

Thèse présentée pour obtenir le grade de Docteur de l'Université Louis Pasteur Strasbourg I

- Discipline: PHYSIQUE DE LA MATIERE CONDENSEE
 - Par

Nader YAACOUB

NOUVEAUX ETATS DU Si DANS LES MULTICOUCHES Co/Si

Soutenue publiquement le 09 Juillet 2007

Membres du jury -

Directeur de thèse: M. Pierre Panissod, Directeur de recherche, IPCMS Rapporteur interne: M. Weber Wolfgang, Professeur, IPCMS-ULP Rapporteur externe: M. Alain Schuhl, Professeur, CEA-UJF Rapporteur externe: Mme. Agnès Barthélémy, Professeur, Thalés-Paris XI Examinateur: M. Christian Meny, Chargé de recherche, IPCMS Invitée: Mme. Taehee Kim, Professeur, Ewha, Séoul, Corée

A mes Parents A mes Sœurs et mes Frères A Rodaina

« Tout ce long tâtonnement, c'est la science. La science est l'asymptote de la vérité. Elle approche sans cesse et ne touche jamais »

Victor Hugo (William Shakespeare)

« Quel que soit le chemin où va l'homme, ses pas ne sont jamais qu'à la dimension de ses pieds »

Al-Moutanabbi (Jean-Jacques Schmidt Maxi proverbes arabes Edition Marabout)

REMERCIEMENTS

Ce travail de thèse a été effectué à l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg (IPCMS) au sein de Groupe d'Etude des Matériaux Métalliques (GEMME). Tout d'abord je remercie Monsieur **Marc Drillon**, directeur de l'IPCMS, et Monsieur **Jean Paul Kappler**, responsable de GEMME, de m'avoir accueilli dans leur laboratoire.

Mes vifs remerciements s'adressent à Madame **Agnès Barthélémy**, professeur à l'université Paris Sud XI, Monsieur **Alain Schuhl**, professeur à l'université Joseph Fourier et Monsieur **Wolfgang WEBER**. Professeur à l'université Louis Pasteur, de bien vouloir accepter de rapporter ce travail et de participer à mon jury de thèse. Je souhaite leur témoigner ma gratitude pour l'intérêt qu'ils ont montré à juger ce travail. Je remercie également Madame **Tahee Kim**, professeur à l'université Ehwa Séoul, d'avoir accepté l'invitation et de se déplacer de Corée pour pouvoir assister à ma soutenance de thèse.

Mes sincères et vifs remerciements s'adressent à mon directeur de thèse, Monsieur **Pierre Panissod.** Je lui adresse ma profonde gratitude pour les conseils avisés côté scientifique et pédagogique, pour les riches discussions que nous avons eues pendant ces trois années. Je lui dois de m'avoir accueilli dans son équipe et de m'avoir permis de partager avec lui l'amour de magnétisme et de la recherche. Grand merci.

Je tiens à exprimer toute ma profonde gratitude et reconnaissance à Monsieur **Christian Mény**, qui m'a encadré durant mon stage de DEA et aussi pendant ces trois ans de thèse. Il a su orienter mes recherches aux bons moments en me faisant découvrir et apprendre les différents outils de recherche. Je lui remercie pour sa patience et impatience pour savoir les dernières nouvelles. Sa disponibilité et son enthousiasme m'ont beaucoup motivé pour réaliser ce travail. Je voulais lui dire un grand Merci.

Mes sincères remerciements s'adressent à Monsieur **François Gautier** pour les fructueuses discussions que nous avons eues. Qu'il soit remercié pour l'intérêt qu'il a apporté à mon sujet de recherche.

Je ne saurai oublier de remercier tous mes professeurs de DEA qui m'ont appris de leur savoir faire, en particulier Monsieur **Rodolfo Jalabert**, responsable de DEA Matière Condensée, pour les différents conseils. Je ne les oublierai jamais.

Je remercie tous les personnes de l'IPCMS qui ont attribué d'une façon ou d'une autre à ce travail, en particulier Madame **Corinne Ulhaq** pour la MET, **Olivier Bengone** pour les calculs ab-initio. Mes remerciements s'adressent à Monsieur **Manu Acosta**, qui a été toujours présent pour résoudre les difficultés techniques de pulvérisation cathodique (après un an de recherche nous avons trouvé les micro fuites !!), qui est finalement débarrassé de moi depuis que je n'utilise plus la pulvérisation cathodique. Je tiens à remercier Monsieur **Victor Da costa** d'avoir participer à la préparation des AAF. Je souhaite remercier Monsieur **Alain Derory** pour son aide au SQUID et sa gentillesse et son bon humeur. Je remercie aussi Messieurs **Benoît Heinrich** et **Jean Louis Gallani** qui ont été toujours présent pour résoudre le problème technique de RRX et pour le logiciel de simulation.

J'exprime mes sentiments envers les personnes extérieures au laboratoire. En particulier à Monsieur **Frédéric Ott**, chercheur au LLB-CEA, Orsay, pour les mesures de réflectométrie de neutron. Je le remercie pour l'intérêt qu'il a apporté à mon sujet de recherche. Je remercie également Madame **Daniele Laub** de l'EPFL à Lausanne pour l'accueil chaleureux et pour l'initiation à la préparation des échantillons par la méthode de coin clivé. Grand merci.

Evidemment ces années passées au sein de GEMME n'auraient pas été sans la gentillesse de l'ensemble des membres du Groupe. Je le remercie sincèrement. Je souhaite remercier mes collèges de l'IPCMS, avec lesquels j'ai partagé de bons moments, je les remercie pour leur sympathie. Je n'oublie pas de remercier mes amis, de l'IPCMS ainsi que en dehors du Laboratoire, qui m'ont soutenu durant ces trois ans, avec eux j'ai partagé de bons moments ainsi que des moments difficiles : Abbas Hodroj, Habib Kassem, Khaldon Kassem, Ali Jaafar, Kamel Kassem, Majed EL Schawa, Tareck Khalil, Lamjad Debbichi, Jawad Sayyed Hassan, Hussein Mortada, Abbas Gaddar, Rached Jaafar, Achraf Dhaini et Akram Hijazi et surtout ceux que j'ai oublié de citer (qu'ils me pardonnent).

J'ai ici l'occasion de remercier tout particulièrement **mes Parents** de m'avoir permis de réaliser toutes mes études dans les meilleurs conditions malgré les difficultés. A eux j'adresse mes gratitudes pour leur soutien constant et leur patience. A eux je dois en grande partie l'accomplissement de ce travail par l'espoir et la confiance qu'ils ont toujours su me donner. Qu'ils trouvent avec ceci un modeste geste de reconnaissance et de remerciement.

Merci à mes Sœurs et à mes Frères qui ont été présent durant ces trois ans malgré la distance : **Nidal** (bien sur sa femme **Nada**, son fils **Hammoudi** et sa fille **Roro**), **Hassan, Fatima, Ali, Abir** et **Hussein**, de m'avoir assuré et de me soutenir toujours et surtout pendant les moments difficiles.

Finalement, j'aimerais remercier tout spécialement une femme au très grand cœur pour sa confiance en moi, ses encouragements, son dévouement, sa patience, son aide, pour la motivation et le soutien qu'il m'a apporté toute cette période et surtout pendant la rédaction. C'est ma femme **Rodaina**. Je t'adresse mes sincères remerciements pour tout Rodaina.

Sommaire

Sommaire

Introduction	1
Référence :	8

ChapitreI

Techniques d'élaboration et des caractérisations des	
multicouches Co/Si	11
I.1. Introduction	11
I.2. Pulvérisation cathodique	12
I.2.1. Principe de la technique	12
I.2.2. Elaboration des échantillons	16
I.3. Techniques des caractérisations	18
I.3.1. Microscopie électronique à transmission	18
I.3.1.1. Principe de la MET	18
I.3.1.2. Préparation des échantillons pour la MET	23
I.3.2. Résonance magnétique nucléaire	25

I.3.2.1. Introduction	25
I.3.2.2. Analyse des données	27
I.3.2.2.1. Analyse des interfaces	28
I.3.2.2.2. Modèle d'interface diffuse	29
I.3.3. Réflectométrie des Rayons X	30
I.3.4. Mesures magnétiques	32
I.3.4.1. SQUID	34
I.3.4.2. AGFM	36
I.3.5. Mesure de la résistance (méthode de 4 points)	38
I.4. Conclusion	38
Référence :	39

Chapitre II

Mécanismes de couplage magnétique intercouche (IEC)	
dans les multicouches magnétiques	40
II.1. Introduction	40
II.2. Description phénoménologique	42
II.3. Couplage bilinéaire via les électrons de conduction	42
II.3.1. Modèle RKKY	43
II.3.2. Modèle d'interférence quantique	45
II.4. Couplage magnétique bilinéaire par effet tunnel	48
II.4.1. Modèle de Slonczevski	48
II.4.2. Modèle d'interférence quantique	49
II.5. Autres mécanismes de couplage magnétique	50
II.5.1. Couplage biquadratique	50
II.5.2. Couplage ferromagnétique par trou d'épingle	52

II.5.3. Couplage magnétique de type magnétostatique	53
II.6. Conclusion	55
Référence :	57

Chapitre III

Etude Structurale des multicouches Co/Si déposées à	60
90K	
III.1. Introduction	60
III.2. Microscopie électronique à transmission	61
III.2.1. Multicouches Co/Si déposées sur des substrats de Si(111)	61
III.2.2. Comparaison entre la structure des multicouches Co/Si	
déposées sur un substrat de Si(111) et celles déposées sur un substrat de	
verre	65
III.2.3. Résumé de l'étude par la MET	67
III.3. Résonance magnétique nucléaire (RMN)	67
III.3.1. Description qualitative de spectre 3D des multicouches	
Si(111)[CotConm/Si4nm]	67
III.3.2. Analyse des interfaces des multicouches Co/Si	69
III.3.3. Modélisation de l'interface	73
III.3.4. Résumé de l'étude par RMN	76
III.4. Réflectométrie des Rayons X (RRX)	76
III.4.1. RRX pour les multicouches de type Si(111)[CotConm/Si4nm]	76
III.4.2. RRX pour les multicouches de type Si(111)[Co3nm/SitSi]*6	79
III.4.3. Comparaison entre les spectres RRX des multicouches de type	
Si(111)[Co/Si] et celles de type verre[Co/Si]	82

III.4.4. Résumé de l'étude par la RRX	83
III.5. Discussion	83
III.6. Conclusion	84
Annexe: Mélange interfacial et couche morte magnétique	86
Références :	88

Chapitre IV

Etude des propriétés magnétiques et de transport des	
multicouches Co/Si	89
IV.1. Introduction	89
IV.2. Etude des propriétés magnétiques des multicouches	
Co/Si	90
IV.2.1. Cycles d'aimantation des multicouches [Co3nm/SitSinm]*6	92
IV.2.1.1. Courbes d'aimantation à 300 K	92
IV.2.1.2. Effet de la température sur les cycles d'hystérésis des multicouches	
Co/Si	95
IV.2.1.2.1 Etude détaillée en fonction de la température de deux	
multicouches avec une saturation difficile et facile	97
IV.2.1.3. Part de l'anisotropie dans l'énergie de saturation	101
IV.2.2 Evaluation du couplage dans des vannes de spin	
(AAF/Co1nm/SitSinm/Co6nm)	104
IV.2.3. Effet de la cristallisation sur les propriétés magnétiques des	
multicouches Co/Si	112
IV.2.4. Conclusion partielle sur le couplage dans les multicouches	
Co/Si et première comparaison avec la théorie	114
IV.3. Etude du transport dans les multicouches Co/Si	116

IV.3.1. Mesures de la résistance en fonction de l'épaisseur de Si	117
IV.3.2. Corrélation entre les propriétés magnétiques et de transport des	
multicouches Co/Si	119
IV.4. Corrélation entre l'oscillation de la rugosité de	
l'interface et les propriétés physiques des multicouches Co/Si.	121
IV.5. Conclusion	123
Références :	125

Chapitre V

Discussion générale	127
V.1. Introduction	127
V.2. Interprétation(s) possible(s) de l'oscillation du couplage	
magnétique dans les multicouches Co/Si	128
V.2.1. Oscillation du couplage magnétique dans les multicouches Co/Si	
et confrontation avec les calculs ab-initio	129
V.2.2. Oscillation de couplage dans les multicouches Co/Si dans le	
modèle d'interférence quantique et dépendance en température	136
V.2.3. Oscillations de l'énergie de saturation et rugosité en fonction de	
l'épaisseur de Si	139
V.3. Origine(s) possible(s) de l'oscillation de la résistance	145
V.3.1. Origine quantique de l'oscillation de résistance en fonction de	
l'épaisseur de Si	147
V.3.2. Oscillation de la résistance et oscillation de la rugosité en	
fonction de l'épaisseur de Si	147

V.4. Oscillation de la rugosité de l'interface et structure

électronique du Si dans les multicouches Co/Si	149
V.5. Conclusion	151
Références :	152
Conclusion et perspectives	154

Introduction

Introduction

Depuis une trentaine d'années, les études sur les couches métalliques nanométriques et leurs applications, dans le domaine de l'enregistrement magnétique en particulier, ont pu être menées grâce à l'évolution des technologies de l'élaboration. Maintenant, il est possible de créer des structures totalement artificielles en associant des matériaux métalliques, des semi-conducteurs et des isolants. En combinant leurs propriétés structurales et physiques, on arrive à générer des nouveaux systèmes avec de nouvelles propriétés. La combinaison entre les matériaux métallique ferromagnétique et les semi-conducteurs ou isolants est intéressante, elle ouvre par exemple la possibilité de développer de nouvelles structures magnétorésistives. Ces dispositifs permettant un contrôle non seulement du courant de charge (base de l'électronique traditionnelle) mais aussi du courant de spin ont présidé à l'émergence de ce qu'on nomme aujourd'hui l'électronique de spin ou "Spintronique".

La découverte du couplage d'échange antiferromagnétique (AF) en 1986 [Grünberg 86] et de la magnétorésistance géante (GMR, variation de la résistivité sous l'application d'un champ magnétique externe) dans les superréseaux Fe/Cr en 1988 [Baibich 88], a attiré l'attention vers les multicouches magnétiques métalliques. La GMR des multicouches magnétiques est un premier exemple d'effet d'électronique de spin aujourd'hui utilisé pour la lecture des disques durs ou bandes magnétiques. Le défi actuel de l'électronique de spin est d'utiliser le spin de l'électron pour le stockage de l'information. Dans ce contexte des systèmes complètement métalliques, tels que ceux qui ont permis la découverte de la GMR, ne sont pas utilisables, puisque l'ordre de grandeur de leur résistance électrique rend difficile leur intégration dans des dispositifs microélectroniques. Ainsi après la découverte de la GMR dans des structures de type métal ferromagnétique/métal non magnétique/métal

ferromagnétique (MF/NM/MF), uniquement constituées de métaux, la recherche s'est portée sur l'utilisation de nouveaux matériaux. En particulier, un effort considérable s'est concentré sur les structures hybrides MF/isolant/MF (MF/I/MF) ou MF/semiconducteur/MF (MF/SC/MF). Des résultats intéressants ont été obtenus, en particulier, avec une couche isolante comme couche séparatrice, c'est la magnétorésistance tunnel (TMR), variation de résistance électrique de la jonction tunnel qui apparaît lors du changement d'orientation relative des aimantations des couches ferromagnétiques. En effet, la découverte de l'effet tunnel dépendant du spin dans des structures MF/I/MF en 1975 par Jullière [Jullière 75] et sa mise en évidence à température ambiante en 1995 par Moodera [Moodera 95], ont permis d'envisager la mise en œuvre d'un nouveau type de mémoire appelée MRAM (Magnetic Random Acces Memory). La MRAM présente les avantages cumulés des autres mémoires tels que : rapidité d'accès comme la SRAM (Static Random Acces Memory), haute densité comme la DRAM (Dynamic Random Acces Memory) et non volatilité comme la mémoire Flash. Actuellement les applications des jonctions tunnels magnétiques (MF/I/MF) sont très nombreuses telles que : mémoires magnétiques, capteurs magnétorésistifs, transistors magnétiques à effet tunnel,...[Prinz 99]. Enfin une autre possibilité intéressante est de combiner des matériaux ferromagnétiques avec des matériaux utilisés actuellement en électronique (semi-conducteur), comme le silicium qui est sans aucun doute le matériau incontournable de l'électronique actuelle. Alors que de nombreuses études ont déjà été faites sur le système Fe/Si, on peut citer par exemple [Toscano 92; Fullerton 92; Mattson 93; Briner 94; Chaiken 96; Carlisle 96; Alameda 97 ; Endo 99 ; Gareev 01 ; Gareev 02], très peu de résultats ont été publiés sur le système Co/Si. Pourtant, parmi les matériaux ferromagnétiques « simples », c'est un des matériaux qui permet d'obtenir les magnétorésistances les plus importantes. C'est dans ce contexte que nous proposons d'étudier la structure, les propriétés magnétiques et de transport des multicouches Co/Si.

Si les études de systèmes MF/NM/MF et de systèmes MF/I/MF ont abouti à des résultats intéressants tels que : GMR et TMR, ce n'est pas le cas pour le système MF/SC/MF. En effet, les résultats obtenus pour les systèmes MF/SC/MF sont contradictoires d'une expérience à l'autre ainsi qu'entre expérience et théorie. Par exemple, dans le cas de système Fe/Si, un couplage de nature oscillatoire [Gareev 01] (lorsque l'interface est largement mélangée) et un couplage de nature AF non oscillatoire [Gareev 02] (lorsque

l'interface est peu mélangée), ont été observés expérimentalement. Cependant, les calculs théoriques prévoient un couplage oscillatoire pour une interface parfaite et un couplage AF non oscillatoire pour une interface mélangée *[Herper 02]*. Le problème majeur des systèmes MF/SC est la présence d'un fort mélange aux interfaces. Dans le cas du silicium on obtient des siliciures et/ou des alliages amorphes aux interfaces. L'existence de cette zone interfaciale entre le métal et le semi-conducteur bouleverse les propriétés physiques du système MF/SC, et rend l'interprétation des résultats difficile et quelquefois incompréhensible et contradictoire.

Dans le cas des multicouches Co/Si élaborées par pulvérisation cathodique à température ambiante, le mélange à l'interface entre le Co et le Si est de l'ordre de 5 à 10 nm *[Ishiguro 87 ; Fallon 00_a]*. Cela a pour conséquence que, pour une épaisseur nominale de Co et de Si plus petite que 5nm, les couches de Co ou de Si se mélangent totalement, et on n'obtient plus une multicouche avec du Co et du Si pur. Un alliage Co-Si se forme dont la composition dépend des épaisseurs relatives nominales des couches de Co et de Si et des conditions de dépôt. Pour des couches de Co et de Si plus grandes que 5 nm, on obtient alors des couches pures de Co et de Si, avec un changement progressif de la concentration de l'alliage à travers l'interface mélangée. On obtient différentes phases dont les parties principales sont : le Co cristallin, le silicium amorphe et un alliage amorphe ou un siliciure cristallin *[Fallon 00_a]*. Le silicium amorphe et l'interface amorphe sont toujours obtenus quelle que soit la technique de dépôt : évaporation *[Pet Ford-Long 87]* ou pulvérisation cathodique *[Ruterana 90]*. L'épaisseur de la région d'interface est principalement décidée par la cinétique de l'interdiffusion qui est difficile à contrôler pendant le dépôt.

Le mélange à l'interface entre les couches de Co et de Si peut être interprété en terme de mélange balistique lorsque les atomes de Co évaporés atteignent la surface avec beaucoup d'énergie et se mélangent avec les couches pures de Si *[Pet Ford-Long 87]*. Cependant, il est peu probable que la faible énergie (< 10 eV) de l'adatome soit suffisante pour causer le mélange observé dans les systèmes fabriqués à l'ambiante par pulvérisation cathodique *[Ruterana 90]*. L'origine du mélange à l'interface a donc probablement pour origine une réaction chimique exothermique à l'état solide *[Shim 96]*. Dans ce dernier cas, deux événements sont possibles pour le mélange à l'interface de Co/Si :

1) La croissance d'un alliage amorphe par une réaction d'amorphisation à l'état

solide favorisée par la température dégagée par l'enthalpie de mélange à l'interface (réaction exothermique) et un taux de diffusion élevé (si la température reste audessous de la température de cristallisation).

 La formation de siliciure cristallin à l'interface si la température s'élève suffisamment. Les trois siliciures principaux qui peuvent se former à l'interface avec la température sont CoSi₂, Co₂Si et CoSi [Shim 96].

L'épaisseur de la zone interfaciale, elle-même, peut également être commandée par la quantité de matériau déposé rendu disponible pour la réaction.

Les propriétés magnétiques des multicouches Co/Si sont fortement influencées par le mélange à l'interface. En particulier on observe une diminution de l'aimantation des multicouches. Dans le cas d'une multicouche de Co/Si, élaborée à température ambiante par pulvérisation cathodique, le système passe d'un comportement ferromagnétique à faible épaisseur de Si, à un comportement superparamagnétique lorsque l'épaisseur de Si déposé est suffisante pour faire disparaître le Co pur [Grundy 00 ; Fallon 99, Fallon 00_b ; Fallon 00_c]. Ce comportement est caractérisé par un cycle oblique, une rémanence nulle et un champ de saturation très grand. Il faut noter que, dans cette étude, aucune information n'a été donnée en ce qui concerne la perte d'aimantation totale, traduite en épaisseur équivalente de couche morte magnétique, c'est-à-dire la quantité des atomes de Co non magnétique à l'interface.

Nous avons des informations à ce sujet dans une étude de couche de Co déposée sur Si(111) par épitaxie par jet moléculaire (EJM). La particularité de cette technique est que les mesures peuvent se faire in-situ, dans un très bon vide (jusqu'à 10^{-11} mbar) et sans retour à température ambiante. La croissance des couches avec cette technique est aussi mieux contrôlée que par pulvérisation cathodique. L'épaisseur de couche morte magnétiquement de Co, déposée sur un substrat de Si(111) par EJM à température ambiante, est de l'ordre de 0.6 nm, et elle est de l'ordre de 0.3 nm à 120 K [*Tsay 00*]. Dans une autre étude, toujours par EJM, la couche morte observée est de l'ordre de 1 nm à l'ambiante, et de 0.7 nm à 150 K [*Hai Xu 03*]. Nous voyons donc que selon la technique et la température de dépôt employée les propriétés du système Co/Si peuvent varier de manière considérable. Néanmoins, des études effectuées à basse température, on peut

déduire que les composantes non ferromagnétiques de Co-Si à l'interface peuvent être significativement réduites par la diminution de la température de substrat pendant le dépôt.

Du point de vue théorique, les calculs ab-initio de Enkovaara et al. pour des multicouches hc<0001> Co/Si avec des interfaces parfaites ont prévu une oscillation de couplage d'échange magnétique [Enkovaara 00]. Les multicouches Co/Si passent d'une configuration où les aimantations des couches Co sont parallèles (couplage ferromagnétique) à une configuration où les aimantations sont antiparallèles (couplage antiferromagnétique) en fonction de l'épaisseur de la couche de Si. Cette oscillation est à courte période : 2 plans atomiques. Cette prédiction théorique de Enkovaara n'a jamais été observée expérimentalement avant notre travail. Un couplage de nature antiferromagnétique a été mis en évidence dans le système Co_xSi_{1-x}/Si de structure amorphe [Quiros 05; Zarate 06_a; Zarete 06_b; Zarate 07] et aussi dans les multicouches Co/Si [Luciñski 04], mais jamais une oscillation de couplage claire n'a été observée expérimentalement. De plus, un couplage ferromagnétique à faible épaisseur de Si < 0.8 nm et un couplage antiferromagnétique pour une épaisseur < 1.7 nm ont été suggérés dans des multicouches Co/Si dans un résumé de conférence, [Inomata 97] mais n'a jamais été publié. Quoi qu'il en soit cette dernière étude a été faite pour une épaisseur nominale de Si < 1.7 nm avec une épaisseur de la zone interfaciale de l'ordre de 5 nm. Dans cette étude il s'agissait donc d'un couplage entre les deux couches de Co à travers un alliage Co-Si et non une couche de Si pur. Récemment un couplage de nature ferromagnétique a été trouvé dans les multicouches Co/Si [Jaiswal 07], mais l'interprétation de la nature du couplage n'était pas claire. En fait, il est difficile de détecter le couplage ferromagnétique dans les multicouches par simple mesure de leurs cycles d'hystérésis (cf chapitre IV).

L'ensemble des résultats expérimentaux évoqués ci-dessus suggère que le fort processus de diffusion atomique à l'interface du système MF/SC est à l'origine des divers comportements magnétiques observés dans ce système. A l'évidence, les composantes à l'interface de Co/Si (siliciure, alliage amorphe, rugosité de l'interface,...), peuvent modifier ou supprimer le couplage d'échange prévu par le calcul ab-initio.

Dans le cadre de cette thèse, nous nous sommes donc proposé de réduire ou, si possible,

d'éliminer le mélange à l'interface Co/Si. Pour cela, et en se basant sur les travaux cités précédemment, nous avons élaboré des multicouches Co/Si sur un substrat de Si (111), à basse température (90 K) par pulvérisation cathodique. Notre but était de limiter la mobilité atomique au moment du dépôt et donc la diffusion atomique aux interfaces Co/Si. Nous espérions, ainsi, obtenir l'interface la plus abrupte possible, pour étudier les propriétés physiques intrinsèques des multicouches Co/Si. Une partie importante du travail a donc consisté à étudier les propriétés structurales des multicouches Co/Si déposées à 90 K. L'autre partie a été consacrée à l'étude de leurs propriétés magnétiques et de transport en les confrontant, avec un certain succès, aux prédictions théoriques dans les multicouches Co/Si.

Ce mémoire est organisé de la manière suivante.

Le premier chapitre est consacré à la présentation de la technique d'élaboration des multicouches Co/Si utilisée dans ce travail (pulvérisation cathodique), et des différentes techniques de caractérisations structurales, magnétiques et de transport que nous avons utilisées pour étudier les propriétés des multicouches Co/Si.

