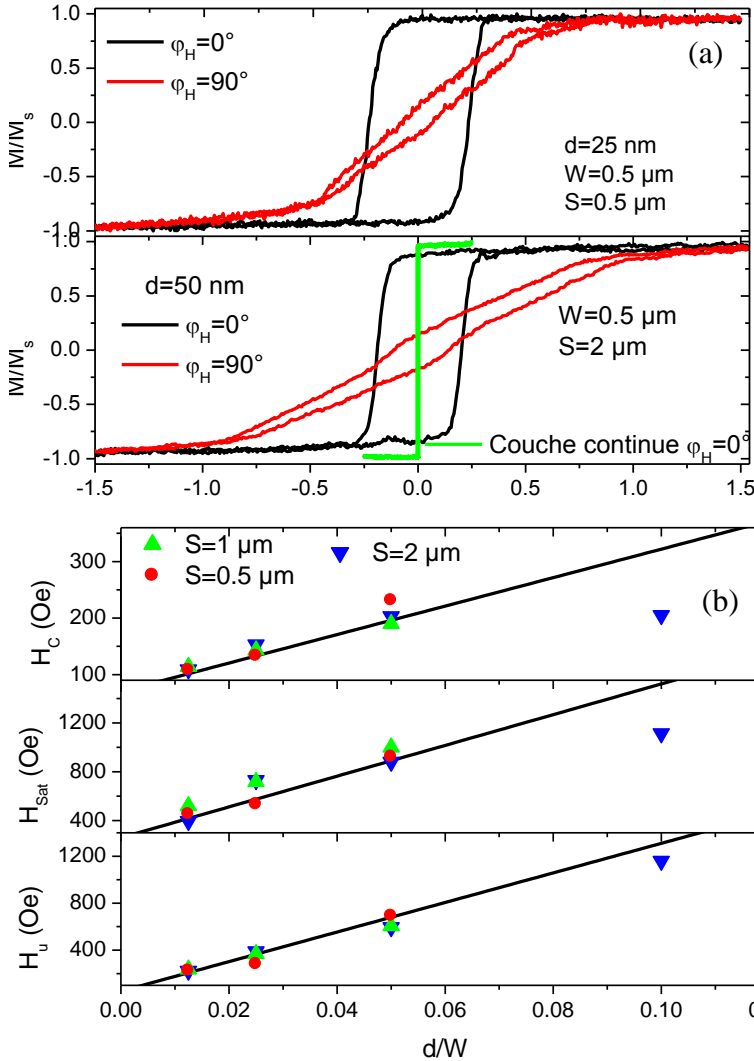


Figure 6.3 : (a) Cycles d'hystérésis mesurés par MOKE pour les réseaux de lignes de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  de 25 nm et 50 nm avec des différentes largeurs. Le champ magnétique est appliqué le long des lignes ( $\phi_H=0^\circ$ ) ou parallèle à la largeur des lignes ( $\phi_H=90^\circ$ ). Pour le réseau de 50 nm d'épaisseur, le cycle facile de la couche continue ( $\phi_H=0^\circ$ : appliquée le long de l'axe  $[110]$  du CFA) est présenté pour comparaison. (b) dépendance en épaisseur du champ coercitif ( $H_c$ ) selon l'axe facile ( $\phi_H=0^\circ$ ), du champ de saturation le long de l'axe difficile ( $\phi_H=90^\circ$ ) déduits à partir des cycles d'hystérésis et les champs d'anisotropie uniaxiale ( $H_u$ ) déduits des mesures TBIIST.

### 6.3.2 Propriétés Dynamiques

En fonction du champ magnétique appliqué, principalement deux géométries de mesures, qui permettent l'étude de deux effets différents, sont considérées. Dans la première géométrie, le champ magnétique est appliqué le long des lignes (parallèlement aux grands côtés) et le vecteur d'onde est perpendiculaire à l'aimantation : par analogie à la diffusion Brillouin (BLS), c'est la géométrie dite de Damon-Eschbach. Lorsque le champ magnétique est appliqué perpendiculairement aux lignes (parallèle à leurs petits côtés), le vecteur d'onde est parallèle à l'aimantation. Par analogie à la BLS, cette deuxième géométrie est la configuration des modes rétrogrades.

Pour la première géométrie, les spectres MS-FMR, représentés sur la *figure 6.4* pour les lignes de 25 et 50 nm d'épaisseur, révèlent l'existence d'au moins deux modes. Les variations des fréquences de résonance de ces modes en fonction du champ magnétique appliqué sont représentées sur la *figure 6.5*. Le mode basse fréquence (haut champ) ne varie pas en fonction de la largeur des lignes et ses caractéristiques coïncident avec celles du mode uniforme des couches continues de CFA. Ce mode est donc appelé mode de couche (ou mode de film) pour le distinguer des autres modes. Le mode haute fréquence (faible champ), noté par les indices  $n$ , est fortement dépendant de  $W$  : sa fréquence augmente lorsque  $W$  diminue. Ces modes à haute fréquence, non observés pour les couches CFA continues, sont dus à la quantification (confinement) des ondes de spin causée par la largeur finie des lignes. Pour une largeur donnée des lignes, les fréquences de ces modes sont indépendantes de la séparation entre lignes ( $S$ ). Ceci indique que ces modes sont purement engendrés par la quantification des ondes de spin dans une ligne isolée en raison de sa largeur finie. A  $W$  fixe la fréquence des modes quantifiés augmente avec l'épaisseur des couches. Cette quantification a été confirmée par les mesures BLS représentées sur la *figure 6.5.(c)* pour des réseaux de 0.5  $\mu\text{m}$  de largeur soumis à un champ magnétique de 1kOe où, comme prévu, la fréquence du mode est indépendante du vecteur d'onde BLS.

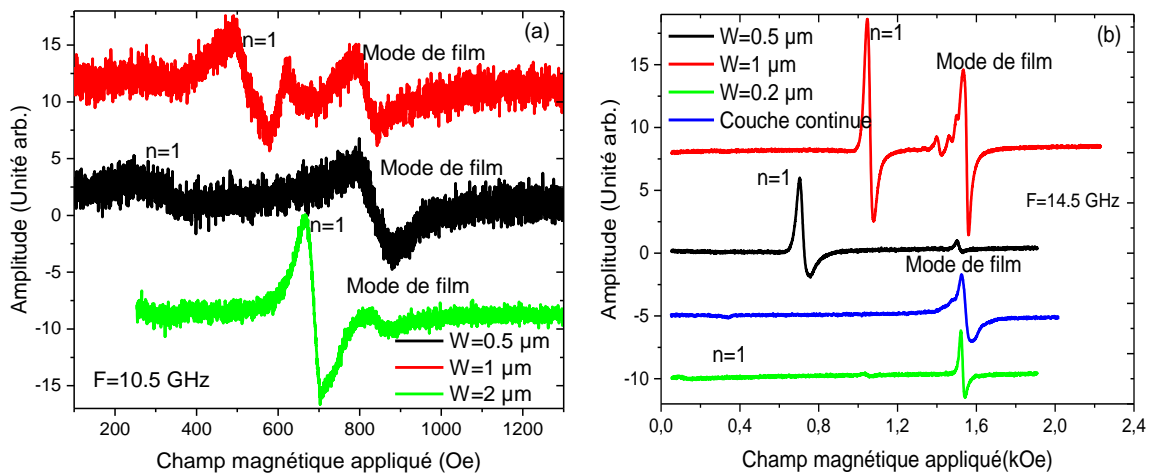


Figure 6.4 : Spectres MS-FMR des réseaux de lignes de CFA d'épaisseur (a) 25 nm et (b) 50 nm. Le champ magnétique est appliqué parallèlement aux lignes. Les spectres sont traduits verticalement pour plus de clarté.