Dans le chapitre II, nous passons brièvement en revue les mécanismes de couplage d'échange magnétique intercouche, dans les multicouches magnétiques. Parmi les quelques modèles présentés le modèle d'interférence quantique de P. Bruno, fera l'objet d'une attention particulière dans la mesure où il traite de manière unifiée le cas des espaceurs métalliques et isolants. Comme nous le verrons, les résultats de notre étude sur le couplage au travers du silicium semblent relever d'une situation intermédiaire.

Le chapitre III présente les propriétés structurales des différentes multicouches Co/Si étudiées avec les techniques expérimentales décrites dans le chapitre I : la Microscopie Electronique à Transmission (MET), la Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) et la Réflectométrie des Rayons X (RRX).

Le chapitre IV est dédié à l'étude des propriétés magnétiques et de transport des différentes multicouches Co/Si. Nous nous intéressons en particulier à l'étude du couplage d'échange magnétique entre les deux couches ferromagnétiques de Co à travers la couche

de Si.

Le chapitre V est consacré à une discussion générale dans le but d'effectuer une synthèse entre les propriétés structurales et physiques du système étudié et d'en tirer une vision générale sur la structure électronique du système Co/Si/Co (presque) intrinsèque.

Références :

A - B - C

- [Alameda 97] J. M. Alameda et al., Phys. Rev. B 56, 3306 (1997)
- [Baibich 88] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* 61, 2472 (1988)
- [Briner 94] B. Briner, M. Landolt, Phys. Rev. Lett. 73, 340, (1994)
- [Chaiken 96] A. Chaiken, R. P. Michel, M. A. Wall, Phys. Rev. B 53, 5518 (1996)
- [Carlisle 96] J. A. Carliste, A. Chaiken, R. P. Michel, L. J. Terminello, *Phys. Rev. B* 53, R8824, (1996)

E - F

- [Endo 99] Yasushi Endo, Osamu Kitakami, Yutaka Shimada, Phys. Rev. B 59, 4279 (1999)
- [Enkovaara 00] J. Enkovaara., A. Ayuela, R. M. Nieminen, Phys. Rev. B 62, 16018 (2000)
- [Fulletron 92] Eric E. Fullerton, J. E. Mattson, S. R. Lee, C. H. Sowers, Y. Y. Huang, G. Felcher, S. D. Bader, F. T. Parker, J. Magn. Magn. Mat. 117, L301, (1992)
- [Fallon 99] J. M. Fallon, C. A. Faunce, H. J. Blythe, P. J. Grundy, J. Magn. Magn. Mat. 198-199, 728 (1999)
- [Fallon 00_a] J. M. Fallon, C. A. Faunce, P. J. Grundy, J. Appl. phys. 88, 2400 (2000)
- [Fallon 00_b] J. M. Fallon, C. A. Faunce, P. J. Grundy, J. Phys. Condens. Matter 12, 4075 (2000)
- [Fallon 00_c] J. M. Fallon, C. A. Faunce, P. J. Grundy, H. J. Blythe, J. Appl. Phys. 87, 6833 (2000)

G - H

- [Grünberg 86] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky, H. Sowers, *Phys. Rev. Lett.* 57, 2442 (1986)
- [Grundy 00] P. J. Grundy, J.M. Fallon, H.J. Blythe, Phys. Rev. B 62 9566 (2000)
- [Gareev 01] R. R. Gareev, D. E. Bürgler, M. Buchmeier, D. Olligs, R. Schreiber, P. Grünberg, Phys. Rev. Lett. 87, 157202 (2001)

- [Gareev 02] R. R. Gareev, D. E. Bürgler, M. Buchmeier, R. Schreiber, P. Grünberg, J. Magn. Magn. Matter. 240, 235 (2002)
- [Herper 02] H. C. Herper, P. Weinberger, L. Szunyogh, C. Sommers, *Phys. Rev. B* 66, 064426 (2002)
- [Hai Xu 03] Hai Xu, Alferd C. H. Huan, Andrew T. S. Wee, D. M. Tong, Solid State Communications 126, 659 (2003)

I - J

- [Ishiguro 87] T. Ishiguro, H. Fujii, Y. Ichinose, J. Endo, H. Harada, J. Appl. phys. 61, 4284 (1987)
- [Inomata 97] K. Inomata, Y. Saito, J. Appl. Phys. 81, 5344 (1997)
- [Jullière 75] M. Jullière, Phys. Lett. 54 A, 225 (1975)
- [Jaiswal 07] A. Jaiswal, S. Rai, M. K. Tiwari, V. R. Reddy, G. S. Lodah, R. V. Nandedkar, J. Phys.: Condens. Matter 19, 016001 (2007)

L - **M**

- [Luciñski 04] T. Luciñski, P. Wandziuk, F. Stobiecki, B. Andrzejewski, M. Kopcewicz, A. Hütten, G. Reiss, W. Szuskiewicz, J. Magn. Magn. Mater. 282, 248 (2004)
- [Mattson 93] J. E. Mattson, Sudha Kumar, Eric E. Fullerton, S. R. Lee, C. H. Sowers, M. Grimsditch, S. D. Bader, *Phys. Rev. Lett.* 71, 185, (1993)
- [Moodera 95] J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong, R. Meservey, *Phys. Rev. Lett.* 74, 3273 (1995)

P - Q - R - S

- [Pet Ford-Long 87] A. K. Pet Ford-Long, M. B. Stearns, C. H. Lee, S. R. Nutt, M. ceglio, A. M. Hawryluk. J. Appl. phys. 61, 1422 (1987)
- [Prinz 99] Gray A. Prinz, J. Magn. Magn. Mater. 200, 57 (1999)
- [Quirós 05] C. Quirós, J. I. Martín, L. Zárate, M.Vélez, J. M. Alameda, Phys. Rev. B 71, 024423 (2005)
- [Ruterana 90] P. Ruterana, P. Haudy, P.Boher, J. Appl. Phys. 68, 1033 (1990)
- [Shim 96] Jae Yeob Shim, Joon Seop Kwak, Hong Koo Baik, *Thin Solid Films* 288, 309 (1996)

T - Z

- [Toscano 92] S. Toscano, B. Briner, H. Hopster, M. Landolt, J. Mag. Mag. Mat. 114, L6 (1992)
- [Tsay 00] J. S. Tsay, Y. D. Yao, Y. Liou, Surface Science 454-456, 856 (2000)
- [Zarate 06_a] L. Zarate, C. Quiros, M. Vélez, N. Yaacoub, C. Meny, A. Pérez-Junquera, J. I. Martin, J. M. Alameda, *Phys. Status Solidi A* 203, 1420 (2006)
- [Zarate 06_b] L. Zarate, C. Quiros, M. Vélez, G. Rodriguez-Rodriguez, J. I. Martin, J. M. Alameda, *Phys. Rev. B* 74, 014414 (2006)
- [Zarate 07] L. Zarate, C. Quiros, M. Vélez, J. I. Martin, J. M. Alameda, J. Non-Crist. Solids 353, 959 (2007)

Chapitre I

Techniques d'élaboration et des caractérisations des multicouches Co/Si

Chapitre I

Techniques d'élaboration et des caractérisations des multicouches Co/Si

I.1. Introduction

Le but de ce chapitre est d'exposer brièvement les techniques expérimentales d'élaboration et de caractérisation, utilisées au cours de cette thèse, pour étudier les propriétés structurales et magnétiques des multicouches Co/Si. Tous les échantillons étudiés dans cette thèse ont été élaborés à basse température (90K) par pulvérisation cathodique (magnétron) à l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg.

Le principe de la pulvérisation cathodique et la méthode d'élaboration des multicouches Co/Si seront exposés en première partie de ce chapitre. Dans la deuxième partie, nous décrirons les techniques utilisées pour caractériser les propriétés structurales de nos multicouches, Microscope Electronique à Transmission (MET), Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) et Réflectométrie des Rayons X (RRX), et leurs propriétés magnétiques, magnétomètre à gradient de champ alternatif (AGFM) et à SQUID (Superconducting Quantum Interference Device). Nous présenterons aussi la méthode 4 points utilisée pour les mesures de la résistance dans le plan des échantillons.

I.2. pulvérisation cathodique

I.2.1. principe de la technique

Les méthodes principales pour préparer des couches minces sont classées en deux catégories : La technique de dépôt en phase vapeur CVD (Chemical vapor Deposition), et de dépôt par méthode physique PVD (Physical Vapor Deposition) telles que la pulvérisation et l'évaporation (Epitaxie par Jet Moléculaire et Ablation Laser). En recherche ce sont généralement des techniques PVD qui sont utilisées, alors que les techniques CVD sont également utilisées industriellement, à cause de leur meilleur rendement (grande vitesse de dépôt). Les techniques CVD présentent quelques inconvénients, tels que faible densité des films déposés, la contamination par des gaz réactifs issus de la réaction chimique (hydrogène, fluor, chlore,...), et elles sont spécifiques à un nombre limité de matériaux. Dans le domaine des couches minces magnétiques, il faut maîtriser les dépôts à l'échelle du plan atomique, quelques angströms, et ceci est beaucoup plus facile à réaliser avec les méthodes physiques.

La pulvérisation cathodique bénéficie d'une très grande popularité tant en recherche qu'en milieu industriel [Vossen 91]. Cette technique permet le dépôt de n'importe quel matériau solide (métal, isolant,...), à l'exception des solides organiques et autres polymères dont les longues chaînes moléculaires seraient détruites. Le grand intérêt de la pulvérisation cathodique est sa capacité à déposer rapidement un grand nombre d'échantillons avec des caractéristiques variables. La pulvérisation cathodique souvent utilisée pour l'étude des propriétés physiques (par exemple : couplage magnétique, magnéto-résistance, ...) des multicouches (MF/NM/MF) où il est nécessaire de déposer un grand nombre d'échantillons dans des conditions expérimentales différentes. C'est pourquoi la pulvérisation cathodique est la technique qui répond le mieux à notre besoin pour étudier les multicouches Co/Si. Son principe est donné brièvement dans la suite.

Le principe de base de la pulvérisation cathodique est illustré sur la figure 1. Le matériau à déposer est introduit dans l'enceinte à vide, sous forme d'une plaque de quelques millimètres d'épaisseur, ce qu'on appelle la cible. Cette cible est fixée sur une électrode refroidie (la cathode) qui est portée à une tension négative. Une deuxième électrode (l'anode) est disposée en face de la cible, à une distance de quelques centimètres, l'anode sert de porte substrat. Les atomes de la cible sont éjectés par un bombardement ionique obtenu par la création d'un plasma entre l'anode et la cathode. Dans le cas du système de l'IPCMS le plasma est créé à partir d'Argon (Ar). Les ions Ar⁺ contenus dans le plasma, créé par le champ électrique entre les deux électrodes, viennent bombarder la cible et aboutissant à l'éjection du matériau de sa surface. Les espèces pulvérisées se thermalisent partiellement dans leurs chocs avec les atomes du gaz générateur des ions puis se déposent sur le substrat de polarisation anodique pour y former un film.



Figure 1 : Schéma de principe de la pulvérisation cathodique. (e) représente les électrons, (M) représente les atomes à déposer et (Ar^+) représente les ions d'argon.

Pour augmenter la densité de plasma et par suite le taux de dépôt, le système du laboratoire utilise des cathodes magnétrons. Un magnétron plan est constitué d'une cathode refroidi à l'eau, fixée sur des aimants ou des électro-aimants créant un champ magnétique dans le but de confiner dans une région annulaire à la surface de la cathode les électrons

secondaires émis lors du bombardement ionique. Ces électrons ionisent à leur tour de nouveaux atomes d'Ar.

Les vitesses de dépôt, sont généralement contrôlées par les tensions de polarisation, en courant continu (DC sputtering) ou en courant alternatif (RF sputtering) et par la pression de gaz inerte introduite pour créer le plasma. On peut, aussi, modifier les vitesses de dépôt par le changement de la géométrie des magnétrons. Les matériaux à déposer déterminent le type de polarisation. En effet, la polarisation en courant continu DC convient bien pour des cibles métalliques. Pour les cibles isolantes, c'est la polarisation en courant alternatif radiofréquence qui convient, pour éviter l'accumulation de charges sur la cible et par la suite l'écrantage qui stoppe rapidement le bombardement.



Figure 2 : Bâti de pulvérisation cathodique de l'IPCMS.

L'enceinte de pulvérisation cathodique de l'IPCMS (Figure 2) est un bâti Alliance Concept, qui permet des dépôts à partir de six sources magnétrons (figure 3) : Deux magnétrons face à face utilisés pour le dépôt d'alliages homogènes et de composition bien définie, deux magnétrons plans, et deux magnétrons convergents qui permettent de codéposer deux matériaux afin de réaliser des alliages de composition ajustable. Deux de ces magnétrons ont une alimentation RF, et les quatre autres ont une alimentation DC. La taille de magnétron IPCMS est de 3 pouces. Au dessus de chaque magnétron il y a un cache rotatif qui permet de contrôler la durée du dépôt.



Figure 3 : Platine des magnétrons et des cibles, on peut distinguer les magnétrons plans, face à face et convergents ainsi que les caches qui contrôlent l'ouverture et la fermeture du flux des atomes vers les substrats.



Figure 4 : Porte échantillon, on peut voir très clairement le poste chaud et le poste froid

Le porte substrat est formé en deux parties (figure 4) : la première partie peut être chauffée jusqu'à 800°C (le poste chaud PSC), et l'autre partie peut être refroidie jusqu'à la température de l'azote liquide ou chauffée jusqu'à 150 °C (le poste froid PSF). On peut placer jusqu'à 18(9) substrats de 1(2) pouce sur le PSF et 3 substrats de 1 pouce sur le PSC (figure 4), au cours d'une session. Le porte substrat est lui-même polarisable, ce qui permet un décapage de la surface des substrats (étape appelée « etching ») par un plasma d'argon avant d'effectuer un dépôt. Le porte substrat et les magnétrons sont séparés par un plateau tournant percé d'une ouverture de diamètre ajustable en fonction des substrats, qui permet de sélectionner le substrat et la cible. Pendant le dépôt, substrat, ouverture et cible sont alignés.

Le bâti de pulvérisation cathodique est équipé par un système de pompage cryogénique qui permet d'atteindre un vide résiduel de l'ordre de 2 à $3*10^{-8}$ mbar avant le dépôt, et un spectromètre de masse permet de détecter les pressions partielles d'eau, d'hélium, d'oxygène, d'argon et d'azote. La pression de travail pendant le dépôt est de l'ordre de 3 à $5*10^{-3}$ mbar, elle est maintenue en équilibre dynamique durant le dépôt par un flux constant d'argon. L'ensemble de toutes les opérations est géré par un automate relié à un ordinateur.

I.2.2. Elaboration de multicouches Co/Si

Les cibles utilisées durant cette thèse sont le cobalt (Co) et le silicium (Si). Les multicouches sont réalisées par déposition de ces éléments purs dont les cibles sont situées sur les magnétrons plans (figure 3). Les vitesses de dépôt sont ajustées à l'aide de la puissance RF pour le Si et du courant DC pour le Co. Pour pouvoir calculer les taux de dépôt, il faut faire une calibration d'épaisseur pour chaque élément. Pour le calibrage des épaisseurs, un film de quelques dizcentaines de nanomètres est déposé sur des substrats de verre et ensuite mesuré à l'aide d'un profilomètre. Le taux de dépôt a été choisi de l'ordre de 0.05 nm/s pour les deux types de matériaux (Co et Si) avec un courant DC de 110 mA et une puissance RF de 100 W, respectivement. Ces taux de dépôt de Co et de Si ont aussi été vérifiés à postériori à l'aide des mesures par réflectométrie des rayons X. La température de dépôt était toujours de l'ordre de 90 \pm 5 K ; c'est la température minimale qu'il est

possible d'obtenir sur le PSF.

La plupart de nos multicouches Co/Si ont été réalisées sur des substrats de silicium monocristallin orientés [111], et quelques échantillons ont été déposés sur des substrats de verre. Avant le dépôt, les substrats sont nettoyés dans un bain d'acétone aux ultrasons pendant 15 minutes, suivi d'un bain d'alcool aux ultrasons pendant 15 minutes afin de dégraisser la surface et d'éliminer les poussières. Ensuite, ils sont décapés, dans le bâti de pulvérisation cathodique par un plasma RF d'argon pendant 20 minutes.

Le schéma d'un empilement multicouche est présenté dans la figure 5, nous avons tout d'abord déposé une couche de mouillage de Si de l'ordre de 5 nm, ensuite nous avons déposé N bicouches Co/Si et terminé la multicouche par une couche de protection de 10 nm de Si pour empêcher l'oxydation du Co.



Figure 5 : Schéma de l'empilement des multicouche Co/Si.

Deux types principaux de multicouches Co/Si ont été élaborés durant cette thèse :

- Type Si(111)/[Cot_{Co}nm/Si4nm]*6, multicouches à épaisseur de Co variable, avec 1nm<t_{Co}<9nm, déposées sur des substrat de Si(111)
- (2) Type Si(111)/[Co3nm/Sit_{Si}nm]*n, multicouches à épaisseur de Si variable, avec 1nm<t_{Si}<7nm, déposées sur des substrat de Si(111)

Ces séries ont été élaborées dans le but, évident et principal dans cette thèse, d'étudier

l'influence des épaisseurs de Co et de Si, respectivement, sur les propriétés structurales et magnétiques de ces multicouches. Les secondes ont aussi été préparées avec différentes répétition N (2, 6, 12) pour étudier l'existence possibles d'effet de super-réseau.

Des séries auxiliaires ont également été préparées :

- (3) Type verre/[Co3nm/Sit_{Si}nm]*6, à épaisseur de Si variable, avec 2.8nm<t_{Si}<3.2nm, pour étudier l'effet du substrat.</p>
- (4) Série de dispositifs de type Antiferromagnétique Artificiel/Si/couche libre : Si(111)/Tampon/CoFe3nm/Ru0.8nm/[CoFe1nm/Co1nm]/Sit_{Si}nm/Co6nm, avec
 2.95nm ≤.tsi ≤ 3.3nm. pour illustrer les variations de couplage à épaisseur de Si variable.

I.3. Techniques de caractérisation

I.3.1. Microscope électronique à transmission

I.3.1.1. Principe de la microscopie par MET

La microscopie par microscope électronique en transmission (MET) est une technique de caractérisation structurale. L'observation des couches minces à l'aide du MET nous permet d'accéder à plusieurs informations structurales telles que : la visualisation directe de l'échantillon et de la qualité des interfaces (en section transverse), la structure cristalline (qui peut être déterminée à partir des clichés de diffraction par observation en vue plane) et la taille de grains (champ sombre).

L'observation de nos multicouches a été effectuée à l'IPCMS à l'aide d'un microscope Topcon EM002B. La tension d'accélération des électrons est de l'ordre de 200 kV, correspondant à une longueur d'onde des électrons de λe -= 0,0251 Å, et une résolution maximale point à point de 1,8 Å (haute résolution). Ce microscope est équipé d'un système d'analyse chimique qui permet de vérifier la composition globale des échantillons. Ce
microscope, comme tous les microscopes électroniques, est constitué de plusieurs éléments qui sont présentés dans figure 6. La colonne optique électronique regroupe les éléments nécessaires à la production du faisceau d'électrons (canon à électrons), sa focalisation (les lentilles électromagnétiques) et à son observation (écran fluorescent).

Le canon à électrons assure la production des électrons et leur accélération. Il est constitué d'un filament (monocristal de LaB6) que l'on chauffe à une température voisine de 1500°C pour extraire les électrons (émission thermoélectronique). Diverses lentilles électromagnétiques sont employées pour focaliser le faisceau électronique. Dans la plupart des cas, des diaphragmes sont placés derrière ces lentilles et permettent de sélectionner le faisceau d'électrons en partie ou en totalité.

Le faisceau cohérent d'électrons de haute énergie interagit avec un échantillon préparé sous forme d'une lame mince (normalement plus mince que 50 nm) et le traverse. Les électrons qui se propagent dans l'échantillon peuvent être diffusés élastiquement (sans perte d'énergie), ou inélastiquement (avec perte d'énergie). Une partie des électrons est transmise directement. Une seconde partie diffracte sur des plans cristallographiques (hkl) (interaction élastique). Suivant l'information recherchée, le microscope peut fonctionner suivant deux modes: image et diffraction selon le plan dans lequel est placé l'écran ou le film photographique. Enfin la dernière partie du faisceau subit une diffusion inélastique qui permet de déterminer la composition chimique (spectrométrie de perte d'énergie ou fluorescence de rayons X).



Figure 6: (1) canon à électrons à la tension V_0 . (2) Anode à la masse. (3) Système de condenseurs. (4) Objet mince. (5) Objectif. (6) Plan focal de l'objectif avec son diaphragme déterminant l'ouverture α . (7) Plan image de l'objectif, conjugué de l'objet par rapport à l'objectif.(8) Système de lentilles de projection. (9) Ecran fluorescent d'observation ou film photographique. (10) Pompes à vide.

Dans le mode image, un diaphragme est placé dans le plan focal de l'objectif (image de diffraction) de façon à ne laisser passer qu'un seul faisceau. On peut distinguer alors deux cas très différents selon la place de cette ouverture par rapport au faisceau transmis (figure. 7). On obtient une image dite en champ clair (figure. 7 (a)) lorsque le diaphragme objectif laisse passer le faisceau transmis. Les rayons diffusés ou diffractés par certaines parties de

l'échantillon sont stoppés, et ces régions apparaissent donc plus sombres sur un fond clair. Inversement si le diaphragme objectif stoppe le faisceau transmis, mais laisse passer un ou plusieurs faisceaux diffractés, on obtient une image dite en champ sombre (figure. 7 (b)). L'image est formée par les rayons diffractés dans une direction donnée; les zones claires de l'image sont donc représentatives d'une famille de plans cristallins.



Figure 7 : a) image en champ clair formée avec le faisceau transmis. b) image en champ sombre formée avec un faisceau diffracté (hkl).

Dans le mode diffraction, on obtient l'image du diagramme de diffraction des électrons par l'échantillon. Les directions de diffractions du faisceau d'électrons sont données par la loi de Bragg :

$$2d_{hkl}\sin\theta_{hkl} = n\lambda$$

où: h, k et l sont les indices des plans diffractés en position de Bragg, d_{hkl} est la distance interréticulaire entre ces plans (hkl), λ la longueur d'onde des électrons incidents et n l'ordre de diffraction.

Un schéma d'obtention du cliché de diffraction est présenté dans la figure 8. L est la longueur de caméra (distance entre l'objet diffractant et l'écran), et D est la distance sur la plaque photographique entre la tache associée à la réflexion des plans hkl et la tache centrale (tache très intense du cliché de diffraction qui représente le faisceau d'électrons

transmis qui a traversé l'échantillon sans être dévié). Ces deux grandeurs sont liées par la relation suivante :

$$\frac{D}{L} = tg \, 2\theta \approx 2\theta$$

La distance interréticulaire est alors donnée par:

$$d_{hkl}D = L\lambda$$

Où L λ , appelée constante du microscope, ne dépend que du microscope et non de l'échantillon diffractant. Cette constante a été étalonnée, et est égale à 3,41 pour L = 66 cm.



Figure 8 : Schéma d'obtention du cliché de diffraction.

La nature cristallographique de l'échantillon détermine la forme du cliché de diffraction. Dans le cas d'un échantillon monocristallin, on obtient un cliché formé d'un ensemble de taches représentant le réseau réciproque de la face observée. Dans le cas d'un échantillon polycristallin, on obtient un ensemble d'anneaux concentriques fins de diamètre 2D. En effet, dans ce cas, on trouve des plans en position de Bragg quelle que soit leur direction cristallographique, et les taches forment alors un continuum. Dans une situation intermédiaire, où les grains sont de taille comparable au diamètre du faisceau, seuls un petit nombre de grains, monocristallins mais d'orientations différentes, sont imagés et les anneaux ne sont plus continus mais formés d'un ensemble de taches discrètes. Finalement, si l'objet est amorphe, alors il n'y a ni direction privilégiée, ni périodicité de translation, et on obtient un diagramme d'anneaux diffus centrés sur les distances interatomiques moyennes.

I.3.1.2. Préparation des échantillons pour la microscopie par MET

Pour qu'un échantillon soit observable par MET il faut qu'il soit sous forme d'une lame suffisamment mince pour être traversée par les électrons. Pour obtenir des lames minces, de nombreuses méthodes peuvent être utilisées. L'idée générale est de partir d'un échantillon sous forme de couche et de l'amincir. Les méthodes de préparations dépendent de la nature chimique de l'échantillon et de l'information recherchée. Il faut préparer l'échantillon sans modifier sa composition chimique et sa structure cristallographique, ni introduire des défauts ou changer sa morphologie. Aucune méthode de préparation n'est parfaite, il faut adopter celle qui convient le mieux à l'échantillon à étudier. Parmi les méthodes de préparations on peut citer le polissage mécanique suivi d'un amincissement ionique et la méthode de coin clivé.

Dans un certain nombre de cas privilégiés, pour une observation en vue plane par MET (faisceau d'électrons perpendiculaire à la surface de l'échantillon), il suffit de gratter le matériau à examiner, et de le déposer sur un support ultramince adapté. Ce support universel est une grille en cuivre recouverte d'un film très mince de carbone amorphe percé de trous. C'est la méthode que nous avons adoptée pour nos observations en vue plane. En effet, nos multicouches Co/Si ont une tendance naturelle à se décoller du substrat, tendance gênante pour la plupart des mesures mais favorable ici. Les petites écailles récoltées ont donc été déposées sur la grille porte-objet. Cette méthode de préparation a un avantage: elle assure qu'il n'y a pas eu des modifications de la structure et de la morphologie des multicouches Co/Si pendant la préparation.

Pour les observations en section transverse (dans lesquelles les interfaces à étudier sont orientées perpendiculairement au faisceau d'électrons) il est nécessaire d'amincir les échantillons dans la direction perpendiculaire à la direction de croissance des couches. Nous avons tout d'abord utilisé une méthode de polissage mécanique suivi d'un amincissement ionique. Cette méthode consiste à coller la couche mince entre deux lames de silicium puis d'amincir le tout, perpendiculairement au plan des lames. Après un premier amincissement par abrasion mécanique, l'amincissement final est obtenu par bombardement ionique de la lame mince jusqu'à formation d'un trou dans la tranche. Les bords du trou constituent les zones minces observables. Le résultat obtenu sur nos multicouches Co/Si a été décourageant: au lieu de voir les empilements des multicouches nous avions un cliché d'alliage. Or les mesures réalisées par RRX et RMN (cf chapitre III) montraient que nous avions des multicouches bien définies. Ces résultats contradictoires étaient donc dus à la technique d'amincissement utilisée. En fait cette méthode nécessite une étape de recuit de la colle à 130-150 °C auquel s'additionne l'échauffement durant les longues étapes d'amincissement. Ces échauffements dégradaient nos multicouches en favorisant la réaction chimique à l'état solide à l'interface entre le Co et le Si. Cette méthode standard au laboratoire a donc été abandonnée au profit de la méthode du coin clivé.

La méthode du coin clivé est utilisée pour la préparation de multicouches épitaxiées ou déposées sur un substrat monocristallin clivable *[Ayache 07]*. Le clivage est favorisé par l'existence des plans atomiques faiblement liés entre eux. Le clivage s'effectue sur un échantillon dont l'épaisseur est de 70 à 150 μ m. Tout d'abord on clive le substrat (on effectue une première incision de petite longueur sur la surface de couche) à l'aide d'une pointe fine en diamant, afin d'obtenir une tranche de 0.5 mm de largeur. L'opération de clivage est répétée sur la tranche tous les 0.5 mm en alternant les amorces de clivage d'un coté à l'autre afin de conserver deux coins clivés diagonalement opposés. On obtient alors des petits carrés de 0.5 mm de coté. L'échantillon doit présenter au moins une arête parfaite (angle de 90°) qui sera utilisée pour l'observation. L'échantillon obtenu est monté par collage sur le support, l'arête du coin est positionnée à 45 ° par rapport au faisceau d'électron (figure 9).

La méthode du coin clivé présente certains avantages : c'est une technique rapide (environ 45 minutes, pour préparer 4 coins du même échantillon, par rapport à quelques heures pour les techniques classiques), facile et propre. L'avantage primordial de cette technique est qu'elle n'induit pas de diffusion chimique aux interfaces et ne modifie pas la structure de l'échantillon. En revanche, cette technique a quelques inconvénients tels que : la surface (couche/substrat) observable est petite (zone mince observable peu étendue en raison du grand angle du coin). La technique est limitée aux matériaux clivables, et, en cas de mauvais clivage, elle peut produire des dislocations et amas de dislocations.



Figure 9 : Porte-objet pour les coins clivés. L'arête du coin est positionnée à 45 ° par rapport au faisceau d'électron

I.3.2. Résonance Magnétique Nucléaire (RMN)

I.3.2.1. Introduction

La RMN est une technique spectroscopique, elle est maintenant incontournable dans la plupart des domaines scientifiques (physique, chimie, biologie, médecine). Le principe de la RMN est basé sur la levée de dégénérescence des spins nucléaires par effet Zeeman sous l'action d'un champ magnétique statique. Il est alors possible de provoquer des transitions entre les niveaux d'énergie nucléaires adjacents grâce à l'application d'un champ radiofréquence. La fréquence de résonance est reliée au champ magnétique local vu par le noyau qui s'appelle champ hyperfin. Ce champ local n'est pas exactement le champ appliqué mais ce dernier additionné d'une contribution de l'environnement. A partir des spectres de RMN on peut accéder à plusieurs informations magnétiques (moments

magnétiques locaux, anisotropie magnétique atomique, dureté ou perméabilité magnétique locale) et structurales (identifications des environnements locaux, probabilités de configuration et analyse structurale de l'ordre à courte distance), avec l'avantage d'une observation directe des corrélations entre les deux. Dans le cadre de cette thèse nous cherchons essentiellement à obtenir des informations de nature structurale sur nos multicouches Co/Si.

Dans les matériaux ferromagnétiques, deux techniques sont possibles. La première est la RMN sous champ dans laquelle l'aimantation des matériaux est saturée par un champ magnétique extérieur. L'autre est la RMN dite en champ nul, c'est la technique que nous avons utilisée pour caractériser nos multicouches Co/Si. Dans cette technique le champ magnétique vu par le noyau est uniquement le champ magnétique intrinsèque au matériau, aucun champ magnétique statique extérieur n'est appliqué. Ainsi la condition de résonance est obtenue en faisant varier la fréquence du champ radiofréquence. La fréquence de résonance dépend de l'environnement dans lequel se trouve l'atome sondé. Elle permet de déterminer

- la structure cristallographique des couches, le cobalt, par exemple, résonne à des fréquences légèrement différentes selon sa phase cristalline, cfc, hc ou cc.
- l'environnement chimique des atomes magnétiques, ainsi la fréquence de résonance du Co varie linéairement en fonction du nombre d'impuretés substituées au Co parmi ses premiers voisins. Cette interaction est très locale de sorte qu'un spectre d'alliage de Co, par exemple, est constitué essentiellement de 13 raies équidistantes (0 à 12 impuretés parmi les 12 voisins), dont l'aire suit la probabilité d'occurrence de chacun des environnements chimiques locaux (voir Fig. 10). Dans le cas du Si substitué au Co, chaque Si voisin abaisse la fréquence de résonance (217 MHz pour le Co cfc pur) d'environ 15 MHz. Les effets des impuretés plus lointaines se traduisent par un élargissement de ces raies (fluctuation de l'environnement chimique au niveau des seconds et troisièmes voisins) et un déplacement général du spectre lié à la concentration moyenne.

De plus, en RMN en champ nul, le champ radiofréquence vu par les noyaux n'est pas le champ radiofréquence appliqué H₁, mais le champ hyperfin oscillant résultant du mouvement des moments magnétiques locaux sous l'effet de celui-ci. En termes simples le

champ radiofréquence vu par un noyau est un champ B1 local proportionnel à la perméabilité locale, à l'échelle de la longueur d'échange, autour de celui-ci. Cet effet d'augmentation par la perméabilité locale et le couplage hyperfin est réciproque : Le signal RMN est principalement induit par la rotation/oscillation de l'aimantation électronique locale elle-même induite par la précession nucléaire. La RMN en champ nul permet donc une grande sensibilité étant donné que le signal est amplifié par la mobilité des moments magnétiques locaux *[Meny 94]*, ce qui rend possible l'observation d'un signal aussi faible que celui provenant d'une seule couche atomique de Co. Le protocole expérimental comporte non seulement une acquisition des spectres en fonction de la fréquence du champ radiofréquence mais aussi de son amplitude (une sorte de magnétiques locales des échantillons, à l'échelle de la longueur d'échange du système. En particulier il permet de mettre en évidence l'homogénéité ou l'inhomogénéité magnétique des échantillons.



Figure 10 : Spectre simulé d'un profil linéaire d'interface sur 5 plans atomiques. Le centre pur de la couche magnétique de Co n'est pas représenté; il donne une raie unique à 217 MHz. Seul le dernier plan pur, en contact avec un plan mixte, et les plans mélangés sont présents. Les raies individuelles (configurations à 0, 1, 2,.. impuretés) sont volontairement moitié moins large qu'en situation réelle.

I.3.2.2. Analyse des données

La RMN pour les matériaux ferromagnétique [Mény 92; Panissod 96_a; Panissod 96_b; Panissod 00] est une technique assez peu souvent utilisée. La méthodologie d'analyse des données est assez longue et complexe. Un traitement détaillé se trouve dans la thèse de C. Mény [Mény 94] et la thèse de J. P. Jay [Jay 95]. Ici nous présentons comment procéder pour analyser les spectres RMN des multicouches et essentiellement leurs interfaces. Le modèle utilisé dans ce travail est celui correspondant à des interfaces diffuses.

I.3.2.2.1. Analyse des Interfaces

Pour analyser les interfaces de nos multicouches Co/Si, nous procédons en deux étapes : la première est une analyse grossière qui consiste à estimer les intensités des différentes contributions du spectre (partie massive, autour de la fréquence du Co pur et partie interface, dans laquelle les atomes de Co ont des Si parmi leurs premiers voisins). La seconde consiste à simuler les spectres à partir d'un modèle d'interface qui permet de déterminer les probabilités de configurations chimiques à 12 voisins et donc, l'intensité des différentes raies du spectre RMN.

Après avoir établi les spectres RMN d'une série d'échantillons en fonction de l'épaisseur de Co, on les normalise à l'aire totale d'interface contenue dans chacun d'eux, ce qui permet de comparer les intensités des différents spectres pour les différents échantillons. Avec cette normalisation, les contributions provenant de l'interface doivent se superposer si la morphologie des interfaces est indépendante de l'épaisseur de Co déposée. Par contre, lorsqu'aux faibles épaisseurs les interfaces se superposent, on constatera une évolution de la forme du spectre interfacial du fait des variations du gradient de concentration. Les contributions issues de la partie massive des couches, pur Co, doivent elles croître proportionnellement à l'épaisseur. Le simple aspect de l'évolution des spectres en fonction de l'épaisseur de Co déposé donne donc une estimation immédiate du mélange aux interfaces.

Après cette comparaison de la forme des spectres, on compare les intensités totales des spectres entre échantillons d'épaisseur différentes. La variation de l'intensité totale des spectres en fonction de l'épaisseur de Co, permet de vérifier si tous les atomes de Co

présents dans les multicouches sont bien observés dans les spectres RMN. Cette intensité doit, bien sûr, croître linéairement avec l'épaisseur mais elle doit aussi s'extrapoler vers l'origine. Le cas contraire (une ordonnée à l'origine négative) indique la proportion d'atomes non magnétiques (non observés dans les limites des spectres).

L'analyse des interfaces des multicouches se poursuit par la modélisation des spectres d'interface au moyen d'un modèle d'interface. Cette modélisation nous permet d'obtenir un profil de concentration et de champ hyperfin à l'interface.

I.3.2.2.2. Modèle d'interface diffuse

Le modèle utilisé pour l'analyse de nos multicouches est le modèle d'interface diffuse *[Meny 92 ; Panissod 96_b]*, ce modèle est utilisé lorsque l'épaisseur de l'interface est due à une interdiffusion plutôt qu'à une rugosité (fluctuation d'épaisseurs). Ce modèle s'est révélé adapté au cas de notre système multicouche Co/Si. Dans ce modèle l'interface est supposée constituée d'une succession d'alliages bidimensionnels dans lesquels les atomes de Co et de Si sont distribués de manière aléatoire, avec un certain profil de concentration permettant la transition entre le plan atomique à 100% en Co et le plan atomique à 100% en Si. La figure 11 montre la morphologie d'une telle interface. L'utilisation d'une loi



Figure 11 : Représentation schématique d'une interface diffuse sur 3 plans atomiques.

binomiale dans chaque plan mélangé permet de calculer les probabilités d'occurrence de chaque environnement. Un exemple schématique d'une telle interface sur 3 plans atomiques est présenté sur la figure 11 et, sur la figure 10 on a tracé le spectre simulé d'un profil de concentration linéaire sur 5 plans atomiques. Le centre de gravité des contributions au spectre RMN de chaque plan mélangé est proportionnel au champ hyperfin moyen dans ce plan. Il est alors possible d'obtenir un profil de champ hyperfin qui peut être considéré comme une estimation du profil d'aimantation aux interfaces.

Il est important de noter que dans ce modèle les interfaces sont supposées symétriques c'est-à-dire que l'interface Co sur Si est identique à l'interface Si sur Co. En effet, le spectre d'interface que l'on observe est la somme de tous les spectres de chacune des interfaces individuelles, il est donc impossible de distinguer les deux sortes d'interfaces. Il est clair que cela ne représente pas, pour la plupart des systèmes, la réalité physique en raison de la dissymétrie de croissance entre celle d'un matériau A sur un matériau B et la situation réciproque.

I.3.3. Réflectométrie des Rayons X

La diffraction des rayons X est une technique ex-situ non destructive qui permet de donner des informations à plusieurs niveaux (informations qualitatives sur la composition chimique des couches, la nature cristalline, les épaisseurs des couches, leurs morphologies et la rugosité des interfaces), suivant les géométries utilisées.



Figure 12: Principe de Réflectométrie des Rayons X (RRX).

Dans notre cas, ce qui nous intéresse c'est la diffraction aux petits angles (réflectométrie $2\theta_i \leq 10^\circ$), qui nous permet d'étudier les épaisseurs et la rugosité des interfaces des multicouches. Pour les angles θ inférieurs à l'angle critique θ_C , il y a réflexion totale du faisceau incident. Quand $\theta_i > \theta_C$, les rayons X sont partiellement réfléchis aux frontières entre régions de densité électronique différentes. Le principe de Réflectométrie rayon X est montré sur la figure 12.

Dans ce type de spectres de diffraction, on observe des franges de Kiessig, résultant des interférences entre les ondes réfléchies aux interfaces avec les deux milieux semi-infinis externes. Elles sont habituellement utilisées pour mesurer l'épaisseur totale des échantillons après dépôt. La présence de franges de Kiessig est une preuve de la bonne qualité des faces externes de l'échantillon. Lorsque la couche est composée d'une multicouche de deux matériaux (Co et Si dans notre cas), le spectre contient également des pics de super-réseau, "pics de Bragg" dont les positions donnent la super-période, de la multicouche. Dans notre système il s'agit de l'épaisseur de la bicouche Co/Si qui est répétée plusieurs fois. La présence de pics de Bragg met en évidence la présence d'une modulation de densité électronique dans les échantillons (multicouche plutôt qu'alliage), et donne des informations sur la qualité des interfaces. Un exemple typique de spectre RRX d'une multicouche Si(111)[Co/Si]*6 est présenté dans la figure 13.



Figure 13 : Spectre RRX typique d'une multicouche [Si(111)/Co/Si]*6.

Généralement, la périodicité de la distribution des densités électroniques détermine la position des franges, et l'intensité et l'aspect (hauteur, largeur, apparition et disparition) des pics caractérisent la "rugosité" des interfaces, la largeur de la transition entre les deux densités électroniques perpendiculairement au plan des couches. Pour avoir accès à ces informations, il est nécessaire de simuler les spectres expérimentaux. Généralement les modèles d'analyse de cette rugosité ne distinguent pas entre ondulation de l'interface et profil de concentration (interdiffusion à l'échelle atomique). Les paramètres à simuler (épaisseurs, densités électroniques, rugosité) sont ajustés jusqu'à ce que le spectre théorique corresponde au spectre expérimental.

Les mesures de RRX ont été effectuées à l'IPCMS sur un diffractomètre PHILIPS X'Pert-MPD muni d'un tube scellé à anode de Cu ($\lambda_{K\alpha 1}$ =1.5406 Å).

I.3.4. Mesures magnétiques

Généralement, un matériau magnétique (ferromagnétique, ferrimagnétique, antiferromagnétique et paramagnétique) est caractérisé par sa courbe d'aimantation en fonction du champ magnétique appliqué. La forme de cette courbe résulte de la compétition entre l'énergie Zeeman due au champ extérieur et les différentes contributions énergétiques internes du matériau magnétique, énergie d'échange magnétique, énergie d'anisotropie magnétocristalline, et énergie magnétostatique (énergie dipolaire), ...

Dans le cas des matériaux ferromagnétiques ou ferrimagnétiques, la courbe M=f(H)(figure 14) est souvent irréversible (cycle d'hystérésis). Ce cycle se caractérise par : son aimantation à saturation M_s . (la valeur maximale atteinte par l'aimantation) au-delà du champ de saturation H_s , son aimantation rémanente M_r (l'aimantation conservée par le matériau à champ nul après saturation) et son champ coercitif H_c (le champ nécessaire pour annuler l'aimantation rémanente du matériau). Dans l'étude du couplage magnétique le champ à saturation H_s est un paramètre important (cf chapitre IV). En effet, le couplage antiferromagnétique correspond à une saturation difficile de l'échantillon (fort champ à saturation) puisqu'il s'oppose à un alignement parallèle des moments des deux couches. Par contre le couplage ferromagnétique (ou l'absence de couplage) ne s'oppose pas au champ et correspond donc à une saturation facile (faible champ à saturation). Dans la pratique il est difficile de trouver H_s avec précision. Pour cette raison nous avons plutôt calculé l'énergie de saturation E_s qui est donné par l'intégrale de HdM de H=0 au maximum sur les courbes d'aimantation de nos différentes multicouches Co/Si. Dans les cas de cycles ouverts (présence d'hystérésis due à l'anisotropie) nous avons intégré la courbe moyenne entre branche descendante et branche montante du cycle. Ceci ne donne qu'une approximation (surestimée) de l'énergie de saturation en présence d'anisotropie. Les simulations que nous avons faites montrent que, pour des échantillons polycristallins, cette surestimation atteint 20 % quand la saturation est uniquement déterminée par l'anisotropie. En présence de couplage antiferromagnétique cette erreur systématique devient très vite négligeable par rapport aux erreurs de mesure. En cas de doute nous avons eu recours à la simulation complète des cycles.



Figure 14 : Cycle d'hystérésis d'un matériau ferromagnétique. La courbe OB ne représente pas la première aimantation, mais représente la valeur moyenne des deux courbes AB et CB servant à calculer l'énergie de saturation (aire hachurée) quand le cycle est ouvert Hc>0.

Nous avons mesuré les aimantations de nos différents échantillons en fonction du champ appliqué, à l'aide d'un magnétomètre à SQUID (Super Quantum Interference Device Magnetometer) et d'un magnétomètre à gradient de champ alternatif (AGFM). Les principes de ces deux magnétomètres sont donnés brièvement dans la suite.

I.3.4.1. SQUID

Le magnétomètre à SQUID nous a permis d'étudier l'évolution de l'aimantation en fonction de la température pour un champ magnétique appliqué fixé et également d'effectuer des mesures de cycles à différentes températures. Nos mesures ont été effectuées à l'IPCMS sur un magnétomètre à SQUID commercial fabriqué par Quantum Design (modèle MPMS). Cet appareil fonctionne avec un champ magnétique appliqué pouvant varier entre \pm 5 Tesla généré par des bobines supraconductrices, et dans une gamme de températures comprises entre 2 et 400 K avec une sensibilité de 5.10⁻⁹ emu. Le fonctionnement de SQUID est basé sur la détection de la variation de flux à l'aide de l'effet Josephson [Josephson 62]. La description détaillée du fonctionnement d'un magnétomètre à détection SQUID peut être trouvé dans [Goree 76]. Le principe en est donné dans la suite.

Le SQUID peut fonctionner en deux modes : mode DC (champ statique) et mode RSO (Reciprocating Sample Option). En mode DC le flux magnétique est modifié par le déplacement de l'échantillon entre les bobines captrices. L'échantillon à mesurer est introduit dans un tube en plastique (une paille), suspendu à l'extrémité d'une canne. Cet ensemble (échantillon+paille+canne) est introduit dans le compartiment échantillon centré exactement entre les bobines captrices et accroché à une unité de transport qui assure le mouvement de l'échantillon. Afin de détecter des signaux très faibles, nous avons utilisé le mode de mesure RSO. Contrairement au système DC dans lequel l'échantillon bouge pas à pas, le système RSO utilise un dispositif qui fait osciller l'échantillon autour de chaque pas (figure 15). Les bobines captrices forment un gradientmètre composé de trois bobines coaxiales (figure 15 (b)) bobinées en sens alterné, pour éviter l'influence des courants induits par des variations de champs magnétiques extérieurs. Le déplacement de l'échantillon aimanté le long de l'axe des bobines produit une variation de flux magnétique qui induit une tension dans les bobines de détection. La variation de flux est transmise au SQUID (anneau supraconducteur incluant une ou deux jonctions Josephson), qui est couplé d'autre part à un circuit radiofréquence (LC) résonant (avec une fréquence de résonance de quelque MHz). Le SQUID permet de transformer de très faibles variations de flux (bien inférieures au quantum de flux $\phi_0 = h/2e$) en d'importants signaux électriques proportionnels à cette variation de flux, et donc au moment magnétique de l'échantillon.



Figure 15 : Illustration d'une mesure en mode RSO: (a) réponse du SQUID et (b) mouvement de l'échantillon à l'intérieur des bobines captrices.

I.3.4.2. AGFM

Le Magnétomètre à Gradient de Champ Alternatif (AGFM) *[Flanders 88]* permet la mesure des cycles d'hystérésis des échantillons sous forme de couches minces, à la température ambiante et dans un temps relativement court. L'appareil présente une bonne sensibilité qui permet de mesurer des échantillons avec une aimantation totale minimale de l'ordre de 10⁻⁶ emu. Cette sensibilité est principalement limitée par le bruit mécanique ou acoustique. L'appareil utilisé pendant cette thèse est un magnétomètre commercial MicroMag 2900.

Son principe de fonctionnement est le suivant : l'échantillon à mesurer est fixé sur une

sonde en quartz reliée à un transducteur piézo-électrique (figure 16). Il est soumis à un champ magnétique statique produit par un électro-aimant d'intensité variable H (\pm 1.3 T), et à un gradient de champ alternatif dh_x/dx de fréquence ω produit par deux bobines anti-Helmholtz situées dans l'entrefer de l'électro-aimant. Le gradient de champ alternatif est orienté dans la même direction que le champ statique. Le gradient de champ induit une force F agissant sur l'échantillon, force proportionnelle à l'amplitude du gradient et à l'aimantation M de l'échantillon. Cette force provoque la vibration du capillaire de quartz qui entraîne une déformation mécanique du transducteur piézo-électrique et ainsi l'apparition d'une tension de sortie à ses bornes. Cette tension est proportionnelle à la force et donc au moment magnétique de l'échantillon. Afin d'obtenir un signal maximal, on se place à la fréquence de résonance du système composé par la tige en quartz et l'échantillon, qui est comprise entre 100 et 1000 Hz selon la masse de l'échantillon. Le signal est détecté de façon synchrone à la fréquence du gradient de champ à l'origine de la force. Finalement, la courbe d'aimantation M(H) est obtenue en faisant varier l'intensité du champ magnétique statique H.



Figure 16 : Schéma du magnétomètre AGFM

Généralement, le cycle d'hystérésis obtenu présente un signal diamagnétique non négligeable (contribution du tube en plastique ou de la sonde, SQUID ou AGFM, resp., et de substrat de Si). Ce signal a du être soustrait du cycle d'hystérésis en annulant la pente négative observée au-delà de la saturation. Ce signal diamagnétique a limité l'emploi de l'AGFM dont la gamme en champ n'était pas toujours suffisante pour une bonne détermination de la droite diamagnétique.

I.3.5. Mesure de la résistance (méthode de 4 points)

Les mesures de la résistance de nos multicouches ont été effectuées dans le plan par la méthode de 4 points qui permet de s'affranchir des résistances de contact. Dans cette configuration les 4 points de contacts sont équidistants. Deux points sont utilisés pour injecter le courant et deux autres points sont utilisés pour mesurer la tension dans une zone où la densité de courant est homogène. Ce qui nous permet de déduire la résistance de la couche et sa résistivité compte tenu de la géométrie. Le montage expérimental est montré sur la figure 17.



Figure 17 : Principe de mesure de résistivité à 4 points.

I.4. Conclusion

En conclusion, les techniques d'élaboration et de caractérisations des multicouches Co/Si utilisées pendant cette thèse ont été présentées dans ce chapitre. D'autres techniques ont été utilisées occasionnellement pendant ce travail telles que : l'AFM (microscopie à force atomique), la réflectométrie de neutron, la profilométrie, la DRX (diffraction des rayons X) et l' XPS (spectroscopie par absorption X).

Références :

A

[Ayache 07] J. Ayache, L. Beaunier, J. Boumendil, G. Ehrte, D. Laub, Guide de préparation des échantillons pour la microscopie électronique en transmission, *Tome II : Techniques*, Ed. Publications de l'université de Saint-Etienne, Février 2007 ; ce tome est lié et complémentaire avec le site internet interactif http://temsampprep.in2p3.fr

F - **G**

[Flanders 88] P.J. Flanders, J. Appl. Phys. 63, 3940 (1988).

[Goree 76] W.S. Goree and M. Fuller, *Reviews of Geophysics and Space Physics*, 14, 591 (1976).

J

[Jay 95] J. P. Jay, Ph. D. Thesis, Université Louis pasteur, Strasbourg, France 1995.[Josephson 62] B.D. Josephson, *Phys. Lett.* 1, 251 (1962)

M - P

[Mény 94] C. Mény, Ph. D. Thesis, Université Louis pasteur, Strasbourg, France 1994.

[Mény 92] C. Meny, P. Panissod, R. Loloee. Phys . Rev. B. 45, 12269 (1992)

[Panissod 96 a] P.Panissod, C.Mény, J.Ph.Jay, M.Wojcik, and E.Jedryka. J de.Physique. IV, 6, Novembre 1996.

[Panissod 00] P.Panissod, C.Mény, Appl. Magn. Reson. 19, 447 (2000)

[Panissod 96 b] P. Panissod, J.P. Jay, C. Meny, M. Wojcik, E. Jedryka, *Hyperfine Interact*.97-98, 75 (1996)

V

[Vossen 91] J. L. Vossen, W. Kern, *Thin Film Processes II*, Academic Press Inc. Boston, (1991)

Chapitre II

Mécanismes de couplage magnétique intercouche (IEC) dans les multicouches magnétiques

Chapitre II

Mécanismes de couplage magnétique intercouche (IEC) dans les multicouches magnétiques

II.1. Introduction

Une multicouche magnétique typique est formée d'empilements successifs de couches ferromagnétiques (F) et des couches non magnétiques (NM). L'épaisseur individuelle de chaque couche peut varier de quelques plans atomiques à quelques dizaines de plans atomiques. La couche NM est appelé couche séparatrice (couche séparatrice entre deux couches F). Les deux couches F peuvent être couplées par un couplage d'échange indirect (IEC : Interlayer exchange coupling) à travers la couche séparatrice. Elles peuvent être également couplées par couplage dipolaire direct. Ce second couplage ne sera pas considéré en dehors de ce chapitre car il est nul pour deux plans infinis et négligeable pour des couches minces si leur aimantation est planaire, ce qui sera le cas dans notre étude. Au premier ordre du développement de l'énergie de couplage en fonction de l'orientation relative des aimantations des deux couches, celles-ci peuvent se trouver sous deux configurations différentes : (a) les aimantations des couches F sont alignées parallèlement, correspondant à un couplage ferromagnétique (F), (b) les aimantations des couches F sont alignées antiparallèlement, correspondant à un couplage antiferromagnétique (AF). La figure 1 représente ces deux configurations d'aimantations. Si l'énergie de couplage est faible des termes d'ordre supérieur peuvent dominer et donner lieu à des configurations

d'aimantation non colinéaires.