Pour quantifier l'effet du confinement sur les ondes de spin dans ces réseaux de lignes, j'ai comparé les fréquences d'onde de spin mesurées à l'expression théorique des fréquences  $f_n$  du  $n^{\text{ième}}$  mode quantifié dans l'approximation dipolaire-échange, donnée par l'équation (6.1) [8]-[10].



$$f_n^2 = \left( \frac{\gamma}{2\pi} \right)^2 \left( H + \frac{H_4}{2} + \frac{2A_{\text{éch}}}{M_s} q_n^2 + 4\pi M_{\text{eff}} \left( 1 - \frac{1 - e^{-q_n d}}{q_n d} \right) \right) \times \left( H + \frac{H_4}{2} + \frac{2A_{\text{éch}}}{M_s} q_n^2 + 4\pi M_{\text{eff}} \frac{1 - e^{-q_n d}}{q_n d} \right)$$

(6.1)

$q_n = \frac{(n - \delta_n)\pi}{W}$  est le vecteur d'onde des modes quantifiés.  $0 \leq \delta_n \leq 1$  est un paramètre déterminé par les conditions aux limites de l'aimantation dynamique aux bords des lignes ( $\delta_n=0$  correspond à un piégeage complet de l'aimantation alors que  $\delta_n=1$  fait référence aux spin libres). Il traduit la mesure de l'anisotropie de forme.

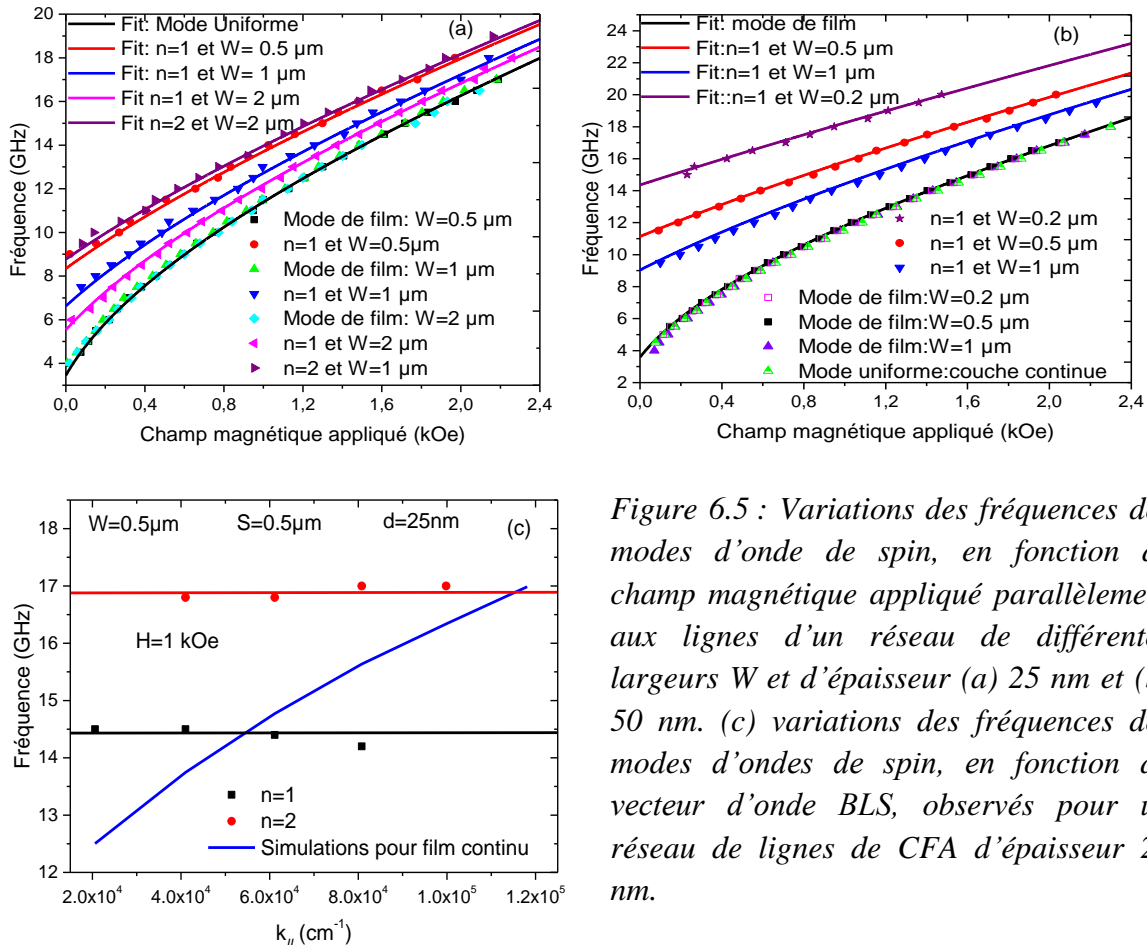


Figure 6.5 : Variations des fréquences des modes d'onde de spin, en fonction de champ magnétique appliqué parallèlement aux lignes d'un réseau de différentes largeurs  $W$  et d'épaisseur (a) 25 nm et (b) 50 nm. (c) variations des fréquences des modes d'ondes de spin, en fonction du vecteur d'onde BLS, observés pour un réseau de lignes de CFA d'épaisseur 25 nm.

Les différents paramètres magnétiques impliqués dans l'expression (6.1) ont été déduits précédemment (chapitre 4). Nous avons donc utilisé ces paramètres et l'équation (6.1) et celle donnant la fréquence du mode uniforme décrite dans le chapitre 4 pour l'ajustement des fréquences des modes quantifiés et de film, respectivement, en prenant  $\delta_n$  comme paramètre à déterminer. Pour les réseaux de 25 nm d'épaisseur, le meilleur ajustement a été obtenu pour  $4\pi M_{\text{eff}} = 12.6$  kOe et  $\delta_n = 0.25, 0.35$  et  $0.41$ , respectivement pour  $W = 2, 1$  et  $0.5$

$\mu\text{m}$ , alors que les valeurs respectives de  $\delta_n$  pour l'épaisseur de 50 nm et pour  $W = 0.2, 0.5$  et  $1 \mu\text{m}$  sont 0.6, 0.49 et 0.4. Ce paramètre  $\delta_n$  semble être indépendant de  $n$  et décroît quand la largeur des lignes augmente.