Lorsque les deux couches F sont séparées par une couche NM métallique, le couplage est de type RKKY où les deux couches F sont couplées (approche simple) via les électrons de conduction du métal séparateur. Dans ce cas le couplage est de nature oscillatoire, le signe de l'IEC oscille de F à AF en fonction de l'épaisseur de la couche séparatrice NM (t_{NM}). Mais, dans le cas où la couche séparatrice est une couche non métallique (isolante ou semi-conductrice) on parle de couplage "tunnel" où les deux couches F sont couplées via les électrons traversant la barrière isolante par effet tunnel, dans ce cas le couplage n'est plus de nature oscillatoire mais décroît exponentiellement avec l'épaisseur de la couche séparatrice [*Bruno 95*].



Figure 1 : Schéma illustrant le phénomène (a) du couplage ferromagnétique (F) et (b) du couplage antiferromagnétique (AF) entre deux couches ferromagnétique (F) à travers une couche séparatrice non magnétique (NM). La flèche représente la direction de l'aimantation de la couche F

L'étude de l'IEC dans le système métal ferromagnétique MF/NM/MF n'est pas un sujet nouveau. En 1965 [*Bruyère 65*], un couplage F a été mis en évidence entre deux couches F à travers une couche NM. Le couplage était attribué aux défauts (trous d'épingle) dans la couche non magnétique qui connectaient directement les deux couches F. Avec l'amélioration des techniques de dépôt, un couplage de nature AF a été mis en évidence dans le superréseau Cd/Y en 1986 [*Majkrzak 86*]. Ensuite, en 1986, Grunberg et al. ont montré l'existence du couplage AF dans les multicouches Fe/Cr [*Grunberg 86*]. Depuis, d'autres systèmes ont été étudiés, on peut citer les travaux de Parkin et al. sur les métaux ferromagnétiques de transition Fe, Co et Ni séparés par divers métaux tels que (Ru, Cr, V, Nb, Ta, Rh, Ir, Cu, Re, W, Mo) [Parkin 90; Parkin 91_a]. Dans le cas de couches séparatrices non métalliques, un couplage, souvent antiferromagnétique, entre les deux couches F a été mis en évidence aussi dans des systèmes MF/SC ou MF/I, comme par exemple pour le système Fe/Si/Fe [Toscano 92; Fullerton 92; Mattson 93; Briner 94; Gareev 01; Gareev 02] ou Fe/MgO/Fe [Faure-Vincent 02],....

Le but de ce chapitre est d'exposer brièvement les mécanismes responsables de l'origine physique de l'IEC dans le cas de deux couches F séparées par une couche NM métallique ou non métallique. Nous allons commencer par une description phénoménologique de l'IEC, puis présenter brièvement quelques modèles qui sont les plus parlants physiquement dans les deux cas. Nous décrivons aussi d'autres mécanismes de couplage (trou d'épingle, magnétostatique, biquadratique).

II.2. Description Phénoménologique

Une description phénoménologique du couplage d'échange intercouche, proposée pour expliquer les observations expérimentales, exprime l'énergie du couplage par unité de surface selon :

$$E = -J_1 \cos(\theta) - J_2 \cos^2(\theta) \tag{1}$$

Où θ représente l'angle entre les aimantations de deux couches ferromagnétiques. J_1 et J_2 décrivent l'amplitude et le type du couplage magnétique. Lorsque J_1 domine, le couplage est F (AF) pour les valeurs positives (négatives) de J_1 . Le couplage F favorise un alignement parallèle des aimantations et le couplage AF favorise un alignement antiparallèle. Lorsque J_2 domine et s'il est de signe négatif, le couplage favorise un positionnement des aimantations à 90°. Le premier terme (J_1) est appelé couplage bilinéaire et le deuxième terme (J_2) couplage biquadratique.

II.3. Couplage bilinéaire via les électrons de conduction

Plusieurs modèles ont été développés pour expliquer l'origine physique du couplage

d'échange magnétique indirect entre deux couches ferromagnétiques à travers une couche NM métallique. Dans ce paragraphe, en un premier temps, nous décrivons brièvement le modèle RKKY (Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida). Ce modèle a été adopté [*Yafet 87 ; Bruno 91 ; Bruno 92]*, après la découverte du couplage d'échange dans les multicouches magnétique, pour décrire l'oscillation observée de ce couplage. En un deuxième temps, nous décrivons brièvement le modèle d'interférence quantique [*Bruno 95]*. Dans ce modèle l'IEC est interprété comme un effet quantique de taille qui est décrit en terme de coefficients de réflexion dépendant du spin à l'interface entre la couche non magnétique séparatrice et les couches ferromagnétiques.

II.3.1. Modèle RKKY

Le modèle RKKY (Ruderman et Kittel [Ruderman 38], Kasuya [Kasuya 54], Yosida [Yosida 57]) a été développé initialement pour expliquer le couplage entre les ions magnétiques qui se trouvent dans une matrice métallique non magnétique. Dans une matrice métallique où il y a des ions magnétiques, le gaz des électrons de conduction est polarisé en spin, par échange, au voisinage des impuretés magnétiques et transporte cette polarisation entre impuretés distantes. Par suite les ions magnétiques sont alors couplés par une interaction d'échange indirecte par l'intermédiaire des électrons de conduction. La polarisation en spin des électrons de conduction se présente sous forme d'une fonction oscillante amortie en fonction de leur distance à l'ion polarisant et, de même, le couplage RKKY entre ions magnétiques distants de r se comporte, asymptotiquement comme une sinusoïde d'amplitude décroissante en $1/r^3$.

Après la découverte du couplage d'échange dans les multicouches magnétiques métalliques, le modèle RKKY a immédiatement été suggéré pour expliquer la décroissance oscillatoire de ce couplage en fonction de l'épaisseur de la couche séparatrice (figure 2). Après adaptation au cas de plans magnétiques au lieu d'ions magnétiques ponctuels, il a été montré que ce mécanisme résulte bien en un couplage oscillant décroissant de la forme :

$$J_1 \propto \frac{\sin(2k_F t_{NM})}{t_{NM}^2} \tag{2}$$

La période de $1/2k_F$ de l'oscillation résulte de la singularité de la susceptibilité magnétique des électrons de conduction associée au caractère stationnaire du vecteur d'onde $2k_F$ reliant deux éléments de la surface de Fermi.



Figure 2 : Intensité du couplage d'échange J_{12} , entre deux couches de $Ni_{80}Co_{20}$ à travers une couche de Ru [Parkin 91_b].

Le modèle RKKY a connu un succès, au début des années 90, pour l'explication de l'oscillation du couplage d'échange entre deux couches ferromagnétiques séparées par une couche non magnétique métallique. Il donne de bonnes interprétations dans le cas de multicouches de types Terre Rare/Y ou Lu. Les points essentiels de ce modèle étant une perturbation localisée de la polarisation de spin et une surface de Fermi sphérique du métal séparateur, il était bien adapté au cas des terres rares, comme le modèle original. Dans le cas des métaux de transition ferromagnétiques, la description du couplage magnétique via la polarisation de spin des électrons de conductions a nécessité d'autres adaptations. Dans les métaux de transition, les électrons porteurs des moments magnétiques sont délocalisés; ils participent à la conduction électrique et doivent être considérés dans un modèle de bandes d'énergies, c'est le magnétisme itinérant. Finalement un modèle de type RKKY, mais tenant compte de la structure électronique du métal séparateur, donne une prédiction correcte de la période d'oscillation du couplage *[Bruno 92]*. En particulier, il explique les différentes périodes, observées expérimentalement, en fonction de l'orientation cristallographique de la couche séparatrice, ainsi que, pour certaines orientations, la

présence de plusieurs périodes. Ces raffinements résultent principalement du fait que le détail de la surface de Fermi du séparateur est correctement pris en compte pour déterminer les vecteurs d'onde stationnaires et, contrairement au cas de moments ponctuels, uniquement dans la direction perpendiculaire au plan des couches.

Toutefois ce modèle est incapable de décrire d'une façon correcte l'amplitude et la phase de l'oscillation du couplage magnétique.

II.3.2. Modèle d'interférence Quantique

Une approche différente a été proposée par Edwards et al. *[Edwards 91]* et par d'autres auteurs *[Barnaś 92 ; Erickson 93 ; Slonczewski 93]* pour résoudre le problème de l'IEC. Dans cette approche le couplage est attribué au changement de densité d'état qui résulte du confinement dépendant du spin des électrons dans le puit quantique que forme la couche séparatrice. Ce modèle de puits quantique donne exactement le même comportement d'oscillation décroissante que l'interaction RKKY mais, de plus, il décrit plus correctement l'amplitude et la phase du couplage.

L'existence des différents mécanismes qui prévoient un comportement essentiellement similaire du couplage a conduit à une controverse en ce qui concerne le vrai mécanisme du couplage d'échange intercouche. Bruno [Bruno 93; Bruno 95], et ultérieurement Stiles [Stiles 93] ont résolu ce problème en montrant que les différentes approches correspondaient en réalité à différentes approximations pour le même mécanisme. Bruno a montré que le couplage magnétique entre deux couches ferromagnétiques est effectivement dû aux interférences des ondes électroniques dans la couche séparatrice. L'amplitude et la phase d'oscillation du couplage sont exprimées en termes d'amplitude et de phase de coefficients de réflexion des électrons aux interfaces entre la couche séparatrice et les couches ferromagnétiques. Chaque canal de spin possède des coefficients de réflexion propres aux interfaces. Un traitement détaillé se trouve par exemple dans l'article général de P. Bruno [Bruno 95].

Bruno se place dans le cadre du modèle des électrons libres pour simplifier son calcul.

Considérons deux couches ferromagnétiques (F_A et F_B) qui sont séparées par une couche séparatrice d'épaisseur t_{NM} . Dans ce modèle d'électrons libres l'origine des énergies est prise au bas de la bande majoritaire. La couche séparatrice NM forme une barrière de potentiel pour les électrons qui passent de la couche F_A vers la couche F_B . La densité d'état du système est modifiée par effet quantique de taille, ce qui conduit à un changement de l'énergie totale du système. Les coefficients de réflexion à l'interface entre la couche séparatrice et les couches ferromagnétiques dépendent de l'orientation du spin de l'électron par rapport à l'aimantation de la couche ferromagnétique, comme le montre la figure 3. Donc, l'effet quantique de taille et l'énergie totale du système dépendent des alignements relatifs des aimantations des couches F_A et F_B . Ce qu'est à l'origine physique de l'IEC. Pour une configuration donnée (F ou AF) des couches F_A et F_B la variation de l'épaisseur t_{NM} modifie le caractère, constructif ou destructif, des interférences quantiques ce qui induit respectivement une augmentation ou une diminution de la densité d'état électronique dans la couche séparatrice, et une stabilisation ou une déstabilisation de la configuration par rapport à l'autre. D'où le comportement oscillatoire de l'IEC.



Figure 3 : Les 2 panneaux à droite donnent les structures de bandes typiques dans le modèle des électrons libres du couplage d'échange intercouche. Les panneaux à gauche donnent les puits quantiques de spin des électrons up et down pour une configuration parallèle et antiparallèle des aimantations. Les zones grises désignent les états occupés [Stiles 04]

Considérons un électron de vecteur d'onde $\vec{K} = \vec{K}_{//} + \vec{K}_Z$ où \vec{K}_Z est la composante normale au plan des couches. La présence d'interférences quantiques se traduit par une modification ΔE de l'énergie totale *E* du système tricouche :

$$\Delta E = \int_{-\infty}^{\varepsilon_F} (\varepsilon - \varepsilon_F) \Delta n(\varepsilon) d\varepsilon$$
(3)

La constante J_1 de l'IEC est donnée par $-2J_1 = E_F - E_{AF}$, où F et AF correspondent respectivement aux configurations parallèle et antiparallèle.

$$E_{F} - E_{AF} = \int_{-\infty}^{\varepsilon_{F}} (\varepsilon - \varepsilon_{F}) [\Delta n_{F}(\varepsilon) - \Delta n_{AF}(\varepsilon)] d\varepsilon$$
(4)

Dans le cas (plutôt général) de confinement faible on obtient :

$$E_{F} - E_{AF} = -\frac{1}{\pi^{3}} \operatorname{Im}\left[\int dK_{//}^{2} \int_{-\infty}^{\varepsilon_{F}} d\varepsilon \Delta r_{A} \Delta r_{B} e^{2iK_{Z}D}\right]$$
(5)

Où $\Delta r_{A(B)} = \frac{r_{A(B)}^{\uparrow} - r_{A(B)}^{\downarrow}}{2}$ représente l'asymétrie de spin du coefficient de réflexion pour chaque interface.

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

$$J_{1} = \frac{1}{4\pi^{2}} \frac{\hbar^{2} k_{F}^{2}}{mD^{2}} \operatorname{Im} \left[\Delta r^{2} e^{2ik_{F}D} \right]$$
(6)

Où $k_F = \sqrt{\frac{2m_{eff}(E_F - U)}{\hbar^2}}$ est le vecteur d'onde au niveau de Fermi dans la couche séparatrice métallique, m_{eff} est la masse effective de l'électron, U ($E_F > U$, une couche séparatrice métallique) est le potentiel de la couche séparatrice et \hbar est la constante de Planck.

Jusqu'à maintenant le terme J_1 de la constante de couplage est donné à température nulle. Si on prend en compte la température avec l'adoucissement de la distribution de Fermi-Dirac, J_1 devient à température finie T [*Bruno 95*] :

$$J_{1} = \frac{1}{4\pi^{2}} \frac{\hbar^{2} k_{F}^{2}}{mD^{2}} \operatorname{Im} \left[\Delta r^{2} e^{2iK_{F}D} \right] \times \frac{2\pi k_{B} TDm / \left(\hbar^{2} k_{F} \right)}{\sinh \left[2\pi k_{B} TDm / \left(\hbar^{2} k_{F} \right) \right]}$$
(7)

En résumé, dans le cas d'une couche séparatrice métallique l'IEC a un comportement oscillatoire en fonction de l'épaisseur de la couche séparatrice comme le montre l'expression de la constante de couplage J_1 . Enfin, en fonction de la température, le couplage décroît avec l'augmentation de la température (la fonction $x/\sinh(x)$ décroît en fonction de x).

II.4. Couplage magnétique bilinéaire par effet tunnel

Théoriquement plusieurs modèles types ont été développés pour expliquer le couplage d'échange entre deux couches ferromagnétiques séparées par un isolant. Dans ce paragraphe, nous discuterons brièvement deux modèles de couplage d'échange par effet tunnel qui font l'objet d'une attention particulière. Ces deux modèles sont : le modèle de Slonczewski et le modèle d'interférence quantique de P. Bruno.

II.4.1. Modèle de Slonczewski

Ce modèle considère le courant tunnel de spin au travers de la barrière de potentiel. Le couplage est associé au couple qui s'exerce entre l'aimantation des couches F dû au courant bidirectionnel de spin, polarisé dans la couche F d'origine et arrivant dans l'autre. Ce couple est décrit en terme de "courant de probabilité de renversement de spin" dont le sens s'inverse selon que les électrons ont, en majorité, renversé leur spin en traversant la barrière ou non. Le calcul est effectué par résolution de l'équation de Schrödinger pour une fonction d'onde plane d'électron libre [*Slonczewski 89*]. Dans la limite où l'épaisseur D de la barrière est grande devant la constante de décroissance $1/\kappa$ de la fonction d'onde exponentielle l'expression du couplage d'échange entre deux couches ferromagnétiques à travers une barrière isolante est donnée par :

$$J_{1} = \frac{(U_{0} - E_{F})}{8\pi^{2}D^{2}} \frac{8\kappa^{2}(\kappa^{2} - k_{\uparrow}k_{\downarrow})(k_{\uparrow} - k_{\downarrow})^{2}(k_{\uparrow} + k_{\downarrow})}{(\kappa^{2} + k_{\uparrow}^{2})(\kappa^{2} + k_{\downarrow}^{2})^{2}}e^{-2\kappa D}$$
(8)

Où $(U_0 - E_F)$ est la hauteur de la barrière et k_{\uparrow} et k_{\downarrow} sont respectivement les vecteurs

d'onde de spin up et de spin down. Dans cette expression du couplage d'échange, on peut voir la forte dépendance en $\frac{e^{\alpha x D}}{D^2}$ de l'intensité du couplage en fonction de l'épaisseur d'isolant. Ce comportement donne une signature nette du couplage d'échange par effet tunnel. Le terme ($\kappa^2 - k_{\uparrow}k_{\downarrow}$) traduit le "courant de probabilité de renversement de spin". Il détermine, selon les matériaux utilisés, l'amplitude et le signe du couplage : négatif, il correspond à un couplage antiferromagnétique, positif il correspond à un couplage

II.4.2. Modèle d'interférence quantique

Le modèle d'interférence quantique de P. Bruno permet de traiter de façon unique le cas de la couche séparatrice métallique et de la couche séparatrice isolante, en considérant soit une fonction d'onde de Bloch (métal) soit une fonction d'onde évanescente (isolant). Bruno a introduit la notion de surface de Fermi complexe, ce qui lui permet de généraliser le modèle de puit quantique aux isolants et aux semi-conducteurs. Puisque les ondes de Bloch ou évanescentes contribuent de façon analogue au couplage, l'introduction de la notion de surface de Fermi complexe apparaît naturellement. Ce concept autorise les valeurs complexes de K_z ce qui permet de passer du cas métallique au cas isolant par simple remplacement de K_F (réel) dans l'expression de la constante du couplage J_1 par $i\kappa_F$ (imaginaire). L'expression de la constante de couplage dans le cas d'une barrière tunnel devient alors :

$$J_{1} = \frac{1}{4\pi^{2}} \frac{\hbar^{2} \kappa_{F}^{2}}{mD^{2}} \operatorname{Im} \left[\Delta r^{2} e^{-2\kappa_{F}D} \right] \times \frac{2\pi K_{B} TDm / \left(\hbar^{2} \kappa_{F} \right)}{\sin \left[2\pi K_{B} TDm / \left(\hbar^{2} \kappa_{F} \right) \right]}$$
(9)

$$J_{1} = J_{1(T=0K)} \times \frac{2\pi k_{B} TDm / (\hbar^{2} \kappa_{F})}{\sin[2\pi k_{B} TDm / (\hbar^{2} \kappa_{F})]}$$
(10)

Avec $(E_F < U$ barrière tunnel). A T=0K, la constante de couplage $J_{1(T=0K)} = \frac{1}{4\pi^2} \frac{\hbar^2 \kappa_F^2}{mD^2} \operatorname{Im} \left[\Delta r^2 e^{-2\kappa_F D} \right]$ se réduit à la formule de Slonszewski. Le signe du couplage est déterminé par l'argument de $\Delta r^2 = \alpha(\kappa_F^2 - k_F^{\uparrow}k_F^{\downarrow})$: le couplage est antiferromagnétique (respectivement ferromagnétique) si $\kappa_F^2 < k_F^{\uparrow}k_F^{\downarrow}$ (respectivement $\kappa_F^2 > k_F^{\uparrow}k_F^{\downarrow}$) avec $k_F^{\uparrow}(k_F^{\downarrow})$ le vecteur d'onde au niveau de Fermi pour le spin majoritaire (minoritaire) pour les électrons dans les couches F. Donc, comme le montre l'expression du couplage, l'IEC n'a pas un comportement oscillatoire dans le cas d'une barrière tunnel mais exponentiellement décroissant en fonction de l'épaisseur de la couche séparatrice. L'expression (10) montre également que, contrairement au cas du séparateur métallique, le couplage doit croître en fonction de la température: la fonction $x/\sin(x)$ croît en fonction de *x*. L'explication est simple, du fait que la contribution des électrons au couplage tunnel dépend exponentiellement de leur énergie, lorsque la température augmente, la contribution des électrons au dessous du niveau de fermi (dans une gamme d'énergie de l'ordre de k_BT) diminue au profit d'une contribution au dessus du niveau de fermi, ce qui a pour effet d'augmenter le couplage.

II.5. Autres mécanismes de couplage magnétique intercouche

Le comportement des multicouches magnétiques peut être contrôlé par d'autres mécanismes en dehors du couplage bilinéaire. Parmi ces mécanismes, le couplage biquadratique (ordre supérieur du couplage d'échange), couplage par trou d'épingle et le couplage dipolaire (magnétostatique). Dans la suite nous allons décrire brièvement ces trois mécanismes de couplage magnétique.

II.5.1. Couplage magnétique biquadratique

Outre les deux cas de couplage colinéaire (parallèle ou antiparallèle) des configurations d'aimantation des deux couches F résultant du terme bilinéaire de l'énergie de couplage $(-J_1\cos(\theta))$, un autre type de couplage a été mis en évidence dans le système Fe/Cr/Fe [Ruhrig 91] et d'autre systèmes [Heinrich 91 ; Heinrich 93 ; Farle 98] où l'on a observé un alignement perpendiculaire des aimantations. Selon l'expression phénoménologique (1) présentée au début de ce chapitre une telle configuration est possible lorsque le terme d'ordre 2 $(-J_2\cos^2(\theta))$ domine. On l'appel couplage biquadratique ou couplage à 90°. Du

point de vue fondamental un tel terme peut exister puisque le terme bilinéaire n'est que le premier ordre du développement de l'énergie de couplage dont on ignore la forme exacte en fonction de l'angle entre les deux aimantations. Cependant tous les calculs théoriques ont montré qu'intrinsèquement le terme J_2 est négligeable devant J_1 . Les forts couplages biquadratiques observés ont donc une origine extrinsèque. Slonczewski *[Slonczewski 91 ; Slonczewski 95]*, a montré, parmi d'autres, que le désordre aux interfaces (fluctuation d'épaisseur, contact direct, etc) entraîne des fluctuations du couplage bilinéaire intrinsèque. Lorsque ces fluctuations, par exemple due aux fluctuations d'épaisseur NM, impliquent un changement du signe du couplage, les couches ferromagnétiques seront frustrées. Si les fluctuations sont à courte distance latérale, les directions d'aimantation des couches adoptent une orientation relative moyenne entre parallèle et antiparallèle. En revanche, si les fluctuations sont à longue distance latérale les couches auront la possibilité de résoudre la frustration en développant des parois entre domaines couplés parallèlement et antiparallèlement. Le couplage biquadratique n'est donc qu'un couplage effectif dû aux défauts du système.



Figure 4 : Couplage biquadratique et variations de l'épaisseur. L'épaisseur de la couche séparatrice varie périodiquement entre n et n + 1, avec un couplage AF pour une épaisseur n et un couplage F pour une épaisseur n + 1 [Stiles 04].

Considérons un modèle simple comme le montre la figure 4, dans laquelle la couche séparatrice est formée de terrasses parallèles de longueur L avec une épaisseur alternative et des amplitudes de couplage J_1^n et J_1^{n+1} . Dans ce modèle l'expression du couplage
d'échange J_2 est donnée par :

$$J_2 \approx -\frac{(\Delta J_1)^2 L}{A_{ex}} \tag{11}$$

Avec $\Delta J_1 = J^n - J^{n+1}$ et A_{ex} est la constante de couplage d'échange (énergie d'échange par unité de longueur) *intra*-couche du matériau ferromagnétique.

Comme on le voit ce terme est toujours négatif et correspond à des orientations orthogonales. Il est évidemment dominant pour les épaisseurs où le terme bilinéaire s'annule *en moyenne*. J₂ est d'autant plus faible que A_{ex} est grand ce qui traduit le fait que le matériau ferromagnétique moyenne le couplage bilinéaire contradictoire sur des distances latérales d'autant plus grandes que A_{ex} est grand. Il faut noter que si L/A_{ex} devient très grand le système adoptera plutôt, comme indiqué plus haut, une configuration en domaines parallèles et antiparallèles de taille latérale ~ L.

L'expression (11) est très simple, c'est une description qualitative d'un système plus réel. En réalité, les terrasses fluctuent en taille, en forme et en épaisseur et il faut introduire un terme ΔJ_1 effectif.

II.5.2. Couplage ferromagnétique par trous d'épingle

La croissance d'une multicouche ne se passe pas toujours d'une façon idéale, plan par plan, et dans beaucoup de cas on n'obtient ni épitaxie ni même monocristallinité des couches. En conséquence, la multicouche obtenue présente de défauts de structure, et par suite des discontinuités de certains couches. Dans le cas où la multicouche est constituée de couches F séparées par des couches NM, la discontinuité dans la couche NM s'appelle trou d'épingle (« pinholes » en anglais). Du fait du contact direct entre les couches F (figure 5) et si la densité des trous est importante il en résulte un couplage d'échange direct ferromagnétique entre couches F. On rencontre cette situation généralement dans des multicouches déposées par pulvérisation cathodique pour des épaisseurs de couches séparatrices inférieures à environ 2 nm, très dépendante, évidemment, des matériaux déposés et des conditions de croissance.



Figure 5 : Deux couches ferromagnétique (F) sont séparées par une couche non magnétique (NM), les deux couches F sont couplées ferromagnétiquement par trou d'épingle (en raison du contact et donc de l'échange direct entre couches F).

II.5.3. Couplage magnétique de type magnétostatique

Un plan magnétique infini et infiniment mince n'engendre pas de champ de fuite. Il n'y a donc pas de couplage magnétostatique (dipolaire) entre tels plans. Lorsque les couches ont une taille latérale et une épaisseur finie il existe un champ de fuite pouvant coupler deux couches. Ce couplage est de type ferromagnétique si la direction d'aimantation est perpendiculaire au plan, antiferromagnétique si elle est planaire. Son intensité dépend du rapport d'aspect épaisseur/taille latérale et il peut être ignoré pour des couches d'épaisseur nanométrique et de taille latérale millimétrique. En revanche si les couches ne sont pas planes les champs de fuites autour des rugosités de surface peuvent être considérables.

Un couplage magnétique par peau d'orange ou couplage de Néel est un couplage magnétostatique dû à la rugosité des couches. On le rencontre souvent dans les multicouches de qualité cristallographie moyenne. Souvent, la rugosité des interfaces est corrélée d'une interface à l'autre par le fait même que l'épaisseur des couches est uniforme (figure 6).

L'accumulation des (pseudo) charges magnétostatiques qui apparaissent aux interfaces pour chacune des couches F en raison de l'irrégularité du profil d'interface, donne lieu à un couplage dipolaire parallèle dans le cas où les aimantations de deux couches F sont planaires et si les rugosités sont corrélées. Comme le montre la figure 6 (panneaux du milieu et de droite), les charges correspondantes des deux couches s'attirent si celles-ci ont des aimantations parallèles alors qu'elles se repoussent si les aimantations sont antiparallèles. La configuration parallèle est donc la plus stable. Le cas, hypothétique, où les rugosités corrélées seraient en opposition de phase (bosse contre bosse) donnerait lieu à un couplage antiparallèle.

Dans le cas simple d'un profil de type sinusoïdal de la rugosité d'amplitude h et de période L, on peut montrer dans le modèle de Néel que le couplage dipolaire résultant entre couches F à travers une couche NM d'épaisseur D s'écrit [*Néel* 62] :

$$J_1 = \frac{\pi^2}{\sqrt{2}} \mu_0 M_s^2 \frac{h^2}{L} e^{-2\pi\sqrt{2}D/L}$$
(12)

Où M_S est l'aimantation à saturation des couches.



Figure 6 : Couplage magnétique par peau d'orange pour une rugosité corrélée [Stiles 04]. Le panneau de gauche montre les lignes du champ dipolaire créé par les charges magnétostatiques dues à la rugosité de surface d'une seule couche F. Le panneau de milieu représente le cas où les aimantations de deux couches F sont parallèles: des charges de signes opposés apparaissent sur les interfaces en regard ce qui abaisse l'énergie dipolaire par rapport au cas de deux couches éloignées. Le panneau de droite présente le cas où les aimantations de deux couches F sont antiparallèles pour lequel des charges de même signe apparaissent symétriquement sur les interfaces en regard ce qui élève l'énergie dipolaire par rapport au cas de deux couches éloignées. La configuration parallèle est donc la plus stable.

Dans le cas où les rugosités sont décorrélées, le couplage par peau d'orange devient nul, *en moyenne*, mais, de même que dans le cas du couplage d'échange bilinéaire, ses fluctuations peuvent donner naissance à un couplage biquadratique de nature magnétostatique [Demokritov 94].

Prenons un cas simple de rugosité décorrélée (une couche de rugosité sinusoïdale et une couche plate, figure 7). Dans ce cas les champs de fuites opposés de la couche rugueuse affectent de manière égale, mais opposée, les zones adjacentes de la couche plate. Le couplage dipolaire colinéaire est donc nul mais la couche plate résout la frustration liée aux champs contradictoires en orientant son aimantation perpendiculairement à celle de la couche rugueuse. Dans ce modèle simple, l'expression de couplage biquadratique est donnée par [*Demokritov 94 ; Demokritov 98 ; Stiles 04*] :

$$J_{2} \approx -\mu_{0} M_{S}^{4} \frac{h^{2} L}{A_{ex}} e^{-4\pi D/L}$$
(13)

Où A_{ex} est la constante d'échange ferromagnétique du matériau ferromagnétique. Les mêmes remarques s'appliquent ici que dans le cas de l'échange bilinéaire fluctuant.



Figure 7 : Couplage biquadratique pour une rugosité décorrélée. Les lignes de champ dipolaire opposées de la couche F rugueuse du bas résultent en un couplage de l'aimantation de cette couche perpendiculaire à celle de la couche F plate du haut [Stiles 04].

II.6. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons passé brièvement en revue les mécanismes de couplage d'échange magnétique intercouche, dans les multicouches magnétiques. Parmi les quelques modèles présentés le modèle de P. Bruno, traitant de manière unifiée les cas où la couche séparatrice NM est une couche métallique ou isolante, fera l'objet d'une attention particulière dans la mesure où, comme nous le verrons, les résultats de notre étude sur le couplage au travers du silicium semble relever d'une situation intermédiaire. Pour plus de détails en ce qui concerne ce sujet, très vaste, le lecteur pourra regarder les articles généraux ou de revue, dans ce domaine, comme *[Yafet 94 ; Hathaway 94 ; Slonczewski 95 ; Bruno 95 ; Demokritov 98 ; Bruno 99 ; Stiles 99 ; Burgler 01 ; Stiles 04]*.

Références :

B

- [Bruyère 65] J. C. Bruyère, G. Clerc, O. Massenet, D. Paccard, R. Montmory, L. Néel, J. Valin, A. Yelon, *IEEE Trans. Magn.* 1, 174 (1965)
- [Bruno 91] P. Bruno, C. Chappert, Phys. Rev. Lett. 67, 1602 (1991); 67, 2592(E) (1991)
- [Bruno 92] P. Bruno, C. Chappert, Phys. Rev. B 46, 261 (1992)
- [Barnaś 92] J. Barnas, J. Magn. Magn. Mat. 111, L215 (1992)
- [Bruno 93] P. Bruno, J. Magn. Magn. Mat. 121, 248 (1993)
- [Briner 94] B. Briner, M. Landolt, Phys. Rev. Lett. 73, 340, (1994)
- [Bruno 95] P. Bruno, Phys. Rev. B 52, 411 (1995)
- [Bruno 99] P. Bruno, J. Phys.-Condes. Matter 11, 9403 (1999)
- [Burgler 01] D. E. Burgler, P. Grunberg, S. O. Demokritov, M. T. Johnson, in *Handbook of Magnetic*, Vol. 13, ed. K. H. J. Buschow (2001)

D - **E** - **F**

- [Demokritov 94] S. Demokritov, E. Tsymbal, P. Grunberg, W. Zim, I. K. Schuller, *Phys. Rev. B* 49, 720 (1994)
- [Demokritov 98] O. Demokritov, J. Phys. D 31, 925 (1998)
- [Edwards 91] D. M. Edwards, J. Mathon, R. B. Muniz, M. S. Phan, Phys. Rev. Lett. 67, 493 (1991)
- [Erickson 93] R. P. Erickson, L. B. Hathaway, J. R. Cullen, *Phys. Rev. B* 47, 2626 (1993)
- [Fulletron 92] Eric E. Fullerton, J. E. Mattson, S. R. Lee, C. H. Sowers, Y. Y. Huang, G. Felcher, S. D. Bader, F. T. Parker, J. Magn. Magn. Mat. 117, L301, (1992)
- [Farle 98] M. Farle, Rep. Prog. Phys. 61, 755 (1998)
- [Faure-Vincent 02] J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehen, F. Montaigne, A. Schuhl, *Phys. Rev. Lett.* 89, 107206 (2002)

G - H

[Grunberg 86] P. Grunberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky, H. Sowers, *Phys. Rev. Lett.* 57, 2442 (1986)

- [Gareev 01] R. R. Gareev, D. E. Bürgler, M. Buchmeier, D. Olligs, R. Schreiber, P. Grünberg, *Phys. Rev. Lett.* 87, 157202 (2001)
- [Garreev 02] R. R. Gareev, D. E. Bürgler, M. Buchmeier, R. Schreiber, P. Grünberg, J. Mag. Magn. Matter. 240, 235 (2002)
- [Heinrich 91] B. Heinrich, J. F. Cochran, M. Kowalewski, J. Kirschner, Z. Celinski, A. S. Arrott, K. Myrtle, *Phys. Rev. B* 44, 9348 (1991)

[Heinrich 93] B. Heinrich, J. F. Cochran, Adv. Phys. 42, 523 (1993)

[Hathaway 94] K. B. Hathaway, A. Fert, P. Bruno, D. T. Pierce, J. Unguirs, R. J. Celotta, S. S. P. Parkin, Chapter 2, in *Ultrathin Magnetic Structures II*, edited by B. Heinrich and J. A. C. Bland (Springer-Verlag, Berlin, 1994) P. 45.

K

[Kasuya 54] Kasuya ; T. 1956, Prog. Theor. Phys. Jpn. 16, 45 (1954)

M - N

- [Majkrzak 86] C. F. Majkrzak, J. W. Cable, J. Kwo, M. Hong, D. B. McWahn, Y. Yafet, J. V. Waszczak, C. Vettier, *Phys. Rev. Lett.* 56, 2700 (1986)
- [Mattson 93] J. E. Mattson, Sudha Kumar, Eric E. Fullerton, S. R. Lee, C. H. Sowers, M. Grimsditch, S. D. Bader, *Phys. Rev. Lett.* 71, 185, (1993)
- [Néel 62] L. Néel, C. R. Hebd, Seances Acad. Sci. 255, 1545 (1962); 255, 1676 (1962)

Р

[Parkin 90] S. S. P. Parkin, N. More, K. P. Roche, *Phys. Rev. Lett.* 64, 2304 (1990)
[Parkin 91_a] S. S. P. Parkin, *Phys. Rev. Lett.* 67, 3598 (1991)
[Parkin 91_b] S. S. P. Parkin, D. Mauri, *Phys. Rev. B* 44, 7131 (1991)

R - S - T

[Ruderman 38] M. A. Ruderman, C. Kittel, Phys. Rev. 96, 99 (1938)

[Ruhrig 91] M. Ruhrig, R. Schafer, A. Hubert, R. Mosler, J. A. Wolf, S. Demokritov, P. Grunberg, *Phys. Status Solidi A* 125, 635 (1991)

[Slonczewski 91] J. C. Slonczewski, Phys. Rev. Lett. 67, 3172 (1991)

[Slonczewski 93] J. C. Slonczewski, J. Magn. Magn. Mat. 126, 374 (1993)

[Stiles 93] M. D. Stiles, Phys. Rev. B 48, 7238 (1993)

[Slonczewski 95] J. C. Slonczewski, J. Magn. Magn. Mater. 150, 13 (1995)

- [Stiles 99] M. D. Stiles, J. Magn. Magn. Mat. 200, 322 (1999); M. D. Stiles, in Nanomagnetism: Ultrathin Films, Multilayer, and Nanostructures (Contemporary Concepts of Condensed Matter Science, Vol 1) eds. D. Mills, J. A. C. Bland, New York: Elsevier, 2006
- [Stiles 04] M. D. Stiles, in *Ultrathin Magnetic Structures III*, ed. by B. Heinrich, J. A. C. Bland (Springer-Verlag, Berlin, 2004)
- [Toscano 92] S. Toscano, B. Briner, H. Hopster, M. Landolt, J. Mag. Mag. Mat. 114, L6 (1992)

Y

[Yosida 57] K. Yosida, Phys. Rev. 106, 893 (1957)

[Yafet 87] Y. Yafet, Phys. Rev. B 36, 3948 (1987)

[Yafet 94] Y. Yafet, in *Magnetic Multilayers*, ed. L. H. Bennett and R. E. Watson (World Scientific, Singapore 1994), p. 19.

Chapitre III

Etude des propriétés structurales

Chapitre III

Etude Structurale des multicouches Co/Si déposées à 90 K

III.1. Introduction

Le problème majeur du système MF/SC, comme nous l'avons évoqué au début de cette thèse, est la présence, en général, d'une forte interdiffusion à l'interface. Dans le cas des multicouches Co/Si cette interdiffusion s'étend sur 5 à 10 nm *[Fallon 00]* lorsque les échantillons sont préparés à température ambiante. Le mélange a deux origines, balistique *[Pet Ford-Long 87]* et chimique (réaction exothermique à l'état solide *[Yeob Shim 96]*). Par suite les propriétés physiques des multicouches Co/Si seront beaucoup influencées par ce mélange à l'interface *[Grundy 00]*. Afin de limiter la mobilité atomique au moment de dépôt et la diffusion à l'interface, et ainsi obtenir des interfaces aussi abruptes que possible, la méthode la plus immédiate consiste à effectuer le dépôt à basse température.

Les questions qui se sont posées au début de ce travail étaient donc les suivantes :

Est ce que le dépôt des multicouches Co/Si à basse température peut réduire le mélange à l'interface ?

Quelle est la qualité cristallographique de telles couches ?

Pour répondre à ces questions toutes les multicouches Co/Si étudiées dans cette thèse ont donc été déposés par pulvérisation cathodique à 90 ± 5 K. Les trois types de séries de multicouches Co/Si (cf chapitre I) ont ensuite été caractérisées par Microscopie Electronique à Transmission (MET), Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) et, plus systématiquement, par Réflectométrie des Rayons X (RRX), dans le but d'étudier la structure cristalline et la qualité des interfaces Co/Si.

Dans ce chapitre, nous présentons tout d'abord les études structurales effectuées par MET pour les multicouches Co/Si déposées sur Si(111) et sur verre. Dans la deuxième partie nous présentons les résultats de l'étude réalisée par la RMN. Puis nous présentons les résultats obtenus à l'aide de RRX pour les différents types de séries. Ce chapitre sera terminé par une discussion et une conclusion générale.

III.2. Microscopie électronique à transmission (MET)

III.2.1. Multicouches Co/Si déposées sur des substrats de Si(111)

Pour d'étudier la structure de couches, la taille des grains et la qualité des interfaces, nous avons effectués des observations en MET sur nos multicouches Co/Si. L'étude structurale a été réalisée à l'aide de l'observation en vue plane. Pour cette mesure, aucune préparation d'amincissement des échantillons n'a été nécessaire. En effet, les multicouches Co/Si ont une tendance naturelle à se décoller du substrat. De petites parties décollées ont donc été déposées sur la grille porte-échantillon en cuivre. De ce fait nous étions assurés qu'il n'y avait pas eu de modification de la structure et de morphologie des multicouches Co/Si, doute habituel lorsqu'un échantillon a subit une procédure d'amincissement.

Un cliché de diffraction d'une multicouche Co/Si déposée sur un substrat de Si(111) est montré sur la figure 1. Normalement, lorsqu'on dépose le Si à basse température on obtient un silicium amorphe *[Voyles 01 ; Fejfar 03]*. La surprise, est comme le montre la figure 1, que nous avons obtenus des multicouches très bien cristallisées quoique polycristallines. Le cliché présente des spots très fins répartis sur des anneaux bien séparés et non les anneaux flous d'une structure amorphe. Les distances interplanaires d_{hkl} correspondant à ces anneaux de diffraction ont été calculées à l'aide de loi de Bragg pour la diffraction électronique.

Nous avons ainsi pu indexer la plupart des anneaux qui correspondent au Si hc et Si cfc

[*Yeh 92 ; Natl 76*] et au Co hc et Co cfc [*Hofer 47 ; Natl 66*]. Un exemple de cette identification est montré sur la figure 1, dans laquelle on a indexé les anneaux qui correspondent uniquement au Si (hc et cfc) ou au Co (hc et cfc). Les anneaux non marqués correspondent à des distances identiques dans le Si et/ou le Co.



Figure 1 : Cliché de diffraction typique en vue plane d'une multicouche Si(111)[Co/Si] déposée à 90 K par pulvérisation cathodique. La multicouche est très bien cristallisée avec une structure polycristalline. Les anneaux correspondent au Si hc et/ou cfc et au Co hc et/ou cfc.

Pour avoir des informations sur la taille latérale des grains dans le plan, nous avons réalisé une image en champ sombre. Ces images ont été prises en sélectionnant le faisceau diffracté correspondant à une des taches la plus intense. Le résultat est surprenant. La taille des grains est très grande, comme le montre la figure 2. Elle est de l'ordre de 300 nm et plus, ce qui n'est pas habituel pour cette température de dépôt. Le fait d'obtenir des grains cristallins de taille importante laisse supposer que, même à cette basse température de dépôt, la mobilité atomique est encore non négligeable, au moins sur la surface de

croissance. De ce fait, si nous pouvions être satisfaits de la qualité cristalline des couches, nous pouvions craindre que l'objectif principal, la limitation de l'interdiffusion aux interfaces, n'ait pas été atteint.



Figure 2 : *Champ sombre typique d'une multicouche Si(111)[Co/Si]. La taille de grains moyenne est de l'ordre de 300 nm.*

Dans le cas d'observation en vue plane par MET des multicouches, le faisceau d'électrons du microscope est perpendiculaire à la surface de l'échantillon. Cela nous ne permet pas d'observer les empilements Co/Si, et ne donne pas des informations sur la qualité des interfaces. Pour avoir accès à ces informations nous avons réalisé une image en section transverse. Dans ce cas les interfaces à étudier sont orientées perpendiculairement au faisceau d'électrons du microscope.

Pour les observations en section transverse nous avons également pu éviter la préparation de l'échantillon par les méthodes classiques (polissage mécanique, amincissement ionique) pouvant induire, par échauffement, des diffusions aux interfaces Co/Si et des changements de la structure cristallographie des échantillons. Pour cela nous avons utilisé la méthode de coins clivés [Ayache 07] pour préparer l'échantillon (cf

chapitre I).

L'observation en section transverse d'une multicouche Si(111)[Co3nm/Si2.3nm]*6 est présentée sur la figure 3. Le premier constat sur cette image est l'absence d'ondulation. Les interfaces sont plates et bien définies entre les différentes couches. Une nette différence de contraste entre le Co et le Si est observée. Toutefois on peut distinguer trois régions différentes. Les bandes claires correspondent au Si, les bandes noires au Co, mais on observe aussi entre celles-ci une bande grise correspondant au mélange entre Co et Si.



Figure. 3 : Section transverse d'une multicouche Si(111)[Co3nm/Si2.3nm]*6. Nous observons 3 régions différentes (blanche, noire et grise qui correspond respectivement au Si pur, au Co pur et aux interfaces Co/Si) ainsi qu'une interface très plate entre les différentes couches.

L'épaisseur de chaque région a été évaluée, comme le montre la figure 3. La région noire (couche de Co) a une épaisseur de l'ordre de 1.8 nm, la zone grise (interface Co/Si) a une épaisseur de l'ordre de 1.2 nm et la zone blanche (couche de Si) a une épaisseur de l'ordre de 1.1 nm, avec une erreur de l'ordre de 10 %. Le schéma détaillé de différentes zones est présenté dans la figure 4. L'épaisseur nominale de Co déposée était de 3 nm et

celle de Si était de 2.3 nm. Les distances interatomiques étant comparables entre Si et Co nous en déduisons que 0.6 nm de Si et 0.6 nm de Co se sont mélangés sur chacune de leurs faces pour former la bande interfaciale observée de l'ordre de 1.2 nm. Il faut noter que cette dernière épaisseur est une valeur maximale de l'épaisseur d'interdiffusion. En effet, si le faisceau électronique n'est pas exactement dans le plan des couches, la zone apparente de mélange en est élargie. De plus, la rugosité, même si elle apparaît faible, contribue au mélange de contraste. Nous verrons que la RMN, sensible uniquement au mélange atomique interfacial, donne une valeur comparable.



Figure 4: Schéma détaillé des différentes zones observées sur l'image en section transverse de la multicouche Si(111)[Co3nm/Si2.3nm]*6. L'interface Co/Si est mélangée sur 1.2 nm.

III.2.2. Comparaison entre la structure des multicouches Co/Si déposées sur un substrat de Si(111) et celles déposées sur un substrat de verre.

Pour les observations par MET, les échantillon des multicouches Co/Si déposées sur de verre ont été préparé de la même façon que celles déposées sur des substrats de Si.

Les clichés de diffraction en vue plane des multicouche verre[Co/Si] et Si(111)[Co/Si] sont présentés sur la figure 5. Le contraste est frappant entre la multicouche bien cristallisée déposée sur Si(111) (figure 5 (a)) est les anneaux larges et continus observés pour une multicouche déposée sur substrat de verre comme le montre la figure 5 (b). Dans ce dernier cas les couches de Si et Co sont amorphes ou composées de grains très fins.

Le champ sombre typique de multicouches Co/Si déposées sur de substrats de verre est présenté dans la figure 6. La taille latérale des grains dans le plan varie entre 1 nm et 5 nm.



Figure 5 : Cliché de diffraction en vue plane de MET des multicouches [Co/Si]. (a) multicouche de type Si(111)[Co/Si], bien cristallisée et polycristalline. (b) multicouche de type verre[Co/Si], présentant les anneaux larges d'une phase amorphe ou nanocristalline



Figure 6 : Champ sombre typique d'une multicouche verre[Co/Si]. La taille de grains varie entre 1 nm et 5 nm.

III.2.3. Résumé de l'étude par la MET

L'analyse de la structure, par Microscopie Electronique en Transmission, nous a montré que les multicouches déposées sur des substrats de Si(111) à 90 K, sont très bien cristallisées (avec des grains de grande taille de l'ordre de 300 nm) quoique polycristallines. L'observation en section transverse montre que nous avons une interface bien définie et mélangée sur 1.2 nm d'épaisseur, au plus. En revanche, les multicouches Co/Si déposées sur des substrats de verre sont amorphes ou nanocristallines. Dans la suite nous complétons l'analyse de la structure par les mesures RMN.

III.3. Résonance magnétique nucléaire (RMN)

Dans le chapitre des techniques expérimentales nous avons vu que la RMN pour les matériaux ferromagnétiques nous donne des informations sur l'homogénéité (ou l'inhomogénéité) magnétique et structurale chimique des échantillons. Pour avoir accès à ces informations nous avons enregistré les spectres RMN pour plusieurs amplitudes du champ radiofréquence sur une plage d'un ordre de grandeur autour de la valeur optimale, à 1.5 K. cette procédure nous permet, à partir des données brutes obtenues (signal RMN en fonction de la fréquence et de l'amplitude du champ radiofréquence (RF)), de tracer les figures en trois dimensions présentées ci-dessous.

III.3.1. Description qualitative de spectre 3D des multicouches Si(111)[Cot_{Co}nm/Si4nm]

Deux exemples de spectres à 3D, pour les multicouches (Co2.9nm/Si4nm) et (Co3.8nm/Si4nm), sont présentés sur la figure 7.

A faible épaisseur de Co, le spectre RMN présente deux contributions, la première à champ RF faible et l'autre à champ RF fort (figure 7 (a)). Le fait d'observer deux maxima en champ montre que l'échantillon est magnétiquement inhomogène. Le signal RMN à fort champ correspond à une partie du Co magnétiquement dure, et la partie à champ faible à une partie douce magnétiquement. La perméabilité magnétique de la seconde est environ 6 fois plus forte que celle de la première.



Figure 7 : Intensité du signal RMN en fonction de la fréquence et de l'amplitude du champ d'excitation (B1 en échelle Log). (a) Pour (Co2.9nm/Si4nm)*6. (b) pour (Co3.8/Si4nm*6).

Lorsque l'épaisseur de Co augmente, la composante à fort champ devient très largement dominante et la composante à faible champ n'apparaît plus que comme un léger épaulement (figure 7 (b)). Donc le spectre à fort champ peut être attribuée au Co pur. La composante magnétiquement douce, visible essentiellement à faible épaisseur de Co, peut être attribuée au Co à l'interface ou proche de l'interface. On remarque d'ailleurs que cette dernière composante présente une queue en basse fréquence, signature d'un mélange chimique nettement plus étendu que pour la première.

Il est important de noter que sur ces figures 3D la composante douce est surreprésentée. En effet, comme vu dans le chapitre I, l'amplitude du signal RMN dans un corps ferromagnétique est proportionnelle à la perméabilité magnétique locale. Sur la figure 7(a), où les deux composantes apparaissent d'amplitude comparable, la composante douce d'interface serait environ 6 fois moins haute en termes de densité spectrale d'atomes de Co. L'analyse suivante nous donnera une vue plus affinée et plus quantitative du nombre d'atome impliqués dans chacune des composantes ainsi que du profil d'interface.

III.3.2. Analyse des interfaces des multicouches Co/Si.

L'analyse de l'interface de nos multicouches a été faite en deux étapes : la première est une analyse qui consiste à déterminer les intensités des différentes contributions du spectre (partie douce et partie dure), et la seconde consiste en la modélisation les interfaces.

A partir du spectre RMN à trois dimensions, on établit un spectre à deux dimensions, (intensité en fonction de fréquence) corrigé des effets d'augmentation par la perméabilité électronique. On obtient alors un spectre représentant une densité d'atomes en fonction de la fréquence de résonance, c'est à dire uniquement la partie d'information structurale, qui nous intéresse plus particulièrement dans ce travail. Lorsqu'il y a deux maxima en champ on obtient séparément le spectre RMN de chacune des composantes, ce qui a pu être fait pour les épaisseurs de Co de 1.9 et 2.9 nm (Fig. 8, 9 et 10). Au-delà, la faiblesse relative de la composante douce ne nous a pas permis de faire une décomposition fiable. Notons que sur toutes les figures présentées par la suite, le signal RMN a été normalisé à l'aire totale d'interface. Toute composante de nature interfaciale apparaîtra donc constante en fonction de l'épaisseur des couches de Co et toute composante dans le volume des couches apparaîtra proportionnelle à cette épaisseur. Par ailleurs, si l'échelle verticale des spectres (l'unité de densité spectrale) est arbitraire, elle est la même pour toutes les composantes et tous les échantillons.



Figure 8 : Spectres RMN de la partie interfaciale de multicouches Si(111)[Co2.9nm/Si4nm]*6 et Si(111)[Co1.9nm/Si4nm]*6. Les aires de ces deux spectres sont égales bien qu'ils aient des formes différentes (voir le texte).



Figure 9: Spectres RMN de la partie dure de multicouches Si(111)[Co2.9nm/Si4nm]*6 et Si(111)[Co1.9nm/Si4nm]*6. L'intensité augmente bien avec l'épaisseur de Co déposée.

Les figures 8 et 9 présentent les spectres séparés des deux composantes pour les échantillons de faible épaisseur de Co. On peut voir que pour l'épaisseur la plus faible (1.9 nm) la densité spectrale est quasiment uniforme, avec, toutefois une légère augmentation aux fréquences du Co pur dans la partie centrale de la couche (composante dure, fig. 9). Rappelons que cette densité spectrale représente la probabilité pour un atome de Co d'avoir 0 (à 220 MHz), 1, 2,... n voisins de Si substitués au Co parmi ses 12 premiers voisins (avec un décalage de -15 MHz par Si voisin). De ce fait, densité spectrale uniforme ne signifie pas concentration uniforme. Un alliage homogène à 50%, par exemple, présenterait un spectre gaussien, large de 50 MHz, centré à 120 MHz. Par ailleurs, pour qu'un plan atomique de Co apparaisse pur au sens de la RMN il faut qu'il soit flanqué de plans purs de chaque coté. Qualitativement, l'absence de pic marqué à la fréquence du Co pur nous indique que cet échantillon a, au mieux, 1 plan de pur Co en son centre. Autrement dit les interfaces de chaque coté de la couche de Co sont jointifs. En revanche on voit que pour le second échantillon (2.9 nm) la densité spectrale à 220 MHz (le Co "pur", au sens de la RMN) augmente très fortement par rapport au précédent ce qui correspond aux 5 plans atomiques supplémentaires déposés, de Co pur (à tous les sens). La comparaison des composantes douces des deux échantillons (fig. 8) est aussi très instructive. Ces spectres ont la même aire, donc contiennent le même nombre de Co "mélangé" dans les deux échantillons, ce qui confirme la nature interfaciale de cette composante. Cependant, il est immédiatement visible qu'il existe un plus fort gradient de composition dans le second échantillon (couche de Co épaisse) que dans le premier. Les rapports d'intensité des deux composantes dans chaque spectre nous donne une première estimation de la fraction de Co impliqués dans les deux interfaces: 0.8 nm pour le premier et 0.75 nm pour le second. Il est clair, cependant, que ces valeurs sont des limites inférieures car la composante dure contient du Si. Seule la simulation des spectres présentée en seconde partie de cette section peut révéler le profil réel à l'interface.