Lorsque le champ magnétique est appliqué perpendiculairement aux lignes des réseaux, les champs magnétiques internes à la fois statiques et dynamiques sont fortement inhomogènes dans les lignes. Pour les plus faibles champs, l'aimantation est principalement alignée le long des lignes. En augmentant le champ magnétique, le centre des lignes est presque saturé le long de la largeur des lignes mais une composante importante de l'aimantation, à proximité des bords, reste orientée le long des lignes. Pour un champ appliqué suffisamment grand, l'aimantation est parallèle au champ appliqué au sein de la quasi-totalité de la ligne. Ainsi les pôles créés sur les bords diminuent le champ magnétique interne dans ces régions. Il a été montré que ce champ statique interne est maximal au centre de la ligne et se dégrade fortement pour disparaître complètement au niveau des bords.

La dépendance en champ des fréquences des ondes de spin détectées pour un champ magnétique perpendiculaire aux lignes, représentée sur la *figure 6.6* pour les deux réseaux de 25 et 50 nm d'épaisseur, reflète ce comportement d'aimantation décrit ci-dessus. Le spectre des ondes de spin est plus complexe que celui de la configuration parallèle et au moins deux modes, présentant des dépendances en champ différentes, sont observés. Le premier mode, appelé mode de film, montre des caractéristiques similaires au mode uniforme de la couche continue. Sa fréquence augmente avec le champ magnétique. Le deuxième mode, mode quantifié, présente deux régimes en champ. Dans le premier régime, la fréquence de résonance diminue avec l'augmentation du champ magnétique jusqu'à une certaine valeur, puis entame un second régime où elle commence à augmenter avec l'augmentation de champ.

La transition entre les deux régimes indique la valeur de l'anisotropie de forme. On passe progressivement de la configuration Damon-Eschbach (vecteur d'onde perpendiculaire à l'aimantation) à la configuration des modes rétrogrades (vecteur d'onde parallèle à l'aimantation) où la fréquence du mode uniforme est plus grande que celle des modes rétrogrades. La transition entre les deux régimes indique la valeur de l'anisotropie de forme. L'effet de cette anisotropie de forme sur le mode quantifié est très visible et se traduit par un amollissement, alors que mystérieusement le mode de film est insensible à cette anisotropie. L'origine de ce mode de film reste inconnue. Cependant, nous pensons que peut être ce mode est dû à la gravure non complète de la couche continue et probablement des grains assurant le couplage entre lignes sont présents. On note aussi que dans la quasi-totalité des réseaux

étudiés, les spectres de ondes de spin présentent des modes satellites aux alentours des modes de film et quantifié.

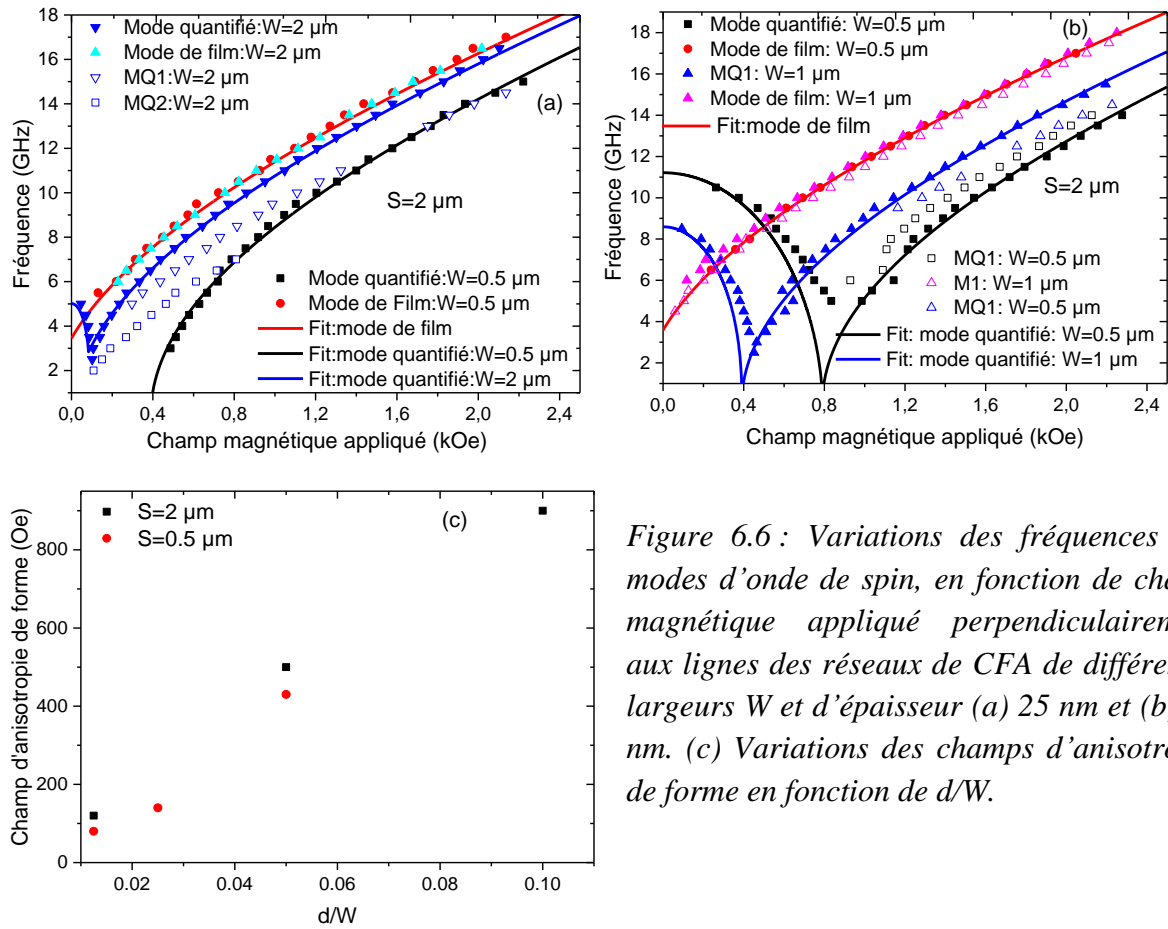


Figure 6.6 : Variations des fréquences des modes d'onde de spin, en fonction de champ magnétique appliqué perpendiculairement aux lignes des réseaux de CFA de différentes largeurs  $W$  et d'épaisseur (a) 25 nm et (b) 50 nm. (c) Variations des champs d'anisotropie de forme en fonction de  $d/W$ .

Pour quantifier l'anisotropie de forme, les fréquences des modes quantifiés ont été ajustées par l'expression des fréquences de mode uniforme pour un champ magnétique appliqué le long de l'axe difficile donnée par :

$$F_n^2 = \left( \frac{\gamma}{2\pi} \right)^2 \left[ H + \frac{H_4}{2} - H_u \right] \times \left[ H + 4\pi M_{\text{eff}} + \frac{H_4}{2} \right] \quad (6.2)$$

où  $H_u$  représente l'anisotropie de forme induite par la forme des lignes et  $H_4$  est le champ d'anisotropie d'ordre 4.

Dans cette expression, l'anisotropie de forme est modélisée pour un terme d'anisotropie uniaxiale ( $H_u$ ) qui fera le paramètre d'ajustement des fréquences des modes quantifiés. Les valeurs de cette anisotropie de forme extraites de l'ajustement des mesures sont représentées sur la figure 6.6.c en fonction de  $d/W$ . Comme prévu, cette anisotropie de forme augmente linéairement avec  $d/W$ , Par contre elle est peu sensible à l'espacement entre lignes.