Comme nous n'avons pu faire qu'une correction globale des effets de perméabilité magnétique pour les échantillons d'épaisseur forte et afin de comparer entre eux l'ensemble des spectres, les spectres corrigés des deux composantes ont été additionnés pour les échantillons Si(111)[Co2.9nm/Si4nm]*6 et Si(111)[Co1.9nm/Si4nm]*6.

Les spectres RMN, normalisés à la surface totale d'interface des multicouches Co/Si avec 1.9, 2.9, 3.8 et 5.8 nm de Co sont présentés sur la figure 10.



Figure.10 : Spectres RMN des multicouches Si(111)[Cot_{Co}nm/Si4nm]*6. Ces spectres peuvent être séparés en deux parties : première partie (<210 MHz) correspond aux Co placés à l'interface. Deuxième partie (>210 MHz) correspond aux Co massifs dans la couche de Co.

L'intensité totale des spectres RMN en fonction de l'épaisseur de Co déposée est donnée sur la figure 11, cela dans le but de vérifier si tous les atomes de Co présents dans



Figure. 11 : Evolution de l'intensité des spectres RMN en fonction de l'épaisseur de Co déposée.

les multicouches sont observés dans les spectres RMN. Comme les spectres sont normalisés à la surface on devrait obtenir, en fonction de l'épaisseur de Co, une droite passant par l'origine. On peut voir très clairement que la droite de moindre carré passe par l'origine (dans la limite des erreurs expérimentales), cela signifie que presque tous les atomes de Co sont magnétiques (et présents dans les spectres RMN) à 1.5 K.

Les spectres RMN des multicouches Co/Si présentés sur la figure 10 peuvent être décomposés en deux zones de fréquences : une structure principale entre 210 et 230 MHz, correspond au Co massif au centre des couches de Co (cfc ou hc avec possibilité de coexistence de plusieurs de ces phases). La seconde, < 210 MHz, correspond aux Co placés à l'interface (où le Co a des Si proches voisins). Avec l'augmentation de l'épaisseur de Co, la raie à 216-217 MHz s'affirme, qui correspond au Co cfc. De plus, avec l'affinement de cette raie on observe de mieux en mieux les épaulements entre 220 et 228 MHz, correspondant aux fautes d'empilement de type hc (ABAB) dans la structure cfc. Le spectre de l'échantillon 1.9 nm de Co est nettement différent des autres, sans maximum nettement affirmé dans la partie haute fréquence ce qui signifie qu'il y a, au plus, 1 plan atomique sans Si au centre de cet échantillon. A partir de 2.9 nm de Co se superposent. Cela signifie, avec la normalisation utilisée, que les interfaces de ces échantillons possèdent la même morphologie: le nombre d'atomes de Co et le profil de concentration restent les mêmes à l'interface quelle que soit l'épaisseur de Co déposé.

III.3.3. Modélisation de l'interface

Le modèle utilisé pour l'analyse de l'interface de nos multicouches est le modèle d'interface diffuse (cf chapitre I), ce modèle est utilisé lorsque l'interdiffusion aux interfaces est importante. Un exemple de modélisation d'un spectre d'interface de multicouche (Co3.8nm/Si4nm) est présenté sur la figure 12. Les spectres secondaires tracés sous le spectre principal sont ceux correspondant (de haute en basse fréquence) aux plans mixtes, de plus en plus concentrés en Si.



Figure 12 : *Exemple de modélisation de l'interface de multicouche Si(111)[Co3.8nm/Si4nm]*6 au moyen du modèle d'interface diffuse.*

Les profils de concentration et de champ hyperfin à l'interface qui sont obtenus à partir de cette simulation sont présentés sur la figure 13. L'interface est constituée d'un premier plan avec une concentration très faible en Si (0 à 5%), suivi d'une croissance essentiellement linéaire de la concentration. Notons que, dans le spectre, seul les plans d'indice inférieur à 5 sont observés; les autres correspondent à des fréquences et une quantité de Co trop basses pour contribuer au spectre. Toutefois la concentration moyenne du plan 5 influence le plan 4 visible. Les concentrations affichées pour les plans 6 et 7 ne sont connues que par complément à la quantité totale de Co. Ce type de mélange (5 plans atomiques) est comparable au mélange qu'on peut trouver à l'interface de multicouches métalliques typiques, préparées sans soin poussé, et dans lesquelles ont été mis en évidence les effets du couplage magnétique et de GMR, (par exemple les premières multicouches Fe/Cr, ou Co/Cu...*[Meny 92]*).

La valeur moyenne du champ hyperfin dans chaque plan mélangé peut être considérée comme une estimation raisonnable de l'aimantation moyenne des atomes de Co dans ce plan. La figure 13 montre le profil de champ hyperfin moyen (aimantation moyenne) dans l'interface relativement au champ hyperfin (aimantation) du Co massif.



Figure 13 : Profils de concentration et de champ hyperfin à l'interface des multicouches $Si(111)[Cot_{Co}nm/Si4nm]$ *6. La couche atomique 0 correspond au dernier plan pur de Co. Le profil de concentration est quasi linéaire, il montre que l'interface est mélangée essentiellement sur cinq plans atomiques. Le profil de champ hyperfin (aimantation) nous donne un ordre de grandeur de la couche morte magnétiquement de l'ordre d'1 plan atomique.

L'aimantation du Co dans le dernier plan (quasi) pur (1) est de 95 % puis elle diminue dans les plans suivants (2-5) de 81% à 13%; les plans suivants ne sont pas ou très faiblement magnétiques (en dessous de la limite basse des spectres (20 MHz) correspondant à 9 % de la fréquence du Co pur). A partir de ce profil il est possible de déterminer une perte d'aimantation totale qui, traduite en épaisseur équivalente, correspond à environ un plan atomique de Co magnétiquement mort par interface. L'évolution de l'intensité totale du spectre en fonction de l'épaisseur de Co montrait que presque tous les atomes de Co étaient présents dans les spectres RMN. Donc, le plan atomique "mort" provient uniquement de la diminution du moment des atomes de Co présents dans l'interface. Cette couche morte sera comparée avec celle déduite des mesures magnétiques en fonction de l'épaisseur de Co présentées en annexe de ce chapitre, dans la mesure où cette information est plus de nature structurale que magnétique.

III.3.4. Résumé de l'étude par RMN

L'étude par la RMN nous a permis d'avoir un ordre de grandeur du mélange chimique à courte distance à l'interface Co/Si. En effet, la modélisation de l'interface des spectres RMN des multicouches Co/Si à l'aide du modèle d'interface diffuse (cf chapitre II), montre que les interfaces sont mélangées sur cinq plans atomiques (\cong 1nm). Dans la suite nous complétons cette étude à l'aide des mesures et de l'analyse des spectres RRX qui sondent également les ondulations des interfaces, la rugosité à longue distance.

III.4. Réflectométrie des Rayons X (RRX)

III.4.1. RRX pour les multicouches de type Si(111)[Cot_{Co}nm/Si4nm]

La RMN nous donnant une information sur le mélange interfacial à courte distance, nous avons complété l'étude par des mesures de RRX qui nous donne des informations sur la structure et la qualité des multicouches à longue distance.

de RRX des Tout d'abord nous présentons les spectres multicouches (Cot_{Co}nm/Si4nm)*6 en fonction de l'épaisseur de Co à épaisseur constante de Si qui ont été caractérisées par RMN. Ces spectres sont présentés sur la figure 14. On peut remarquer la présence des franges de Kiessig, qui montre la bonne planéité des couches. Les pics de Bragg des multicouches (même à faible épaisseur de Co (1.9 nm)), dus aux interférences constructives des rayons X dans la surstructure (bicouche) de la multicouche, montrent la présence d'une super-période dans les multicouches. En augmentant l'épaisseur de Co les pics de Bragg se rapprochent, en accord avec l'augmentation de la période des multicouches. Le grand nombre de pics de Bragg observés montre que nous avons des multicouches bien définies dans lesquelles les fluctuations d'épaisseur sont faibles en regard de la période. On remarque qu'à grande épaisseur de Co les franges de Kiessig et les pics de Bragg commencent à disparaître. Cela signifie que la rugosité, de la surface externe principalement, mais sans doute aussi des couches et interfaces, augmente avec l'épaisseur de Co et la qualité des multicouches se dégrade à grande épaisseur de Co déposée.



Figure 14 : Spectres des RRX des multicouches $Si(111)[Cot_{Co}nm/Si4nm]*6$. Les flèches marquent les pics de Bragg des multicouches. La présence des franges de Kiessig et les pics de Bragg montre la bonne qualité des multicouches (multicouches bien définies).

Du fait du manque de moyens de caractérisation in situ dans le bâti de pulvérisation cathodique, pour étudier la rugosité des interfaces après chaque couche, la RRX reste est la méthode qui nous a permis d'étudier la rugosité d'interface, ondulation et/ou interdiffusion, de manière systématique. Pour avoir accès à cette information il faut simuler les spectres de RRX. Nous avons simulé ces spectres à l'aide de programme de simulation X'Pert-Reflectivity de PANalytical B. V.

Dans ce programme la rugosité interfaciale est simulée par un profil linéaire de densité électronique et ne fait donc pas de distinction entre courtes et longues distances latéralement. Dans la suite nous utiliserons le terme de "rugosité" indistinctement. La valeur fournie par le programme est l'épaisseur de la zone de gradient, comparable directement au résultat RMN. Lorsque ce sera nécessaire nous distinguerons ondulation et interdiffusion. Plusieurs paramètres sont à ajuster lors de ces simulations telles que les épaisseurs, les densités électroniques, les intensités et les rugosités interfaciales. L'ajustement de différents paramètres doit avoir un sens physique. Pour cela nous avons limité l'ajustement des densités électroniques à 10 % autour de la valeur théorique. Il est apparu que cet ajustement n'induisait pas de variation remarquable dans les spectres simulés; nous avons donc fixé les valeurs des densités électroniques pour toutes les simulations. L'ajustement des épaisseurs des couches induit une variation remarquable dans les spectres, ce qui nous permet d'ajuster les positions des franges de Kiessig et des pics de Bragg des multicouches. La dernière étape consiste à ajuster l'amortissement des oscillations, les hauteurs et les largeurs de pics par l'introduction de rugosités à l'interface et à la surface des multicouches Co/Si.

Un exemple de simulation est montré sur la figure 15. On voit bien le bon accord entre le spectre expérimental et la simulation. La simulation des spectres RRX des multicouche Si(111)[Cot_{Co}/Si4nm]*6 (avec t_{Co} = 1.9, 2.9, 5.8, 7.7 nm) montre que la rugosité moyenne de l'interface est de l'ordre de 0.9 ± 0.3 nm, et la surface externe est extrêmement plate. Ce dernier résultat (rugosité de la surface externe) a été confirmé à l'aide de mesures par microscopie à force atomique (rugosité RMS de l'ordre de 0.2 nm). La rugosité de l'interface des multicouches Si(111)[Cot_{Co}nm/Si4nm] ne présente pas une évolution remarquable en fonction de l'épaisseur de Co. A grande épaisseur de Co (t_{Co} = 8.6 nm) la surface externe devient rugueuse (diminution du nombre et de l'amplitude des franges de Kiessigs) et la rugosité de l'interface augmente un peu par rapport à la rugosité moyenne des autres spectres (diminution du nombre de pics de Bragg).



Fig. 15: Comparaison entre la simulation et l'expérience de spectre (RRX) de Si(111)[Co7.7nm/Si4nm]*6. On voit bien le bon accord entre le spectre expérimental et le spectre simulé.

III.4.2. RRX pour les multicouches de type Si(111)[Co3nm/Sit_{si}]*6

Le sujet principal de notre étude étant le couplage magnétique des couches de Co à travers la couche de Si, nous avons été amenés à faire une étude RRX beaucoup plus détaillée en fonction de l'épaisseur de Si sur les multicouches Si(111)/[Co3nm/Sit_{Si}nm]*6. D'une part il nous fallait situer précisément entre elles les séries d'échantillons réalisées en plusieurs sessions, d'autre part nous avons constaté des variations remarquables de la rugosité en fonction de l'épaisseur de Si.

Il faut rappeler, comme on s'intéresse à la rugosité des interfaces, que les pics de Bragg sont très sensibles à celle-ci. Lorsqu'un pic (ou quelques pics) de Bragg des spectres RRX commence à disparaître, ça signifie que la rugosité des interfaces commence à augmenter. La mesure de RRX pour les multicouches (Co3nm/Sit_{si}nm) a révélé, à notre surprise, une oscillation de la rugosité d'interface (faible/forte/faible...) en fonction de l'épaisseur de Si et ceci pour des variations très faibles de t_{Si}. Comme le montre les figures 16-17, les pics de Bragg, en grand nombre pour certaines épaisseurs disparaissent pratiquement pour une épaisseur plus forte de 0.2 nm, pour réapparaître au delà. La figure 16 montre un exemple de ces spectres pour des épaisseurs successives de Si. Ces multicouches Si(111)[Co3nm/Sit_{Si}nm] ont été déposées avec un incrément d'épaisseur de Si de l'ordre de 0.05 nm (environ 1/4 de monocouche de Si). La figure 16 (a) présente un spectre qui correspond à une multicouche très bien définie (on voit très clairement la présence de franges de Kiessig et de nombreux pics de Bragg de la multicouche) avec une rugosité d'interface faible (de l'ordre de 0.5 nm d'après la simulation). En augmentant l'épaisseur de Si on remarque que les franges de Kiessig et les pics de Bragg commencent à disparaître (figure 16 (b, c)) jusqu'à la disparition presque totale (figure 16 (d)) qui suggère une augmentation de la rugosité de l'ordre de 1.5-2 nm, suivi enfin d'une réapparition de ces pics (figure 16 (e)) qui indique une diminution de la rugosité de l'interface Co/Si.



Figure 16: Evolution des spectres RRXs des multicouches Si(111)[Co3nm/Sit_{si}nm]*6. L'incrément de l'épaisseur de Si est de l'ordre de 0.05 nm.

Si on fait les mesures sur une large gamme d'épaisseur de Si (entre 2 nm et 4 nm) nous trouvons une rugosité oscillante en fonction de l'épaisseur de Si avec une période de l'ordre de 0.4 nm comme le montre la figure 17. Les spectres de RRX se présentent alternativement sous deux allures différentes. La première correspond à des multicouches très bien définies (présence de franges de Kiessig et de nombreux pics de Bragg de la multicouche) avec une rugosité d'interface faible de l'ordre de 0.5 nm. La deuxième, avec peu ou pas de pics de Bragg, pour la simulation desquelles la rugosité d'interface doit monter à 1.5 (max. 2) nm. Une explication de l'origine physique possible de l'oscillation périodique de la rugosité en fonction de l'épaisseur de Si sera proposée dans le chapitre VI lors de la discussion des propriétés physiques des multicouches Co/Si.



Figure 17: Spectres de RRX des multicouches Si(111)[Co3nm/Sit_{si}nm]. Ses spectres de RRX montrent une rugosité d'interface oscillante en fonction de l'épaisseur de Si avec une courte période de l'ordre de 0.4 nm.

III.4.3. Comparaison entre les spectres RRX des multicouches de type Si(111)[Co/Si] et celles de type verre[Co/Si]

La comparaison entre le spectre RRX d'une multicouche Co/Si déposée sur un substrat de Si et celui d'une multicouches Co/Si déposée sur un substrat de verre avec une épaisseur équivalente en Si et en Co est présentée sur la figure 18. Les deux spectres sont similaires, on remarque, pour les deux spectres, la présence des franges de Kiessig et les pics de Bragg des multicouches. Ce qui montre que nous avons pour les deux types d'échantillons des multicouches bien définies avec une interface similaire de Co/Si. Donc, la multicouche Co/Si déposée sur un substrat de Si et la multicouche déposée sur un substrat de verre ont la même qualité moyenne d'interface. Pour des questions de temps et, surtout, de disponibilité des instruments de mesure nous n'avons, malheureusement, pas pu faire de mesure détaillée en fonction de l'épaisseur de Si.



Figure 18 : comparaison entre les spectres RRX d'une multicouche Co/Si déposée sur un substrat de Si et d'une multicouche déposée sur un substrat de verre. Les deux spectres sont similaires et montrent que nous avons des multicouches bien définies (présence de pics de Bragg) avec une interface plate (présence de franges de Kiessig et nombreux pics de Bragg).

III.4.4. Résumé de l'étude par la RRX

La RRX n'a pas présenté une évolution remarquable de la rugosité de l'interface en fonction de l'épaisseur de Co, sauf à grandes épaisseurs de Co pour lesquelles la qualité de l'interface et de la surface se dégrade. Ce qui est assez habituel dans l'étude des En oscillation multicouches. revanche. une de la rugosité d'interface (0.5nm→1.5nm→0.5nm ...) en fonction de l'épaisseur de Si avec une très courte période de 0.4 nm a été révélée. Par ailleurs, la RRX montre que les multicouches Co/Si déposées sur un substrat de Si ou de verre ont la même qualité moyenne d'interface bien que leur structure cristallographique soit très différente (MET cf III.2.2).

III.5. Discussion

Pour les multicouches Co/Si déposées sur des substrats de Si(111) en fonction de l'épaisseur de Co, les mesures RMN (qui sondent le mélange chimique) et RRX (qui sondent aussi la rugosité à longue distance) montrent que l'interface est mélangée sur 5 plans atomiques (de l'ordre de 1 nm). L'observation en section transverse par MET montre une interface bien définie avec un mélange de 1.2 nm, au plus. Ces trois techniques sont donc bon accord et les valeurs comparables en RMN et RRX suggèrent que la rugosité à plutôt pour origine l'interdiffusion entre Co et Si. L'observation par MET, sur une distance latérale réduite toutefois, ne laisse pas, non plus apparaître d'ondulation d'interface. Aucune évolution notable de l'interface en fonction de l'épaisseur de Co n'a été observé tandis que les mesures RRX ont révélé, à notre surprise, une oscillation de la rugosité d'interface, entre 0.5 et 1.5 nm, en fonction de l'épaisseur de Si avec une courte période de 0.4 nm.

Par ailleurs les multicouches sont très bien cristallisées avec une très grande taille de grains de l'ordre de 300 nm. Ce résultat est peu habituel pour la température utilisée lors du dépôt (90 K), en particulier pour le silicium qui s'amorphise très facilement.

Ces deux observations, bonne cristallinité impliquant des réarrangements atomiques significatifs et, néanmoins, mélange modéré aux interfaces sont intuitivement contradictoires. Elles pourraient être liées à la géométrie de notre bâti de pulvérisation cathodique. Ainsi il y aurait compétition entre la chaleur dégagée par la surface du magnétron, qui donnerait lieu à une mobilité de surface des atomes suffisante pour développer une croissance cristalline, et la température de refroidissement du porte substrat qui empêcherait le mélange en volume. Notons, quoi qu'il en soit, que les conditions de préparation qui aboutissent à la structure décrite dans ce chapitre sont plutôt critiques. Comme nous l'avons vu, le dépôt sur verre, s'il donne des interfaces comparables au dépôt sur Si, abouti à une structure amorphe. Non détaillé dans cette thèse mais aussi significatif, le fait que nos essais de dépôt sur Si avec des magnétrons inclinés, dans le but de réaliser des échantillons coins, ont aussi abouti à une structure amorphe. Or, comme nous le verrons la structure, cristalline ou amorphe, a une influence dramatique sur les propriétés magnétiques des multicouches.

III.6. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons étudié les propriétés structurales des multicouches Co/Si déposées à basse température 90 K. Pour les multicouches déposées sur des substrats de Si, les mesures par MET montrent que nous avons des multicouches très bien cristallisées (présence de Si bien cristallisé dans la couche de Si) avec des tailles de grains très grandes de l'ordre de 300 nm. RMN et RRX combinées nous montrent que les interfaces des multicouches Co/Si présentent un mélange chimique moyen de l'ordre de 1 nm superposé à une oscillation de ± 0.5 nm d'amplitude en fonction de l'épaisseur de la couche de Si.

Dans tout les cas la rugosité totale reste plus petite que celle d'une multicouche déposée à température ambiante (mélange de l'ordre de 5 à 10 nm). Ce qui montre que le dépôt des multicouches Co/Si à 90 K limite bien, comme nous l'escomptions, le mélange à l'interface. De plus nous avons obtenu des multicouches très bien cristallisées quoique polycristallines. Par ailleurs, pour les multicouches Co/Si déposées sur des substrats de verre, nous avons montré qu'elles ont la même qualité de l'interface que les multicouches déposées sur des substrats de Si, mais, par contre, une structure amorphe (présence de Si amorphe ou composé de petits grains dans la couche de Si). C'est donc, sur ces multicouches mieux définies que lors des travaux antérieurs, tant en qualité d'interface qu'en structure cristallographique, que nous avons effectué notre étude des propriétés magnétiques et de transport, qui sera le sujet du chapitre IV suivant.
Annexe: Mélange interfacial et couche morte magnétique

Dans la suite nous allons discuter la qualité de l'interface des multicouches Co/Si en termes de couches magnétiques mortes, telles que vues par les mesures classique de magnétométrie et pour comparaison avec les données publiées.

Pour cela nous avons mesuré l'aimantation à saturation (Ms) à 300K des multicouches $Si(111)[Cot_{Co}nm/Si4nm]*6$ en fonction de l'épaisseur de Co déposé. L'évolution de $Ms(t_{Co})$ est présenté sur la figure 20. On observe une droite laquelle, contrairement à l'intensité intégrée des spectres RMN, ne passe pas par l'origine. Donc il y a ce qu'on appelle une "couche magnétique morte". La quantité de Co non magnétique en épaisseur équivalente de Co est de 1.5 nm par couche, soit 0.75 nm, un peu moins de 4 plans atomiques, par interface. La couche morte magnétique déduite à partir des mesures RMN (profil du champ hyperfin (d'aimantation) à l'interface) était de l'ordre de 0.2 nm (équivalente d'un plan atomique). La différence entre les deux valeurs de la couche morte 1.5 K pour les mesures RMN. A température ambiante un certain nombre d'atomes de Co à l'interface perdent totalement leur moment magnétique. Sur le profil d'interface présenté plus haut dans ce chapitre, la couche morte magnétique à 300 K correspond à la totalité des atomes de Co impliqués dans des plans mixtes (plans 1 à 7 sur la figure 14).

L'aimantation à saturation des multicouches $Co3nm/Sit_{Si}nm$ sur substrat de verre est présentée aussi sur la figure 20. La valeur obtenue est similaire à celle des multicouches déposée sur Si(111), confirmant par là que le mélange à l'interface est similaire pour les deux types des multicouches.

Aucune information n'a été trouvé dans la littérature en ce qui concerne la couche morte magnétique mesurée pour une couche de Co déposée sur Si par pulvérisation cathodique. Nous avons des informations à ce sujet dans une étude de couches de Co déposées sur Si (111) par l'épitaxie par jet moléculaire (EJM) *[Hai Xu 03]*. Les échantillons avaient été déposés à 150 K et leurs propriétés magnétiques mesurées par effet Kerr optique in situ à 150 K. La qualité de l'interface avait été déduite de la couche morte magnétique ç l'unique interface Co/Si. L'épaisseur de couche morte de Co déduite de ces mesures était de l'ordre

de 0.7 nm, comparable à celle déduite des mesures magnétiques dans nos échantillons (mais à 300 K) et plus grande que celle déduite des mesures RMN (à 1.5 K). Il faut noter que l'EJM est une technique particulière, dont la qualité de vide atteint 10⁻¹¹ mbar et que les mesures lors de ces travaux ont été faites in-situ (c'est donc une technique mieux contrôlée par rapport à la pulvérisation cathodique utilisée ici). Nous pouvons donc conclure que la qualité des interfaces de nos multicouches Co/Si est au moins aussi bonne que ce qu'on peut trouver de mieux dans la littérature pour des couches déposées à basse température.



Figure 20: Evolution de l'aimantation à saturation (à 300 K) par unité de surface des multicouches Co/Si déposées sur des substrat de Si(111) en fonction de l'épaisseur de Co. Le cercle plein représente l'aimantation à saturation des multicouches Co/Si déposées sur substrat de verre. La couche morte magnétique déduite à partie de cette courbe est de l'ordre de 0.75 nm par interface.

Références :

A - F- G- H

- [Ayache 07] J. Ayache, L. Beaunier, J. Boumendil, G. Ehrte, D. Laub, Guide de préparation des échantillons pour la microscopie électronique en transmission, *Tome II : Techniques*, Ed. Publications de l'université de Saint-Etienne, Février 2007 ; ce tome est lié et complémentaire avec le site internet interactif http://temsampprep.in2p3.fr
- [Fallon 00] J. M. Fallon, C. A. Faunce, P. J. Grundy, J. Appl. phys. 88, 5 (2000)
- [Fejfar 03] A. Fejfar, T. Mates, P. Fojtík, M. Ledinský, K. Luterová, H. Stuchlíková, I. Pelant, J. Kočka, V. Baumruk, A. Macková, M. Ito, K. Ro, H. Uyama, Jpn. J. Appl. Phys. 42, L989 (2003)
- [Grundy 00] P. J. Grundy, J. M. Fallon, Phys. Rev. B 62, 14 (2000)
- [Hofer 47] Hofer, Peebles, J. Am. Chem. Soc. 69, 897 (1947)
- [Hai Xu 03] Hai Xu, Alferd C. H. Huan, Andrew T. S. Wee, D. M. Tong, Solid State Communications 126, 659 (2003)

M - N- P- V- Y

[Meny 92] C. Meny, P. Panissod, R. Loloee, Phys. Rev. B 45, 12269 (1992)

- [Natl 76] Natl. Bur. Stand. (U.S) Monogr. 25, 13, 35 (1976); Powder Diffraction File, Joint Committee on Powder Diffraction Standards, ASTM, Philadelphia, PA, 1967 Card 27-1402
- [Natl 66] Natl. Bur. Stand. (U.S) Monogr. 25, 4, 10 (1966); Powder Diffraction File, Joint Committee on Powder Diffraction Standards, ASTM, Philadelphia, PA, 1967 Card 15-0806
- [Pet Ford-Long 87] A. K. Pet Ford-Long, M. B. Stearns, C. H. Lee, S. R. Nutt, M. Ceglio, A. M. Hawryluk, *J.Appl.phys.* 61, 1422 (1987).
- [Voyles 01] P. M. Voyles, J. E. Gerbi, M. M. J. Treacy, J. M. Gibson, J. R. Abelson, *Phys. Rev. Lett.* 86, 5514 (2001)
- [Yeh 92] C. Yeh and al., Phys. Rev. B: Condens Matter. 46, 10086 (1992)
- [Yeob Shim 96] Jae Yeob Shim, Joon Seop Kwak, Hong Koo Baik. *Thin Solid Films* 288, 309 (1996)

Chapitre IV

Etude des propriétés magnétiques et de transport des multicouches Co/Si

Chapitre IV

Etude des propriétés magnétiques et de transport des multicouches Co/Si

IV.1. Introduction

L'étude structurale (chapitre III) nous a montré que les multicouches Co/Si, déposées à 90K par pulvérisation cathodique sur des substrats de Si, sont très bien cristallisées quoique polycristallines. Ces multicouches sont composées de grains de grande taille avec une interface bien moins mélangée que celles préparées à l'ambiante. Sur ces couches bien définies nous avons donc effectué une étude des propriétés magnétiques et de transport.

Dans un premier temps nous avons étudié les propriétés magnétiques et en particulier le couplage magnétique entre les couches de Co à travers la couche de Si. Cette étude était l'objectif principal de ce travail d'une part, à titre général, pour contribuer à la compréhension des mécanismes de couplages entre couches magnétiques au travers d'un semi-conducteur, mais aussi, d'autre part, pour confronter nos résultats expérimentaux à la prédiction théorique de Enkovaara et al. *[Enkovaara 00]*. En effet, ces calculs ab-initio suggèrent, de manière inattendue, une oscillation de couplage magnétique à courte période dans les multicouche hc<0001>Co/Si alors que les théories générales *[Bruno 95]* ne prévoient qu'une décroissance exponentielle. Aucune oscillation de couplage n'avait encore jamais été observée expérimentalement avant notre travail. La première explication

venant à l'esprit pour le désaccord entre calcul et expérience était l'existence d'une forte interdiffusion aux interfaces (de 5 à 10 nm) dans les multicouches réelles. Avec une interface nettement plus proche de l'interface parfaite, nous pouvions espérer confirmer les calculs théoriques. Outre l'interdiffusion aux interfaces, la qualité cristalline des couches pouvait être incriminée dans le désaccord. Nous avons donc aussi comparé les propriétés magnétiques des multicouches Co/Si déposées sur deux types de substrats, du Si(111) et de verre, dont la cristallinité (cf. chapitre III) diffère considérablement, à même qualité d'interface. Pour les premières des grains de grand taille sont observés alors qu'une structure amorphe ou nanocristalline est obtenue pour les secondes.

Dans un deuxième temps et en suite naturelle depuis la découverte des effets magnétorésistifs géants [Baibich 88] dans les multicouches MF/NM/MF, nous avons étudié les propriétés de transport dans le plan de ces multicouches en les corrélant aux propriétés magnétiques.

IV.2. Etude des propriétés magnétiques des multicouches Co/Si

Plusieurs méthodes expérimentales peuvent être utilisées pour étudier le couplage d'échange inter-couche dans les multicouches MF/NM/MF, telles que : la magnétométrie [par ex.: Baibich 88 ; Parkin 90 ; Parkin 91_a ; Parkin 91_b ; Purcell 91 ; Heinrich 90 ; Heinrich 94_4], les techniques électro-magnétiques (résonance ferromagnétique & diffusion Brillouin de la lumière) [par ex.: Grunberg 86 ; Demokritov 92 ; Celinski 91 ; Heinrich 94_3], la réflectométrie de neutron [par ex.: Parkin 91_b ; Huang 91 ; Rodmacq 91] et l'imagerie de domaines magnétiques [par ex.: Unguris 91 ; Ruhrig 91 ; Heinrich 94_2]. La magnétométrie (mesure du cycle d'aimantation de l'échantillon en fonction d'un champ magnétique extérieur) est la méthode la plus simple à mettre en œuvre. C'est celle que nous avons utilisée pour étudier nos multicouches Co/Si.

Avec cette méthode un couplage d'échange antiferromagnétique peut être facilement révélé et quantifié. En effet le couplage, qui tend dans ce cas à aligner antiparallèlement les aimantations des couches ferromagnétiques adjacentes, entre en compétition avec le champ extérieur, qui tend lui, à les aligner parallèlement. Par suite l'aimantation croît lentement et linéairement avec le champ et l'amplitude du couplage est directement proportionnelle au champ de saturation de l'échantillon. Le couplage d'échange ferromagnétique est plus difficile à quantifier puisque, dans ce cas, couplage et champ contribuent tous deux à aligner parallèlement les aimantations des couches ferromagnétiques. Puisqu'il n'y a pas de compétition l'aimantation sature facilement et la mesure de l'amplitude du couplage est impossible. Un échantillon qui sature facilement peut tout aussi bien correspondre à des couches non couplées qu'à un couplage ferromagnétique fort.

En l'absence d'anisotropie, l'interprétation qualitative d'une courbe d'aimantation est donc simple, le couplage d'échange est relié directement au champ de saturation de l'aimantation: un fort champ de saturation correspond à un couplage antiferromagnétique et un faible champ de saturation à un couplage ferromagnétique (ou à une absence de couplage).

Cependant la présence d'anisotropie magnétique vient brouiller le schéma simple présenté ci-dessus. En effet l'anisotropie magnétique s'oppose toujours, d'une manière ou d'une autre, à l'alignement de l'aimantation des couches sur le champ. Si le champ est appliqué selon un axe de facile aimantation on observe un cycle d'hystérésis rectangulaire avec retournement brutal de l'aimantation pour un champ fini (champ coercitif égal au champ de saturation). Si le champ est appliqué selon l'axe de difficile aimantation on observe une croissance linéaire de l'aimantation jusqu'au champ de saturation (égal au cas précédent). Enfin, en cas d'échantillons polycristallins comme les nôtres, isotropes macroscopiquement, on observe une forme intermédiaire avec un cycle d'hystérésis arrondi et une saturation lente quelle que soit la direction du champ. Dans tous les cas l'anisotropie magnétique implique un champ de saturation non nul dont la valeur mesure l'énergie d'anisotropie.

Nous verrons plus loin le dispositif que nous avons utilisé pour tenter de mesurer le couplage, en signe et en amplitude en nous affranchissant d'éventuels effets d'anisotropie. Dans la suite immédiate nous présentons nos mesures de cycles d'aimantation et leur interprétation en termes de champ de saturation, ou, plus précisément d'énergie de saturation, attribués, a priori, à l'existence (ou l'absence) d'un couplage anti-ferromagnétique.

IV.2.1. Cycles d'aimantation des multicouches [Co3nm/Sit_{Si}nm]*6

Dans cette partie nous présentons les propriétés magnétiques des multicouches Co/Si en fonction de l'épaisseur de Si obtenues en mesurant les cycles d'aimantation des multicouches Substrat[Co3nm/Sit_{Si}nm]*6. L'idéal pour étudier le couplage magnétique en fonction de l'épaisseur de la couche séparatrice aurait été de mesurer les cycles par effet Kerr optique sur un échantillon avec une couche séparatrice préparée sous forme d'un coin *[Fuss 92 ; Johnson 92 ; Unguris 97]*. Nous avons essayé de faire un coin par pulvérisation cathodique, mais, comme indiqué dans le chapitre précédent nous avons abouti à une structure amorphe. Nous donc avons été obligé de déposer de très nombreuses multicouches Co/Si à différentes épaisseurs de Si avec un incrément d'épaisseur de l'ordre de 0.05 nm (le quart d'une monocouche de Si !).

Tout d'abord nous présentons les propriétés magnétiques, mesurées à l'ambiante, puis en fonction de la température, des multicouches Co/Si déposées sur des substrats de Si(111). Nous présentons ensuite rapidement les résultats obtenus sur substrat verre que nous comparons au cas du substrat Si(111). Nous ferons enfin un bilan partiel de ces résultats avec une première comparaison avec les résultats théoriques.

IV.2.1.1. Courbes d'aimantation à 300 K

Des exemples de cycles d'hystérésis des multicouches [Co3nm/Sit_{Si}nm]*6 déposées sur des substrats de Si(111) réalisés à l'aide d'un magnétomètre à SQUID à 300 K sont présentés sur la figure 1. On peut remarquer que les courbes d'aimantation de ces multicouches passent d'un cycle doux magnétiquement, champ de saturation faible, à un cycle dur magnétiquement, champ de saturation fort, en fonction de l'épaisseur de Si déposée et ceci avec une période de 2 monocouches de Si. Dans la pratique il est difficile de mesurer le champ à saturation avec précision dans un échantillon polycristallin du fait de la courbure en fin de saturation. Nous avons donc préféré utiliser une donnée intégrale, l'énergie nécessaire pour saturer l'échantillon (cf chapitre I). La figure 2 présente cette énergie de saturation, par couche de cobalt (de 3 nm d'épaisseur) et par unité de surface, en fonction de l'épaisseur de Si.



Figure 1 : Exemples de cycles d'hystérésis des multicouches Si(111)[Co3nm/Sit_{si}nm]*6 mesurés à 300 K à l'aide de SQUID. On voit très clairement que les courbes oscillent de faible champ de saturation à fort champ de saturation en fonction de l'épaisseur de Si. Les courbes, même celles qui saturent à haut champ, ne présentent aucune ou une très faible hystérésis (sauf pour le premier cycle à faible épaisseur de Si, $t_{Si}=2.2$ nm).



Figure 2 : Oscillation de l'énergie à saturation à courte période (0.4 nm) mesurée à 300 K des multicouches Si(111)[Co3nm/Sit_{si}nm*6] en fonction de l'épaisseur de Si (énergie ramenée à 1 couche de Co de 3 nm d'épaisseur). On remarque que l'amplitude ne décroît pas avec l'épaisseur de Si, jusqu'à au moins 4 nm.

On voit bien sur cette figure 2, que l'énergie à saturation oscille en fonction de l'épaisseur de Si avec une courte période de l'ordre de 0.4 nm. Nous avons fait une étude continue, par pas de 0.05 nm, de 1 nm (épaisseur de la zone interfaciale mélangée) à 4 nm d'épaisseur de Si. Il faut noter que le temps de fabrication d'un tel nombre d'échantillons est énorme. Pour voir jusqu'à quelle épaisseur de Si cet effet d'oscillation d'énergie à saturation s'étend, nous avons prolongé l'étude en séries discontinues jusqu'à 7 nm (une série de 3 à 5 échantillons avec un incrément d'épaisseur de Si de l'ordre de 0.05 nm chaque 1 nm). On remarque, comme le montre la figure 2, que l'amplitude de l'oscillation ne décroît pas en fonction de l'épaisseur de Si jusqu'à une épaisseur au minimum de l'ordre de 4 nm. Au-delà on peut voir aussi que l'énergie à saturation continue à présenter des minima et maxima dans un rapport d'un ordre de grandeur sans décroissance importante de ce rapport jusqu'à une épaisseur de 7 nm.

IV.2.1.2. Effet de la température sur les cycles d'hystérésis des multicouches Co/Si.

Pour voir l'effet de la température sur les propriétés magnétiques des multicouches Co/Si, Nous en avons mesuré les cycles d'hystérésis à 10 K, puis, sur des échantillons choisis, en fonction de la température. Des exemples de cycles d'hystérésis des multicouches [Co3nm/Sit_{Si}nm]*6, observés à 10 K, sont présentés sur la figure 3.



Figure 3 : Exemples de cycles d'hystérésis des multicouches Si(111)[Co3nm/Sit_{si}nm]*6 mesurés à 10 K. On voit, comme pour les mesures à l'ambiante, que le cycle d'hystérésis oscille de faible champ de saturation à fort champ de saturation en fonction de l'épaisseur de Si.

Comme dans le cas des mesures magnétiques à 300K, on peut remarquer que les courbes d'aimantation passent d'un champ de saturation faible à un champ de saturation fort en fonction de l'épaisseur de Si. La comparaison entre les énergies de saturation de l'échantillon à 10 K et à 300 K est présentée sur la figure 4. On y voit que l'intensité de l'énergie à saturation est presque identique à 10 K et à 300 K dans la limite des erreurs expérimentales.



Figure 4 : Comparaison de l'oscillation de l'énergie à saturation des multicouches Si(111)[Co3nm/Sit_{si}nm*6] à 300 K et à 10 K en fonction de l'épaisseur de Si. On remarque que l'amplitude de l'énergie à saturation est presque identique à 10 K et à 300 K.

La seule différence entre les cycles d'aimantation à 10 K et à 300 K, est l'apparition d'un coercitif à 10 K.

Pour avoir plus de détails sur l'effet de la température sur les propriétés magnétiques des multicouches Co/Si, nous avons effectué une étude en fonction de la température entre 2 K et 300 K sur deux échantillons : un échantillon magnétiquement doux, saturant à faible champ et l'autre dur saturant à fort champ.

IV.2.1.2.1 Etude détaillée en fonction de la température de deux multicouches avec une saturation difficile et facile.

Les cycles d'hystérésis de multicouches [Co3nm/Sit_{Si}nm]*6, en fonction de la température (entre 2 K et 300 K) sont présentés sur la figure 5. Les cycles de la figure 5 (a) correspondent à t_{Si} =3nm, un échantillon à champ de saturation élevé. Et les cycles de la figure 5 (b) correspondent à t_{Si} =2.9nm, un échantillon à faible champ de saturation.



Figure 5: Cycles d'hystérésis de multicouche Si(111)[Co3nm/Sit_{Si}nm]*6 en fonction de la température. (a) $t_{Si}=3nm$ correspond à une multicouche qui sature difficilement. (b) $t_{Si}=2.9nm$ correspond à une multicouche qui sature facilement. Pour le deux types des multicouches, (a) et (b), le champ de saturation est presque constant en fonction de la température. La seule différence est l'apparition d'un champ coercitif à basse température.

Comme le montre cette figure, pour les deux types de multicouches, le champ de saturation ne change pas significativement en fonction de la température au dessus de 10 K. Cela se voit plus clairement sur la figure 6 (a) et (b) où on présente l'énergie de saturation en fonction de la température pour les deux échantillons. En dessous de 50 K on remarque une faible augmentation de l'énergie de saturation qui correspond, d'ailleurs à l'apparition d'un champ coercitif significatif. Nous avons remarqué que, de manière générale, les échantillons durs présentent, à basse température, un champ coercitif supérieur d'un ordre de grandeur à celui des échantillons doux. Par contre, à température

ambiante on observe la situation inverse : les échantillons doux présentent encore un champ coercitif résiduel alors que les durs ont une aimantation rémanente nulle ou négligeable. La figure 7 (a) et (b) présente la variation de ce champ coercitif en fonction de la température, pour ces mêmes échantillons, dur et doux respectivement. On peut y voir que, pour l'échantillon doux, le champ coercitif décroît rapidement de plus d'un ordre de grandeur entre 2 K et 300 K. Pour l'échantillon dur la décroissance du champ coercitif est encore plus rapide avec une allure pratiquement exponentielle. Au dessus de 200 K il devient non mesurable.



Figure 6: Evolution de l'énergie à saturation de multicouche Si(111)[Co3nm/Sit_{si}nm]*6 en fonction de la température. (a). $t_{si}=3$ nm, est une multicouche qui sature difficilement, (b) $t_{Si}=2.9$ nm une multicouche qui sature facilement. L'énergie reste presque constante en fonction de la température pour la multicouche dure (a) avec une faible augmentation en dessous de 50 K. Pour la multicouche douce, dont l'énergie de saturation est 10 fois plus faible, la variation relative est plus importante (un facteur 2.5).



Figure 7 : Evolution du champ coercitif de multicouches Si(111)[Co3nm/Sit_{si}nm]*6 en fonction de la température. (a) $t_{si}=3$ nm, est une multicouche qui sature difficilement, (b) $t_{Si}=2.9$ nm, une multicouche qui sature facilement. Pour la multicouche dure (a) le champ coercitif décroît exponentiellement en fonction de la température de plus de deux ordres de grandeur entre 10 K et 200 K et devient non mesurable à plus haute température. Pour la multicouche douce (b) le champ coercitif décroît aussi très fortement mais reste fini à 300 K.

Nous n'avons pas trouvé d'explication théorique à la décroissance "exponentielle" du champ coercitif dans les échantillons durs. Plus plausiblement cette variation traduit le fait que le champ coercitif et l'aimantation rémanente s'annulent strictement à température finie lorsque l'énergie d'anisotropie, bien que non nulle, devient plus faible que le couplage antiferromagnétique. En effet, en présence de couplage antiferromagnétique, l'absence de coercitivité et de rémanence ne signifie pas absence d'anisotropie. La figure 8 (a) présente un agrandissement du type de courbe d'aimantation observée en champ faible et à température ambiante dans les échantillons durs. On y observe la présence d'une zone de pente faible autour de H=0 qui est caractéristique de la présence d'anisotropie dans un système bicouche ou multicouches compensé (nombre pair de couches ferromagnétiques) où domine un couplage antiferromagnétique. Cette zone de pente faible est une réminiscence du plateau d'aimantation nulle que l'on observerait sur un échantillon monocristallin dans la direction de facile aimantation (figure 8 (b)).

Notons qu'en l'absence de couplage antiferromagnétique la valeur de l'énergie

d'anisotropie obtenue par simulation (courbe pleine, figure 8 (a)) soit 15 10^3 erg/cm³ donnerait lieu à un champ coercitif de 10 Oe soit 10 fois plus que dans les échantillons doux à basse température.



Figure 8: (a) Courbe d'aimantation en champ faible typique des multicouches "dures" (cercles). La courbe en trait plein est une simulation dans un modèle de Stoner-Wohlfarth de l'aimantation de deux couches couplées antiferromagnétiquement (distribué de 0 à -0.24 erg/cm^2 , $\langle Js \rangle = -0.12 \ erg/cm^2$) avec une anisotropie uniaxiale aléatoire de 15 $10^3 \ erg/cm^3$. (b) Courbe pour la même bicouche mais selon la direction de facile aimantation ($Js=-0.12 \ erg/cm^2$ non distribué).

En résumé nos mesures de cycles d'hystérésis des multicouches Co/Si nous montrent l'existence d'une oscillation de l'énergie à saturation, de faible à forte, avec une courte période de l'ordre de 0.4 nm en fonction de l'épaisseur de la couche de Si séparatrice. Pour les multicouches dures l'énergie à saturation est presque identique en fonction de la température entre 50 K et 300 K dans la limite des erreurs expérimentales et nous pouvons affirmer, au moins à haute température, que cette énergie de saturation est bien dominée par un fort couplage antiferromagnétique. On remarque toutefois l'existence d'une faible augmentation de l'énergie de saturation en dessous de 50 K associée à l'apparition d'un champ coercitif significatif. Pour les multicouches douces, dont l'énergie de saturation est plus de 10 fois plus faible, on observe une augmentation d'un facteur 2.5 environ de cette énergie entre hautes et basses températures avec, également, augmentation de la coercitivité à basse température, qui reste toutefois bien plus faible.

IV.2.1.3. Part de l'anisotropie dans l'énergie de saturation

L'existence de cycles ouverts pose évidemment la question de la contribution de l'anisotropie magnétique à l'énergie de saturation mesurée. Nous constatons d'ailleurs une corrélation entre le champ coercitif mesuré à basse température, 10 fois plus fort pour les échantillons durs que pour les doux, et l'énergie de saturation forte ou faible des échantillons correspondants. De plus l'augmentation de l'énergie de saturation à basse température semble également corrélée à celle du champ coercitif. Comme nous l'avons vu au chapitre II, la nature métallique ou semiconductrice de l'espaceur se distingue qualitativement par une variation décroissante ou croissante, respectivement, de l'énergie de couplage avec la température. Dans le but d'identifier le type de comportement du couplage, il est nécessaire de faire une évaluation quantitative de la contribution de l'anisotropie à l'énergie de saturation mesurée dans les échantillons à saturation lente pour en déduire une valeur correcte du couplage à chaque température.

En première approximation nous avons supposé un simple additivité des contributions de l'anisotropie et du couplage antiferromagnétique à l'énergie de saturation. Cette approximation n'est valide, strictement, que pour un monocristal perpendiculairement à l'axe de facile aimantation. Elle néglige les effets combinés et antagonistes des deux mécanismes sur l'ouverture du cycle d'aimantation dans la direction de facile aimantation. Dans un modèle de rotation cohérente (Stoner-Wohlfarth) le champ coercitif associé à une énergie d'anisotropie uniaxiale K est égal à 2K/M_s dans un monocristal selon la direction de facile aimantation de facile aimantation. Dans notre cas le champ coercitif de 300 Oe mesuré à 2 K, par exemple, correspondrait à une énergie d'anisotropie de 420 10³ erg/cm³ ou 0.13 erg/cm² (pour une couche de 3 nm d'épaisseur) soit la moitié de l'énergie de saturation totale mesurée. Le couplage antiferromagnétique ne serait alors que de -0.14 erg/cm². Après

soustraction de la contribution de l'anisotropie à toutes les températures nous avons obtenu une estimation de l'énergie de couplage présentée sur la figure 9. On peut y voir que l'augmentation de l'énergie de saturation observée à basse température est, en fait, due à l'augmentation correspondante de l'anisotropie. Il apparaît que le couplage antiferromagnétique, lui, tend à décroître lorsque la température décroît comme on s'y attend pour un espaceur semiconducteur. Par contre l'oscillation du couplage suggèrerait plutôt un caractère métallique du Si. Nous y reviendrons dans le chapitre de discussion générale qui suit.



Figure 9: Evolution de l'énergie de couplage antiferromagnétique de la multicouche Si(111)[Co3nm/Si3nm]*6 à saturation lente en fonction de la température. Cette estimation est obtenue après correction de la contribution de l'énergie d'anisotropie à l'énergie totale de saturation.

Afin de vérifier que l'approximation d'additivité des énergies n'est pas trop grossière nous avons aussi simulé, dans un modèle de Stoner-Wohlfarth, les cycles d'aimantation mesurés à 2 K en présence simultanée d'anisotropie et de couplage antiferromagnétique, comme nous l'avons fait plus haut pour les hautes températures. Compte tenu des effets antagonistes de ces deux énergies sur l'ouverture du cycle nous n'avons pas trouvé de solution unique : l'augmentation du champ coercitif associée à une augmentation de l'anisotropie peut toujours être compensée par une augmentation du couplage antiferromagnétique. Par ailleurs le fait que l'échantillon soit polycristallin ajouté à d'inévitables fluctuations des deux énergies parmi les 6 couches a rendu la recherche de solutions satisfaisantes particulièrement fastidieuse. Nous nous sommes attachés, outre la forme générale du cycle, à reproduire quantitativement 3 points caractéristiques de ceux-ci à savoir, le champ coercitif, l'aimantation rémanente et le champ d'irréversibilité. La figure



Figure 10: Simulations du cycle d'hystérésis observé à 2 K dans la multicouche Si(111)[Co3nm/Si3nm]*6 à saturation lente. Les simulations ont été effectuées dans un modèle de Stoner-Wohlfarth par minimisation de l'énergie libre (échange + anisotropie + Zeeman) à chaque champ. Afin de préserver l'hystérésis le programme de minimisation maintient le système dans son minimum local d'énergie (métastable) tant qu'il existe. Les simulations incluent une distribution aléatoire des directions d'anisotropie (polycristal) ainsi qu'une légère distribution gaussienne (sigma = 30%) de l'énergie d'échange.

10 présente les deux solutions extrêmes que nous avons pu trouver ainsi que la simulation correspondant au couplage (-0.14 erg/cm2) estimé précédemment. On voit que l'énergie d'anisotropie déduite du seul champ coercitif est nettement sous-estimée. Notons qu'en l'absence de couplage le champ coercitif correspondant à l'énergie d'anisotropie de 0.2 erg/cm² (pour une couche de 3nm) déduite de la simulation aurait été de 500 Oe au lieu des

300 Oe observés. Par contre, en ce qui concerne l'énergie d'échange antiferromagnétique, il y a très bon accord entre les valeurs obtenues dans la première approximation et celle obtenue par la simulation. Comme la contribution de l'anisotropie décroît avec l'augmentation de la température nous pouvons considérer comme valable la variation thermique du couplage présenté sur la figure 9.

IV.2.2 Evaluation du couplage dans des vannes de spin (AAF/Co1nm/Sit_{si}nm/Co6nm)

L'étude des multicouches nous a permis de mettre en évidence une oscillation de l'échange magnétique intercouches d'un état de couplage antiferromagnétique fort à un état de couplage ferromagnétique ou faiblement couplé (CF). La nature de ce second état ne peut pas être déterminée dans ce type de système symétrique et compensé. Pour répondre à cette question, nous avons étudié des tricouches Co/Si/Co dont l'une des couches à été "bloquée" (système appelé vanne de spin). Pour ce faire nous avons déposé les tricouches sur un système dit AAF (antiferromagnétique artificiel) dont le mécanisme est brièvement décrit ci-dessous. Pour une discussion détaillée du principe de fonctionnement de l'AAF en fonction d'un champ magnétique extérieur, le lecteur pourra regarder la thèse de Coriolan Tiusan [*Tiusan 00*].