## **6.4 Conclusion**

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à l'effet de la nanostructuration sur les propriétés magnétiques des films de CFA. Pour cela, des couches continues d'épaisseur  $d = 25$  nm et  $d = 50$  nm ont été préparées par pulvérisation cathodique sur un substrat de MgO (001) et ensuite nanostructurées en réseaux de lignes de différentes largeurs ( $W$ ) sur des surfaces de  $500 \times 500 \mu\text{m}^2$ . L'effet Kerr magnéto-optique et la technique TBIIST ont révélé une anisotropie uniaxiale dominante, qui augmente linéairement avec le rapport  $d/W$ , due à la forme des lignes. La résonance ferromagnétique, sous l'application de champs magnétiques le long du grand axe des lignes ou parallèlement à la largeur des lignes, a révélé l'existence de plusieurs modes identifiés comme les modes film et quantifié. Ce dernier, observé pour le champ appliqué le long des lignes, résulte du confinement des ondes de spin dû à la largeur finie des lignes. L'origine du mode film reste inconnue et des simulations de micromagnétisme sont utiles pour élucider cette origine. Les mesures MS-FMR ont été ajustées avec un modèle simple où un bon accord est observé avec les valeurs des champs d'anisotropie de forme obtenues par la technique TBIIST.

## Bibliographie

- [1] S. O. Demokritov, B. Hillebrands, and A. N. Slavin, “Brillouin light scattering studies of confined spin waves: linear and nonlinear confinement.,” *Phys. Rep.* 348, 441 (2001).
- [2] J. Jorzick, S. O. Demokritov, B. Hillebrands, M. Bailleul and C. Fermon, K.Y. Guslienko, A. N. Slavin, D.V. Berkov and N. L. Gorn,” Spin Wave Wells in Noellipsoidal Micrometer Size Magnetic Elements,” *Phys. Rev. Lett.* 88, 047204 (2002).
- [3] F. Montoncello, L. Giovannini, F. Nizzoli, P. Vavassori, M. Grimsditch, T. Ono, G. Gubbiotti, S. Tacchi, and G. Carlotti, “Soft spin waves and magnetization reversal in elliptical Permalloy nanodots: Experiments and dynamical matrix results,” *Phys. Rev. B* 76, 024426 (2007)
- [4] C. Bayer, J. Jorzick, B. Hillebrands, S. O. Demokritov, R. Kouba, R. Bozinoski, A. N. Slavin, K. Y. Guslienko, D. V. Berkov, N. L. Gorn, M. P. Kostylev “Spin-wave excitations in finite rectangular elements of  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ ,” *Phys. Rev. B* 72, 064427 (2005)
- [5] C.G. Tan, H.S. Lim, Z.K. Wang, S.C. Ng, M.H. Kuok, S. Goolaup, A.O. Adeyeye and N. Singh, “Quantization of spin waves in oval-shaped nanorings,” *J. Magn. Mag. Mat.* 320, 475 (2008)
- [6] S. M. Chérif, Y. Roussigné, and P. Moch, “Effect of anisotropy on Brillouin spectra of stripe-structured cobalt layers,” *Phys. Rev. B* 59, 9482 (1999).
- [7] J. Jorzick, S. O. Demokritov, C. Mathieu, B. Hillebrands, B. Bartenlian, C. Chappert, F. Rousseaux and A. N. Slavin, “Brillouin light scattering from quantized spin waves in micron-size magnetic wires,” *Phys. Rev. B* 60, 15 194 (1999).
- [8] K.Y. Guslienko and A. N. Slavin, “Boundary conditions for magnetization in magnetic nanoelements,” *Phys. Rev. B* 72, 014463 (2005).
- [9] B. A. Kalinikos and A. N. Slavin, “Theory of dipole-exchange spin wave spectrum for ferromagnetic films with mixed exchange boundary conditions,” *J. Phys. C* 19, 7013 (1986).
- [10] C.T. Boone, J. A. Katine, J.R. Childress, V. Tiberkevich, A. Slavin, J. Zhu, X. Cheng and I.N. Krivorotov, “Resonant Nonlinear Damping of Quantized Spin Waves in Ferromagnetic Nanowires: A Spin Torque Ferromagnetic Resonance Study,” *Phys. Rev. Lett.* 10.



## Conclusion générale et perspectives

# Conclusion générale et perspectives

---

## 1. Bilan

Cette thèse avait comme but l'étude de la corrélation entre propriétés magnétiques (statiques et dynamiques) et structurales de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  (CFA). Un large panel de techniques expérimentales a été utilisé, en particulier, la diffraction X, la magnétométrie à échantillon vibrant (VSM), la magnétométrie à effet Kerr magnéto-optique, la susceptibilité inverse initiale (TBIIST), la résonance ferromagnétique (FMR) et la spectroscopie Brillouin. Nous nous sommes intéressés plus particulièrement aux effets du substrat, de l'épaisseur, de la température du recuit et de la nanostructuration sur les propriétés magnétiques et structurales de ces composés. Ces matériaux possèdent une température de Curie relativement élevée, propriété essentielle pour la stabilité des performances des dispositifs utilisant des matériaux ferromagnétiques. De plus, leur polarisation de spin, théoriquement escomptée voisine de 100%, procure à ces alliages la mission d'être des candidats potentiels pour une intégration dans des dispositifs nanoélectroniques, notamment pour l'injection d'un courant polarisé en spin à partir d'un matériau ferromagnétique.

Premièrement, nous nous sommes intéressés à l'effet de l'épaisseur sur les propriétés structurales et magnétiques des couches minces de CFA déposées sur différents substrats: MgO, Si et STO. Pour cela, plusieurs couches minces de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  (CFA) d'épaisseur variant de 10 nm à 115 nm ont été déposées sur des substrats de MgO (001), STO(001) et de Si (001) par pulvérisation à magnétron, puis recouvertes par des couches de Ta ou de Cr. La diffraction des rayons X a révélé que les axes cubiques [001] et [011] des couches de CFA sont normaux aux substrats de MgO, STO et de Si respectivement. Alors que les couches déposées sur Si sont polycristallines et ne présentent aucune direction de croissance préférentielle dans le plan, celles déposées sur STO et sur MgO présentent une parfaite épitaxie dans le plan selon la relation  $\text{CFA}(001)[110]//\text{MgO}(001)[100]$ . Dans ces dernières couches, l'ordre chimique varie de la phase B2 à la phase A2 lorsque l'épaisseur diminue. Les mesures de résonance ferromagnétique et de susceptibilité inverse initiale sous champ transversal (TBIIST) révèlent que les couches sur MgO présentent une superposition d'anisotropies planaires uniaxiale et d'ordre 4. Cette dernière est corrélée à la contrainte biaxiale en tension et à l'ordre chimique, en accord avec la structure cristalline de l'échantillon. Seule une faible anisotropie uniaxiale, dont l'amplitude et la direction de l'axe facile changent en fonction de l'épaisseur, est présente pour les couches CFA déposées sur Si. L'absence d'anisotropie d'ordre 4 est due à la



nature polycristalline des couches. A cause des inhomogénéités des couches déposées sur les substrats de STO, nous n'avons pas pu tirer une conclusion qualitative sur la dépendance en épaisseur des champs d'anisotropie uniaxiale et d'ordre 4 présentés par ces couches. L'étude de la largeur de raie FMR en fonction de la fréquence d'excitation et de la direction du champ appliqué a révélé qu'elle est gouvernée par des contributions de diffusion à deux magnons et de mosaïcité, qui dépendent de l'épaisseur du CFA. Des coefficients d'amortissement de Gilbert aussi faibles que  $\pm 0.0011$  ont été mesurés, ce qui fait des alliages CFA des matériaux intéressants pour les dispositifs à base de transfert de spin. Un autre résultat intéressant est la présence d'une très forte anisotropie perpendiculaire négative facilitant une aimantation planaire. Sa variation est linéaire et est fonction de l'inverse de l'épaisseur des couches CFA. Elle est très probablement due à l'interface supérieure CFA/MgO.

L'effet de la température de recuit sur les propriétés magnétiques et structurales a aussi été étudié. Pour cela, les couches CFA de 10 nm et 50 nm d'épaisseur déposées sur les substrats de Si et de MgO ont été recuites à des températures variant de 300° C environ à 615° C. Une couche de 50 nm d'épaisseur a été choisie pour étudier les effets sur la largeur de raie (où les contributions extrinsèques sont faibles) et sur la constante d'échange (à travers la mesure des ondes de spin stationnaires). Le choix d'autres couches, de 10 nm d'épaisseur, a permis d'étudier les fortes anisotropies perpendiculaire et planaire dont elles sont pourvues. Cette étude a montré que le facteur de Landé est indépendant de la température de recuit alors que la constante d'échange et la largeur de raie FMR diminue et augmente, respectivement, quand la température de recuit diminue. Pour la couche déposée sur Si, l'anisotropie planaire apparaît principalement comme d'ordre 2 et son axe facile change de direction en fonction de la température de recuit. Pour les couches CFA déposées sur MgO, le comportement est un peu plus complexe et s'explique par la superposition d'une anisotropie uniaxiale à une anisotropie d'ordre 4 qui croît quand la température de recuit diminue en raison de l'augmentation du désordre chimique. L'origine de cette anisotropie uniaxiale reste mystérieuse. Quant à l'anisotropie d'interface perpendiculaire, elle augmente beaucoup quand la température de recuit croît, très probablement à cause de l'amélioration de la qualité de l'interface CFA/MgO. L'effet de l'épaisseur de CFA sur cette anisotropie est similaire à celui de la température de recuit : on peut obtenir le même comportement soit en fixant la température et en diminuant l'épaisseur soit en gardant fixe l'épaisseur et en augmentant la température de recuit.

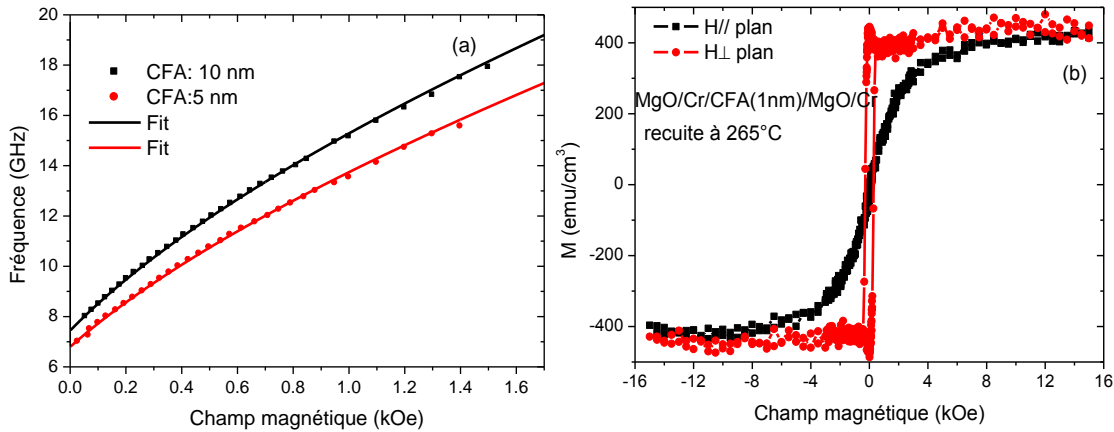
Pour étudier l'effet de la nanostructuration, des réseaux de lignes de différentes largeurs ( $W$ ) et différents espacement ( $S$ ) ont été réalisés par lithographie électronique suivie d'un lift-off et d'une gravure ionique sur une surface de  $500\ \mu\text{m} \times 500\ \mu\text{m}$  à partir des couches continues de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  d'épaisseur  $d = 25\ \text{nm}$  et  $d = 50\ \text{nm}$  déposées sur un substrat de  $\text{MgO}$  (001). La magnéto-métrie Kerr magnéto-optique et la technique TBIIST ont révélé que contrairement aux couches continues les réseaux de lignes présentent une anisotropie uniaxiale dominante, qui augmente linéairement en fonction de  $d/W$ , du fait de l'anisotropie de forme. La résonance ferromagnétique sous l'application de champs magnétiques le long du grand axe des lignes ou parallèlement à la largeur des lignes a révélé l'existence de plusieurs modes identifiés comme les modes film et les modes quantifiés. Ce dernier, observé pour le champ appliqué le long des lignes, résulte du confinement des ondes de spin du fait de la largeur finie des lignes. L'origine du mode film reste inconnue et des simulations de micromagnétisme seront utiles pour élucider cette origine. Les mesures MS-FMR ont été ajustées avec un modèle simple où un bon accord est observé avec les valeurs des champs d'anisotropie de forme obtenues par la technique TBIIST.

## **2. Perspectives**

### ***a. Alliages $\text{Co}_2\text{FeAl}$ à anisotropie perpendiculaire***

Dans le chapitre 4 de ce manuscrit, nous avons constaté un accroissement linéaire de l'aimantation effective (anisotropie perpendiculaire) en fonction de l'inverse de l'épaisseur des couches CFA pour des épaisseurs variant de 10 à 115 nm, d'où une anisotropie perpendiculaire négative (favorisant une aimantation planaire) que nous avons attribuée à l'interface  $\text{MgO}/\text{CFA}$ . Les mesures FMR sur une couche plus fine de 5 nm (voir figure ci-dessous) ont révélé une diminution de son amplitude, suggérant la possibilité d'inversion de signe de cette anisotropie pour des couches ultra minces. On constate effectivement que pour des épaisseurs aux alentours de 1 nm les cycles d'hystérésis montrent que les couches CFA présentent une aimantation perpendiculaire à leur plan. L'anisotropie perpendiculaire réduit alors significativement les densités de courant nécessaires pour le retournement de l'aimantation dans les dispositifs à base de transfert de spin. Elle améliore aussi la stabilité thermique des jonctions magnétiques tunnel des cellules MRAM, conduisant ainsi à l'augmentation de leur capacité de stockage. L'étude des propriétés magnétiques hyperfréquences de ces alliages Heusler à anisotropie perpendiculaire s'avère donc d'une grande importance. C'est dans ce contexte que s'inscrit l'une des perspectives de cette thèse. Dans un premier temps la compréhension du comportement de l'anisotropie perpendiculaire pour des couches CFA ultra minces (épaisseur variant de 1 nm à 10 nm) déposées sur  $\text{MgO}$

doit être acquise. Une attention particulière sera donnée par la suite aux effets de l'épaisseur de la couche et la nature des couches de protection et de la température de recuit sur les propriétés dynamiques.



(a) Variations de la fréquence du mode uniforme en fonction du champ magnétique appliqué dans le plan des couches CFA d'épaisseur 5 et 10 nm. (b) Cycles d'hystérésis pour des champs magnétiques appliqués dans le plan et perpendiculairement au plan d'une couche CFA de 1 nm d'épaisseur.

### **b- Confinement latéral des ondes de spin dans les nanostructures de $Co_2FeAl$**

La dynamique hyperfréquence de nanoparticules ou des nanostructures est d'une importance capitale pour la compréhension et l'amélioration de leurs caractéristiques de retournement d'aimantation. Les dimensions latérales finies des nanostructures magnétiques modifient le champ démagnétisant affectant ainsi les propriétés magnétiques, en particulier les propriétés magnétiques dynamiques. Le spectre des ondes de spin excitées est ainsi fortement modifié et des effets de quantification, qui peuvent affecter les propriétés dynamiques, apparaissent. La connaissance des propriétés de ces ondes de spin donne des informations cruciales sur la réponse temporelle du milieu magnétique soumis à des impulsions de champ ou à des excitations hyperfréquences. Par conséquent, la compréhension de la physique de ces ondes de spin est indispensable à la fois pour la recherche fondamentale et pour les applications où elles peuvent être utilisées pour la synchronisation des oscillateurs à transfert de spin ou la conception des circuits logiques. Dans le dernier chapitre de ce manuscrit, nous avons présenté les résultats préliminaires sur les mesures de réponse hyperfréquence des réseaux de lignes de CFA. L'étape suivante consiste à étendre cette étude à différentes géométries de nanostructures (réseaux de lignes, plots (rectangulaires et circulaires) et plots inversés). Une attention particulière sera accordée aux effets des dimensions géométriques, de

la température de recuit et de l'épaisseur des couches sur le spectre des ondes de spin, sur le couplage entre nanostructures et sur la largeur de raie des ondes observées. Les mesures de FMR seront faites pour différentes orientations du champ magnétique appliqué dans le plan ou perpendiculairement au plan des nanostructures. Les résultats de FMR obtenus seront confrontés à des simulations micro-magnétiques et complétés par des mesures de spectroscopie Brillouin.

***c- Effet Hall inverse de spin dans les nanostructures de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$***

La production, la manipulation et la détection du courant de spin dans les dispositifs d'électronique de spin sont très importants et nécessaires. La précession de l'aimantation dans une couche ferromagnétique (dynamique de l'aimantation) entraîne un courant de spin dans un métal juxtaposé (le transfert de moment angulaire de spin sans le passage de charge dans un matériau non magnétique). En raison d'un effet de pompage de spin, elle constitue une technique efficace pour créer un courant de spin. A cause du couplage spin-orbite (SOC), qui se produit sans champ magnétique externe, les spins up et down des électrons s'accumulent transversalement sur les deux côtés opposés de la couche métallique non magnétique, donnant lieu à l'effet Hall inverse de spin (SHE). Le courant de spin est ensuite converti en un courant de charge à travers le SOC qu'on détecte par des mesures de tension électriques dans la couche métallique. Ce phénomène, appelé effet Hall inverse de spin (ISHE), n'a besoin que d'une simple hétérostructure ferromagnétique/paramagnétique pour se manifester. Il promet de devenir une technique clé pour générer et détecter les courants de spin dans une large gamme de systèmes. L'efficacité de l'effet ISHE dépend de l'intensité de l'injection de spin et de l'interaction spin-orbite dans la couche non magnétique. La perspective immédiate de cette thèse est d'étudier (expérimentalement et théoriquement) et de démontrer l'effet ISHE dans les hétérostructures  $\text{Co}_2\text{FeAl}(\text{d})/\text{métal non magnétique (NM)}$ , où  $\text{NM} = \text{Pt}, \text{Ta}, \text{Au}$  et  $\text{Pd}$  et de différentes épaisseur.

**Annexe**

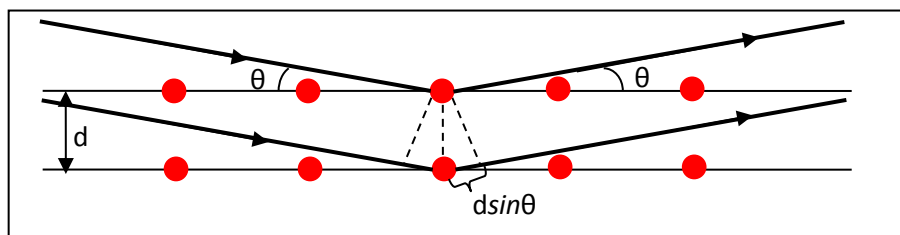
# Annexe : Diffraction de rayons X

La technique de la diffraction de rayons X est utilisée pour étudier les propriétés structurales de nos échantillons telles que la structure cristalline, l'orientation préférentielle, le désordre chimique, le paramètre de maille... . Le principe fondamental de cette méthode est largement décliné dans de nombreux ouvrages et publications. Un aperçu complet peut être trouvé par exemple dans la référence [1].

Lorsqu'on envoie un faisceau de rayons X sur un cristal, les plans cristallins voisins se comportent comme des réseaux de fentes de diffraction et réfléchissent les rayons X. Ces réflexions résultantes interfèrent entre elles comme illustré sur la *figure A.1*. La superposition constructive des faisceaux se produit si la différence de marche est égale un multiple de la longueur d'onde des rayons X. Dans le cas où l'angle  $\theta$  entre le faisceau incident et un plan du cristal d'indices de Miller ( $hkl$ ) est connu, la différence de marche des faisceaux réfléchis voisins est égale à  $2d\sin\theta$ , avec  $d$  la distance interréticulaire. Ceci nous amène à la relation de Bragg qui donne la condition d'interférence constructive :

$$2d \sin \theta = n \lambda \quad (\text{A.1})$$

Cette équation permet de prédire les positions des pics sur le diagramme de diffraction des rayons X et de déterminer le paramètre de maille pour une direction choisie [ $hkl$ ].



*Figure A.1 : La diffraction de rayons X d'angle d'incidence  $\theta$  par les plans voisins du réseau cristallin.  $d$  est la distance entre les plans voisins.*

Pour la caractérisation cristallographique, le diffractomètre à quatre cercles est utilisé pour analyser les films de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  (CFA). Dans notre cas, les éléments basiques d'un diffractomètre de rayons X sont : le tube source de rayons X, le porte-échantillon et le détecteur de rayons X qui est utilisé pour compter le nombre de photons provenant de l'échantillon. Quelques fois, pour certaines mesures telles que la texture et les contraintes, il faut varier la position de l'échantillon sous le faisceau c'est pourquoi on utilise un

goniomètre. La géométrie utilisée à l'aide d'un diffractomètre à quatre cercles est présentée sur la *figure A.2*. Les angles qui font partie des mesures sont l'angle de diffraction  $2\theta$ , entre le faisceau incident et le détecteur, l'angle incident  $\omega$ , l'angle  $\chi$  représente l'inclinaison (tilt) et  $\varphi$  signifie la rotation dans le plan de l'échantillon. Nos mesures ont été réalisées en utilisant la radiation Cu- $K_\alpha$  ( $\lambda=0,15406$  nm) et Co- $K_\alpha$  ( $\lambda=0,17902$  nm). Comparé au diffractomètre à deux cercles, non seulement le détecteur se déplace dans la direction de  $\theta$ , mais on peut aussi tourner et incliner l'échantillon avec la possibilité de découvrir tous les réflexions de l'échantillon. En variant ces différents types d'angles, on peut réaliser différents types de balayages.

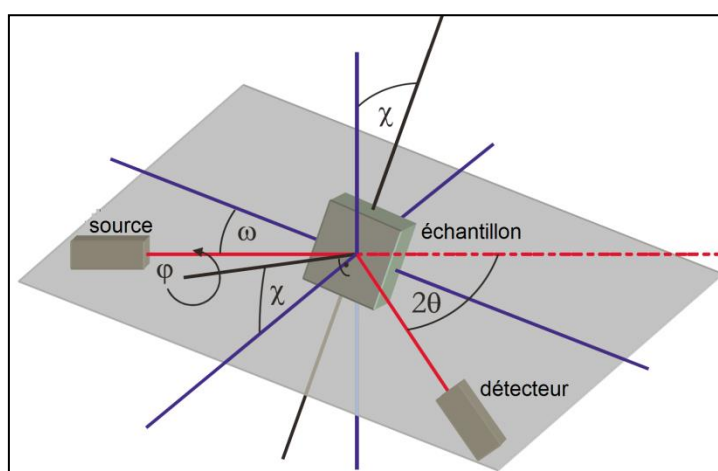


Figure A.2 : Géométrie du diffractomètre à quatre cercles où l'angle  $\theta$  présente l'angle échantillon/détecteur,  $\omega$  est l'angle d'incidence,  $\chi$  représente l'inclinaison (tilt) et  $\varphi$  représente la rotation, dans le plan de l'échantillon.

- Balayage  $\theta$ - $2\theta$  (géométrie symétrique)

Cette configuration est valable puisque le plan de l'échantillon fait un angle  $\theta$  avec le faisceau incident et le détecteur fait un angle  $2\theta$  avec le même faisceau comme illustré sur la *figure A.3*. On parcourt les plans ( $hkl$ ) parallèles à la surface de l'échantillon.

Dans un diagramme  $\theta$ - $2\theta$ , chaque famille de plan donne lieu à un pic de diffraction pour un angle de  $2\theta$  qui est relié à la distance interréticulaire  $d$  par la loi de Bragg (cf. équation A.1). L'intensité des pics de diffraction dépend de la multiplicité des plans qui diffractent, de la nature, la position et le facteur de diffusion des atomes de la structure... En tenant compte de la position angulaire des plans orientés, cette technique nous a permis de remonter au paramètre de maille hors du plan de l'échantillon et d'observer l'empilement des plans atomiques suivant l'axe de croissance (épitaxie etc.) et du type et degré de désordre chimique

des films CFA. L'identification des phases et du désordre chimique consiste à comparer le couple distance réticulaire et intensité relative obtenu pour chaque raie. Si on connaît le système cristallin du film étudié, on peut associer les indices de Miller ( $hkl$ ) à partir des distances interréticulaires mesurées. Ces indices permettent de traduire la liaison entre le paramètre de maille et les distance interréticulaires. Dans notre cas, les films de CFA possèdent un système cubique et la formule suivante permet de nous remonter au paramètre de maille  $a$ :

$$d = \frac{a}{\sqrt{h^2+k^2+l^2}} \quad (\text{A.2})$$

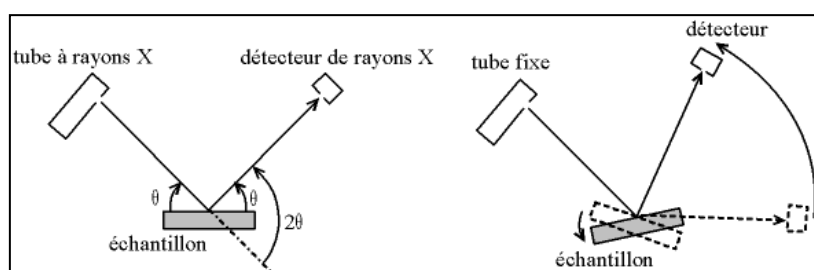


Figure A.3: La configuration  $\theta$ - $2\theta$

- Balayage  $\omega$ - $2\theta$  (géométrie asymétrique)

Le balayage  $\omega$ - $2\theta$  permet d'obtenir des informations sur les plans interréticulaires qui ne sont pas parallèles au plan de l'échantillon et on obtient ainsi un balayage longitudinal autour de nœuds  $hkl$ . Cette configuration est effectuée en fixant l'angle d'incidence  $\omega$  et en variant (balayant)  $2\theta$  comme illustré sur la figure A.4. La diagramme de diffraction a été effectué dans les mêmes conditions que pour la configuration  $\theta$ - $2\theta$ . En tenant compte de la position angulaire des plans orientés, cette technique nous a permis de déterminer le paramètre de maille planaire de l'échantillon.

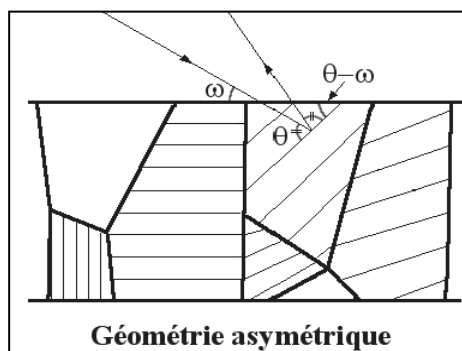


Figure A.4: La configuration de  $\omega$ - $2\theta$



- Balayage  $\varphi$

L'étude de la texture de la couche dans le plan est réalisée en balayant l'angle  $\varphi$  autour d'une direction asymétrique en géométrie  $\omega$ - $2\theta$ . En principe générale, les angles  $\omega$  et  $2\theta$  sont fixés dans la famille de plans considérée et on fait tourner l'échantillon d'un angle  $\varphi$  pour suivre l'évolution de l'intensité de la réflexion ( $hkl$ ) d'un plan donné. Les pics obtenus à partir de ce diagramme nous renseignent sur la symétrie de la phase cristalline de la couche et sur la texture des films. Dans le cas où le nombre de pics reflète la même symétrie du cristal, la couche présente une épitaxie dans le plan. Si ce nombre est supérieur par rapport à la symétrie, la couche devient texturée ou polycristalline dans le plan c'est-à-dire, il existe plusieurs variant dans le plan de l'échantillon.

- Balayage en  $\chi$  : Figure des pôles

Les figures de pôles sont une méthode plus adaptée pour observer l'orientation cristalline. Ici on incline l'échantillon d'un angle  $\chi$  et d'un angle  $\varphi$  comme représenté sur la *figure A.5*. Elle nous permet d'effectuer des mesures de plusieurs familles de plans ( $hkl$ ) non-parallèles au plan de l'échantillon. Dans ce travail de thèse elles sont utilisées pour la mise en évidence de la croissance épitaxiale de certains de nos échantillons. Une figure de pôles nous présente la densité et la répartition des normales de plans cristallographiques spécifiques par une projection stéréographique (cf. *Figure A.5*). Pour avoir un maximum de pôles, il est donc nécessaire de varier une large gamme  $2\theta$  et pour des positions allant de  $\chi = 0^\circ$  à  $\chi = 90^\circ$ .

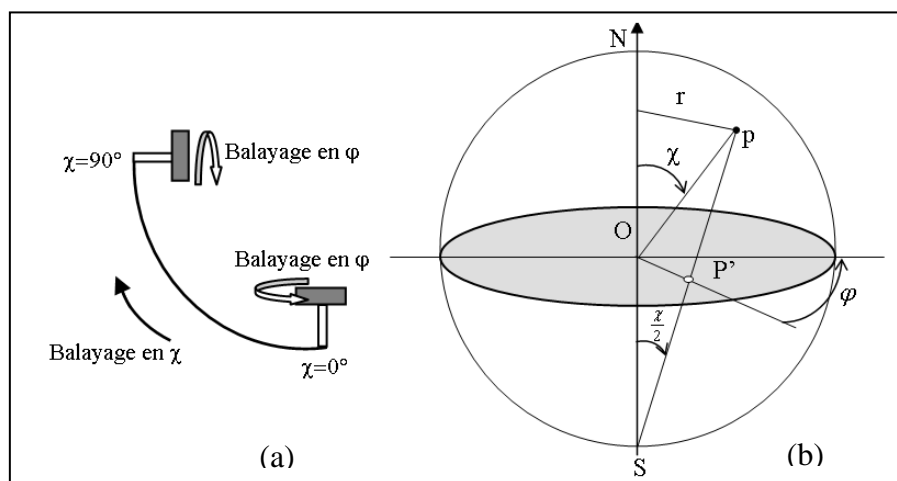


Figure A.5: (a) Schéma de balayage en  $\chi$  et (b) la projection stéréographique.

Pour les couches Heusler à base de cobalt (CFA), les réflexions de type (200) sont des réflexions spéculaires c'est-à-dire le rayon incident donne une naissance à un rayons réfléchi

et sont donc facilement accessibles en balayage  $\theta$ - $2\theta$ . Cependant, dans le cas des réflexions non-spéculaires comme pour les pics du type (110), il est nécessaire de faire des analyses en figures de pôles [2]. Par exemple, les figures 4.3(a) et (b) représentées au chapitre 4 pour les couches CFA déposées sur MgO et Si montrent les figures de pôles correspondant à réflexion fondamentale (110). Les réflexions équivalentes à (110) ont été observées avec une symétrie d'ordre quatre pour les couches déposées sur MgO prouvant la croissance épitaxiale des films CFA déposé sur MgO.

### **Bibliographie**

- [1] O. Engler, *Introduction to texture analysis: macrotecture, microtexture, and orientation mapping*, 2nd ed. Boca Raton: CRC Press, 2010.
- [2] Oksana Gaier, "A study of exchange interaction, magnetic anisotropies, and ion beam induced effects in thin films of Co<sub>2</sub>-based Heusler compounds," Universität Kaiserslautern, 2009.



# **RÉSUMÉ**

## **Corrélation entre les propriétés structurales et magnétiques des couches minces et nanostructures de Co<sub>2</sub>FeAl**

Co<sub>2</sub>FeAl (CFA) est un alliage Heusler très attractif pour les applications en spintronique. Ses propriétés magnétiques et structurales dépendent fortement des orientations cristallines et de la qualité des interfaces. Ce travail de thèse a porté sur les effets de l'épaisseur ( $d_{\text{CFA}}$ ), du type de substrat (MgO, Si et SrTiO<sub>3</sub> (STO)) ainsi que de la température de recuit ( $T_a$ ) sur ces propriétés. Les analyses structurales ont montré que les couches déposées sur les substrats MgO et STO croissent avec épitaxie contrairement au cas de Si. Lorsque  $d_{\text{CFA}}$  et  $T_a$  diminuent, l'ordre chimique évolue de la phase moyennement ordonnée B2 vers la phase plus désordonnée A2, quel que soit le substrat. Les mesures de résonance ferromagnétique (FMR) révèlent que les couches sur MgO et STO présentent une superposition d'anisotropies planaires uniaxiale et d'ordre 4, alors que seule une faible anisotropie uniaxiale est présente pour les couches CFA déposées sur Si. Cette anisotropie d'ordre 4 a été directement liée à la structure cristalline de ces couches. Les mesures FMR et de diffusion Brillouin de la lumière ont mis en évidence la présence d'une grande anisotropie uniaxiale perpendiculaire négative, liée à l'interface CFA/MgO, qui augmente avec  $1/d_{\text{CFA}}$  et avec  $T_a$ . Les mécanismes de relaxation de l'aimantation ont été soigneusement étudiés et des coefficients d'amortissement de Gilbert de 0.0011 ont été mesurés, validant ainsi l'intérêt porté à ces alliages pour les applications dans les dispositifs à base de transfert de spin. Enfin, l'étude de réseaux de lignes submicroniques à base des couches minces de CFA a révélé une quantification des ondes de spin liée à la largeur finie des lignes.

## **Correlation between structural and magnetic properties of Co<sub>2</sub>FeAl thin films and nanostructures**

Co<sub>2</sub>FeAl (CFA) is a very attractive Heusler alloy for spintronic applications. Their structural and magnetic properties depend strongly on the crystalline orientations and the interfaces quality. Therefore, the aim of this thesis is the study effects of the film thickness ( $d_{\text{CFA}}$ ), the substrate (MgO, Si and SrTiO<sub>3</sub> (STO)) as well as the annealing temperature ( $T_a$ ) on these properties. The structural analysis revealed a good epitaxial growth for films deposited on MgO and STO, in contrast to the Si substrate. The chemical order varies from the partially ordered B2 phase to the disordered A2 phase as  $d_{\text{CFA}}$  or  $T_a$  decreases, regardless of the substrate. The ferromagnetic resonance (FMR) measurements show the superposition of a uniaxial and fourfold anisotropies for films grown on MgO and STO and only a weak uniaxial anisotropy for the samples grown on Si. The fourfold anisotropy is directly correlated to the crystal structure of the samples. The FMR and Brillouin light scattering measurements reveal the presence of a large negative perpendicular uniaxial anisotropy induced by CFA/MgO interface, which increases with  $1/d_{\text{CFA}}$  and with  $T_a$ . The relaxation mechanisms have carefully been studied and Gilbert damping coefficients of 0.0011 have been measured making CFA as a potential candidate for spin transfer torque-based devices. Finally, the study of submicron arrays of stripe obtained by patterning of the continuous CFA films reveals a spin waves quantization due to the finite stripes width.