Considérons un système constitué de deux couches ferromagnétiques F d'épaisseurs différentes d_1 et d_2 , de constante d'anisotropie par unité de volume K et d'aimantation M séparées par un métal non magnétique de nature est d'épaisseur telle qu'il existe un fort couplage antiferromagnétique entre les couches F. On se place dans le cadre du modèle de Stoner-Wohlfarth qui suppose un retournement cohérent des aimantations. Les énergies qu'on prend en compte sont : l'énergie Zeeman de chaque couche F, l'énergie de couplage entre les deux couches et l'énergie d'anisotropie magnétocristalline. Le cycle d'hystérésis d'un tel système avec le champ appliqué selon un axe de facile aimantation est présenté sur la figure 11. Pour un champ magnétique élevé (H > Hs), l'AAF est saturé et les deux aimantations sont parallèles (figure 11, état (1)). A partir de Hs et en diminuant le champ appliqué, les moments magnétiques des deux couches magnétiques tournent afin de stabiliser une configuration antiparallèle sous l'effet du couplage AF (figure 11, état (2)).

La configuration antiparallèle est stabilisée pour un champ Hp. Lorsque -Hp<H<Hp, l'énergie de couplage AF domine et par suite les deux couches F restent dans une configuration antiparallèle (figure 11, état (3)). Dans cette plage de champ l'AAF se comporte comme une couche unique de moment net réduit $M(d_1-d_2)$, mais d'anisotropie $K(d_1+d_2)$, par unité de surface. En renversant le sens du champ appliqué, l'orientation des deux moments est préservée jusqu'à une valeur de champ -Hc^{AAF} = 2K(d_1+d_2)/ M(d_1-d_2) nettement plus grand que celui d'une couche seule (2K/M) au-delà duquel les deux moments se retournent tout en gardant une configuration antiparallèle. Pour un champ appliqué H<-Hp, l'énergie Zeeman devient comparable à celle du couplage et les états (5) et (6) sont similaires, mais en sens inverse, aux états (2) et (1), respectivement, de la même figure.



Figure 11 : Cycle d'aimantation d'un AAF obtenu par simulation, dans un modèle monodomaine (Stoner-Wohlfarth). Les états (1) à (6) représentent les configurations de base d'un AAF soumis à un champ magnétique extérieur selon l'axe de facile aimantation.

En résumé, pour les champs compris dans la zone de plateau -Hp<H<Hp, d'autant plus large que le couplage antiferromagnétique est fort, l'AAF se comporte comme une couche ferromagnétique unique dont l'anisotropie serait $Q=(d_1+d_2)/(d_1-d_2)$ fois plus grande que celle d'une couche unique (Q est appelé coefficient de qualité de l'AAF).

Pour notre étude nous avons utilisé la structure AAF élaborée de longue date au laboratoire pour l'étude des jonctions tunnel Co/Al₂O₃/Co à savoir la multicouche Si/Cr1.6nm/Fe6nm/Cu30nm/CoFe3nm/Ru0.8nm/CoFe2nm où la couche de Ru assure un couplage antiferromagnétique fort (-0.2 à -0.3 erg/cm²). Les couches de bases Cr/Fe/Cu forment un tampon sur le substrat Si assurant une bonne croissance, à température ambiante, de l'AAF proprement dit CoFe/Ru/CoFe. Dans notre cas la dernière couche de CoFe2nm à été remplacée par une couche de 1 nm de CoFe sur laquelle nous avons fait croître, à 90K, la tricouche Co1nm/Sit_{Si}nm/Co6nm, avec 2.95nm ≤.tsi ≤ 3.3nm par pas de 0.05 nm, couvrant ainsi une période d'oscillation du couplage.

Un échantillon de référence, sans couche de Co6nm terminale, a aussi été déposé pour mesurer le cycle de l'AAF seul (figure 12, mesure AGFM à 300 K).

Ce cycle est très correctement simulé (courbe pleine sur la figure 12) avec un couplage d'échange Js de -0.2 erg/cm² entre les couches actives de l'AAF, une anisotropie uniaxiale de 250 10^3 erg/cm³ et les aimantations et épaisseurs nominales des différentes couches à l'exception de la couche fine de l'AAF qui a du être réduite à 1 nm (au lieu de 2) dans la simulation pour reproduire le retournement de cette couche autour de Hp. Nous savions que l'interface Ru/CoFe n'est pas abrupte mais nous n'avons pas pris en considération que lors de la préparation le mélange à l'interface Co/Si, bien que formé à 90 K, reste toutefois nettement plus mélangé que les interfaces abruptes Co/Al₂O₃ à l'étude desquelles cette structure était initialement dédiée.



Figure 12 : Cycle d'hystérésis de l'AAF de référence

[Si/Cr1nm/Fe6nm/Cu30nm/CoFe3nm/Ru0.8nm/CoFe1nm/Co1nm] mesuré à 300 K. La courbe en trait plein est une simulation avec $K=250 \ 10^3 \ erg/cm^3$ et $Js=-0.2 \ erg/cm^2$. Le saut d'aimantation autour de H=0 est du à la couche de fer du tampon. L'arrondi autour de Hp et Hc a du être simulé par une distribution d'anisotropie (direction aléatoire et \pm 50% en amplitude). La valeur de normalisation Ms est celle des échantillons comportant en plus la couche terminale Co6nm.





[Si/Cr1nm/Fe6nm/Cu30nm/CoFe3nm/Ru0.8nm/CoFe1nm]. On distingue clairement trois comportements différents. Le type **D** reproduit essentiellement le cycle d'hystérésis de l'AAF de référence avec un saut plus important autour de H=0 dû à la couche de Co supplémentaire qui est donc découplée. Les cycles de type **A** correspondent à des AAF doubles CoFe/Ru/[CoFe/Co]/Si/Co où la couche centrale CoFe/Co est couplée antiferromagnétiquement à ses deux couches adjacentes via Ru et Si. Les cycles **X** correspondent à des échantillons dans lesquels la couche fine centrale a été détruite.

La figure 13 présente les cycles mesurés sur les 8 échantillons à épaisseur de Si variable, à 300 K par AGFM. On distingue clairement trois comportements différents désignés par **D**(écouplé), **A**(ntiferromagnétique) et **X**(inconnu).

Le type **D** reproduit essentiellement le cycle d'hystérésis de l'AAF de référence avec un saut plus important autour de H=0 dû à la couche de Co supplémentaire qui est donc découplée. Comme le montre la figure 14 ce cycle est simplement simulé en ajoutant

seulement une couche supplémentaire non couplée de faible anisotropie ($<20 \ 10^3 \ erg/cm^3$) au modèle de référence de l'AAF.



Figure 14 : Cycle de type **D** observé sur les échantillons AAF/Sit_{Si}nm/Co6nm mesuré à 300 K. La courbe en trait plein est une simulation avec AAF inchangé (cf. fig. 11) auquel a été ajoutée une couche de Co6nm non couplée d'anisotropie K<20 10^3 erg/cm³. La courbe en pointillés est celle de l'AAF seul.

Les cycles de type A sont observés au début et à la fin de la série d'échantillons préparée, soit à un peu moins de 0.4 nm d'écart en épaisseur de Si. Ils présentent un saut d'aimantation environ 4 fois plus important autour d'un champ coercitif moyen réduit d'un facteur 1.5 par rapport à ceux de l'AAF. Un calcul rapide nous montre que c'est ce que l'on peut attendre si la couche terminale Co6nm est couplée antiferromagnétiquement à la couche fine de l'AAF. En effet on obtient alors un AAF double CoFe3nm/Ru0.8nm/[CoFe/Co]1nm/Si3nm/Co6nm où la couche centrale CoFe/Co est couplée antiferromagnétiquement à ses deux couches adjacentes via Ru et Si. Le coefficient de qualité de cet AAF double est alors, grossièrement, de 1.25 [(3+6+1)/(3+61)] contre 2 pour l'AAF seul, soit une rapport de 1.6 entre les champs coercitifs. Le saut d'aimantation correspondant au retournement de l'AAF double est de 8 contre 2 pour l'AAF seul. La simulation présentée sur la figure 15 montre qu'effectivement on obtient un cycle très proche du cycle expérimental en couplant antiferromagnétiquement la couche terminale à la couche fine de l'AAF avec une énergie d'échange de -0.2 erg/cm². Remarquons que, contrairement au cas non couplé des cycles de type **D**, nous avons du donner une anisotropie non négligeable (180 10³ erg/cm³) à la couche terminale sans quoi le champ coercitif serait deux fois plus faible. Nous retrouvons ici la corrélation observée pour les multicouches dans lesquelles l'anisotropie est aussi plus forte lorsque les couches sont couplées antiferromagnétiquement.



Figure 15 : Cycle de type A observé sur les échantillons AAF/Sit_{Si}nm/Co6nm mesuré à 300 K. La courbe en trait plein est une simulation avec AAF inchangé (cf. fig. 11) auquel a été ajoutée la couche terminale de Co6nm couplée antiferromagnétiquement (Js=-0.2 erg/cm²) à la couche supérieure de l'AAF. La courbe en pointillés est celle de l'AAF seul.

Les cycles de type X nous ont posé un sérieux problème d'interprétation. En fait aucun

type de couplage ferro-, antiferro-magnétique ou même biquadratique ne nous a permis de les reproduire sans modifier les caractéristiques de l'AAF de référence. On voit qu'ils présentent un saut d'aimantation comparable à celui de l'AAF seul mais pour un champ coercitif nettement plus faible. En fait nous avons remarqué que ces deux échantillons saturaient totalement dans un champ de 600 Oe sans présenter le signe du retournement de la couche fine de l'AAF entre 2000 et 3000 Oe. Nous en avons conclu que cette couche fine, déjà trop mince comme nous l'avons vu plus haut, avait été détruite, ce qu'a confirmé la simulation présentée sur la figure 16.



Figure 16 : Cycle de type *X* observé sur les échantillons AAF/Sit_{Si}nm/Co6nm mesuré à 300 K. La courbe en trait plein est une simulation avec un AAF dont la couche fine a été enlevée. La couche terminale de Co6nm est non couplée. La courbe en pointillés est celle de l'AAF seul.

En conclusion de cette étude de couches asymétriques nous pouvons affirmer que, si les multicouches à saturation lente sont bien fortement couplées antiferromagnétiquement, les multicouches à saturation rapide sont faiblement couplées. Nous n'avons observé, sur AAF, aucun signe de couplage ferromagnétique significatif.

Ces mesures des cycles d'aimantation des tricouches asymétriques en fonction de l'épaisseur de Si, confirment l'hypothèse que l'oscillation de l'énergie à saturation dans nos multicouches Co/Si correspond bien à une oscillation du couplage magnétique de faible à antiferromagnétique fort, entre les deux couches de Co. C'est la première fois qu'une oscillation du couplage magnétique est mis en évidence expérimentalement dans les multicouches Co/Si, et cela grâce à la réduction du mélange à l'interface des multicouches Co/Si déposées à 90 K par rapport à des multicouches déposées à l'ambiante. Cela montre l'influence de la qualité de l'interface métal ferromagnétique/semi conducteur sur leurs propriétés magnétiques. Nous allons voir que la qualité de l'interface n'est pas la seule condition déterminante pour l'existence d'une oscillation de couplage.

IV.2.4. Effet de la cristallisation sur les propriétés magnétiques des multicouches Co/Si.

Dans le chapitre précédent (chapitre III), nous avons montré que les multicouches Co/Si déposées sur des substrats de Si(111) et celles déposées sur des substrats de verre ont une qualité d'interface comparable. Par contre, alors que les multicouches déposées sur des substrats de Si(111) sont très bien cristallisées, présence de grains de Si et de Co bien cristallisés d'une taille de l'ordre de 300 nm, les multicouches déposées sur un substrat de verre ont une structure amorphe.

Nous n'avons pas répété une étude complète en fonction de l'épaisseur de Si pour les échantillons déposés sur substrat verre mais nous nous sommes focalisés sur une gamme d'épaisseur de Si couvrant une période d'oscillation autour d'une épaisseur de 3 nm qui correspond à un couplage antiferromagnétique dans les multicouches Co/Si déposées sur substrat Si.



Figure 17: (a) comparaison entre les cycles d'hystérésis des multicouches cristallisées (déposées sur substrat Si) et celles des multicouches amorphes (déposées sur substrat verre). Les cycles d'hystérésis des multicouches cristallisées passe de doux à dur magnétiquement en fonction de l'épaisseur de Si, tandis que les cycles d'hystérésis des multicouches amorphes se superposent. (b) évolution de l'énergie de saturation des multicouches cristallisées et des multicouches amorphes, où l'on voit que l'énergie des multicouches cristallisées oscille de faible à fort en fonction de l'épaisseur de Si tandis que l'énergie des multicouches amorphes reste constante.

La figure 17 (a) présente la comparaison entre les cycles d'hystérésis des multicouches bien cristallisées, déposées sur des substrat de Si(111), et des multicouches amorphes, déposées sur des substrats de verre, en fonction de l'épaisseur de Si. On peut y voir clairement l'oscillation entre saturation rapide et saturation lente pour les multicouches déposées sur le Si(111), tandis qu'aucune variation du champ de saturation n'est observée pour les multicouches déposées sur le verre. Le même constat peut être fait sur la figure 17 (b), où on a tracé l'énergie de saturation en fonction de l'épaisseur de Si. Celle-ci ne dépend pas de l'épaisseur de Si dans les multicouches amorphes. Quantitativement l'énergie de saturation des multicouches amorphes est intermédiaire entre celle des multicouches cristallisées dures et douces. En particulier et de façon surprenante, il est plus grand que celui des multicouches cristallisées douces. Pour des échantillons amorphes ou nanocristallins on observe habituellement une forte réduction de l'anisotropie magnétique (anisotropie magnétique aléatoire [Herzer 89 ; Herzer 90]). Nous sommes donc amenés à conclure que l'absence de Si cristallisé conduit à un couplage antiferromagnétique intermédiaire entre les deux situations observées dans les multicouches cristallisées, sans oscillation.

Finalement, la réduction du mélange à l'interface de multicouche Co/Si est insuffisante pour faire apparaître l'oscillation du couplage magnétique dans ces multicouches. Une bonne cristallisation des multicouches est aussi une condition essentielle pour mettre en évidence une telle oscillation. Notons cependant que l'épitaxie parfaite et la monocristallinité n'apparaissent pas nécessaires. Les calculs ab-initio publiés par Enkovaara *[Enkovaara 00]* et ceux faits au laboratoire (chapitre de discussion générale qui suit) montrent d'ailleurs que les mêmes oscillations sont prédites pour différentes structures cristallines et orientations de Co et Si.

IV.2.5. Conclusion partielle sur le couplage dans les multicouches Co/Si et première comparaison avec la théorie.

L'oscillation de couplage magnétique observée dans notre système est en accord qualitatif avec l'oscillation de couplage d'échange magnétique intercouche dans le système Co/Si/Co prévue par le calcul ab initio d'Enkovaara *[Enkovaara 00]*. Dans ce calcul le couplage oscille de ferromagnétique à antiferromagnétique en fonction de l'épaisseur de Si avec une période de deux plans atomiques comme le montre la figure 18. Ce qui est équivalent à notre période expérimentale de l'ordre de 0.4 nm.



Figure 18 : Oscillation du couplage d'échange dans les multicouches Co/Si(n)/Co, obtenue par calcul ab-initio d'Enkovaara [Enkovaara 2000], en fonction de l'épaisseur de Si. Le couplage ferromagnétique (FM) et antiferromagnétique (AF,) entre les couches de Co, correspond respectivement aux valeurs négatives et positives.

Il faut remarquer cependant que, contrairement à ce que montre le travail théorique, nos mesures magnétiques n'ont pas indiqué la présence de couplage ferromagnétique d'amplitude comparable à celle du couplage antiferromagnétique. Par ailleurs elles montrent un comportement inhabituel de l'amplitude du couplage, en l'occurrence l'absence de décroissance rapide de cette amplitude en fonction de l'épaisseur de Si, comme prévu dans tous les modèles théoriques et observé expérimentalement dans tous les systèmes présentant un couplage oscillant. Il faut noter que l'épaisseur d'interface de nos multicouches Co/Si est limitée mais elle n'est pas parfaite. Pour une épaisseur nominale de 1 nm de Si, au début de notre série d'échantillons, il n'y a pas de Si pur. On ne peut donc pas exclure la possibilité qu'à faible épaisseur les effets interfaciaux dominants entraînent une réduction de l'amplitude par rapport à ce qu'elle serait dans un système parfait, ce qui expliquerait l'absence de remontée à faible épaisseur. La présence de trous d'épingle, par exemple, conduirait à un effet de moyenne entre couplage ferromagnétique et couplage antiferromagnétique fort. Par ailleurs on a pu voir sur la figure 2 que pour t_{si}<2.5nm la périodicité de l'oscillation de couplage est moins nette. Nous verrons dans le chapitre suivant que, dans cette plage d'épaisseur, le couplage est plutôt de type biquadratique.

Notons que nous savons déjà que le couplage n'est pas la seule propriété de nos multicouches à présenter un caractère oscillant en fonction de l'épaisseur de Si. Nous l'avons vu au chapitre précédent pour la rugosité d'interface et, dans ce chapitre, pour l'anisotropie magnétique. Nous allons voir maintenant qu'il en est de même pour la résistivité électrique des échantillons.

IV.3. Etude du transport dans les multicouches Co/Si.

La possibilité d'un état métallique du Si dans les multicouches Co/Si, comme nous le verrons dans le chapitre suivant, et l'existence d'un couplage antiferromagnétique entre les deux couches de Co pour certaines épaisseurs de Si ouvrent la porte à un effet possible de magnétorésistance géante (GMR).

La GMR a été découverte en 1988 dans les multicouches Fe/Cr [Baibich 88]. Dans ces multicouches et pour certaines épaisseurs de Cr, l'aimantation des couches de Fe sont antiparallèle (AP) en raison des interactions d'échange indirect au travers de la couche de Cr. On peut passer de la configuration AP à une configuration parallèle (P) par l'application d'un champ magnétique saturant l'échantillon. Ce passage d'une configuration AP à une configuration de la résistance, c'est la GMR.

Cet effet magnéto-résistif géant est dû à l'influence du spin sur la conduction électrique dans un métal ferromagnétique et à l'interface entre métal ferromagnétique (MF) et métal non magnétique (NM). Généralement un métal ferromagnétique (Fe ou Co par exemple) est caractérisé par un décalage des bandes d'énergie des électrons pour chacune des 2 directions de spin. Cela a pour conséquence que les électrons de spin majoritaire (spin up) et les électrons de spin minoritaire (spin down) conduisent le courant en parallèle avec des conductivités différentes. Le mécanisme de GMR est illustré sur la figure 19. Supposons, par exemple, que les électrons de spin majoritaire se propagent plus facilement dans les couches ferromagnétiques et soient moins réfléchis aux interfaces MF/NM. Lorsque les aimantations des couches ferromagnétiques sont dans la configuration P figure 19 (a), ces électrons majoritaires sont peu diffusés dans les deux couches ferromagnétiques et aux

interfaces tandis que les électrons de l'autre direction de spin sont fortement diffusés, on a alors un effet de court circuit pour le courant de spin majoritaire qui entraîne une faible résistance. En revanche, pour une configuration AP des aimantations, figure 19 (b), les électrons de chaque direction de spin sont alternativement fortement puis faiblement diffusés, les deux canaux de courant rencontrent une forte résistance et la résistance électrique globale devient plus grande.



Figure 19: Illustration du mécanisme de la GMR: (a) représente le cas de configuration parallèle des aimantations, les électrons d'une direction de spin sont peu diffusés dans les deux couches ferromagnétiques, alors le court circuit par ce canal entraîne une faible résistance. (b) représente le cas de la configuration anti-parallèle, les électrons de l'une et de l'autre direction de spin sont alternativement peu puis fortement diffusés, l'effet de court circuit disparaît et la résistance devient élevée.

Dans l'étude des propriétés magnétiques, de nos multicouches Co/Si, nous avons montré l'existence d'un couplage antiferromagnétique pour certaines épaisseurs de Si. Ceci nous a conduit à mesurer la conductivité électrique des nos multicouches Co/Si, en particulier pour vérifier la présence ou non d'effet de GMR.

IV.3.1. Mesures de la résistance en fonction de l'épaisseur de Si

La mesure de la résistance de nos multicouches a été faite à l'aide de la méthode simple de 4 points sur des échantillons de 3 mm par 10 mm (3 mm entre contacts de voltage). L'évolution de la résistance des multicouches Co/Si en fonction de l'épaisseur de Si

mesurée à l'ambiante, en champ nul, est présentée sur la figure 20. On voit très clairement que la résistance oscille de faible à forte en fonction de l'épaisseur de Si avec une période de l'ordre de 0.4 nm. Nous avons donc deux états de la résistance en fonction de l'épaisseur de la couche de Si, l'un correspond à une faible résistance (35 Ohms en moyenne) et l'autre correspond à une forte résistance (140 Ohm en moyenne). En terme de résistivité ils correspondent à $60 \ \mu\Omega$.cm et 240 $\mu\Omega$.cm, respectivement. La résistivité des multicouches a été calculée en prenant en compte seulement l'épaisseur totale de Co, nous supposons que la couche de Si conduit mal, ce que nous pourrons remettre en cause dans le chapitre suivant.



Figure 20 : *Résistance et résistivité des multicouche Si(111)*[*Co3nm/Sit_{si}nm*]*6 *en fonction de l'épaisseur de Si, dont on voit l'oscillation à courte période de 0.4 nm.*

Il faut noter que les mesures de la résistance en fonction de la température ont été faites, aussi, entre 5 K et 300 K. Aucune évolution remarquable de la résistance n'a été observée, pour les deux types de multicouches : une multicouche avec faible résistance et l'autre avec forte résistance. La résistance reste quasi constante entre 5 K et 300 K avec une variation de l'ordre de 2-3 % de l'ordre des erreurs expérimentales.
IV.3.2. Corrélation entre les propriétés magnétiques et de transport des multicouches Co/Si

La comparaison entre l'oscillation du couplage magnétique et l'oscillation de la résistance est présentée sur la figure 21. On peut voir que la résistance et l'énergie de saturation oscillent en phase avec une période de 0.4 nm. L'état antiferromagnétique correspond à la forte résistance (\cong 140 ohms) et l'état à faible couplage correspond à la faible résistance (\cong 35 ohms). La corrélation entre la résistance et l'énergie à saturation des multicouches Co3nm/Sit_{Si}nm se voit très clairement sur la figure 22.



Figure 21 : Comparaison entre l'oscillation de la résistance et l'énergie magnétique des multicouches Si(111)[Co3nm/Sit_{si}nm]*6. Les deux oscillations sont en phase (forte énergie de saturation correspond à forte résistance et faible énergie de saturation correspond à faible résistance) avec une courte période de l'ordre de 0.4 nm.



Figure 22 : Corrélation entre résistance des multicouches Si(111)[Co3nm/Sit_{si}nm]*6 et leur énergie de saturation.

Pour autant que les pics d'énergie à saturation soient dus, comme les résultats précédents l'indiquent, à un couplage antiferromagnétique, nous étions dans une situation typique d'effet de GMR à la nuance près que l'espaceur était, ici, un semi-conducteur. Le rapport 4 entre forte résistance et faible résistance nous laissait espérer une diminution de résistance de 400% en saturant un échantillon antiferromagnétique. Malheureusement nous n'avons observé aucune magnéto-résistance notable. Donc l'oscillation de la résistance observée dans nos multicouches en fonction de l'épaisseur de Si, ne peut pas être expliquée par un effet de GMR dans le plan. Faute de temps pour préparer/graver les échantillons nous n'avons pas fait de mesure en courant perpendiculaire. Il est évident que cette mesure devra être faite dans un proche futur. Il faut néanmoins remarquer que le processus de nanostructuration implique un apport d'énergie à nos échantillons ce qui risque d'entrainer une détérioration des couches de la même manière qu'a pu le faire la méthode standard d'amincissement pour les observations MET.

IV.4. Corrélation entre l'oscillation de la rugosité de l'interface et les propriétés physiques des multicouches Co/Si

Dans le chapitre III nous avons mis en évidence une oscillation de la rugosité d'interface en fonction de l'épaisseur de Si dans les multicouches Co/Si. Cette oscillation de rugosité est elle aussi à courte période (0.4 nm et corrélée aux deux autres propriétés physiques (oscillation du couplage magnétique et oscillation de la résistance) observés dans ces multicouches Co/Si en fonction de l'épaisseur de Si. En effet, la faible rugosité d'interface est observée pour les multicouches dans l'état CF et l'interface épaisse correspond à l'état AF comme le montre la figure 23 qui présente les cycles d'aimantation (a) et en face, les spectres de RRX correspondants (b).



Figure 23: Comparaison entre les cycles d'hystérésis des multicouches $Si(111)[Co3nm/Sit_{Si}nm]$ *6 et leurs spectres de RRX. (a) cycles d'hystérésis en fonction de l'épaisseur de Si et (b) les spectres RRX correspondants. Les cycles ferromagnétiques (t_{Si} =2.05, 2.85, 3.3 et 3.75 nm) correspondent à des multicouches avec des interfaces peu rugueuse (présence des franges de Kiessig et pics de Bragg) et les cycles antiferromagnétiques (t_{Si} =2.2, 3, 3.45 et 3.95 nm) correspondent à des multicouches avec des interface rugueuse (disparition des franges de Kiessig et des pics de Bragg).

Cette corrélation entre l'oscillation de la rugosité et l'oscillation du couplage magnétique se voit plus clairement sur la figure 24, sur laquelle on présente l'énergie de saturation et la qualité de l'interface, rugueuse ou plate, en fonction de l'épaisseur de Si.



Figure 24 : Corrélation entre la rugosité de l'interface et l'énergie de saturation des multicouches $Si(111)[Co3nm/Sit_{Si}nm]*6$. Le faible et la forte énergie correspondent respectivement à une interface plate et rugueuse.

IV.5. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons étudié les propriétés magnétiques et de transport des multicouches Co/Si déposées à 90 K par pulvérisation cathodique. Cette étude nous a permis de mettre en évidence, pour la première fois expérimentalement, des phénomènes physiques originaux dans ces multicouches Co/Si, dont, particulièrement, une oscillation à courte période de l'ordre de 0.4 nm (deux monocouches de Si) entre couplage antiferromagnétique et couplage faible prévue par calcul ab-initio. L'autre phénomène que nous avons aussi mis en évidence est une oscillation de la résistance de faible à forte avec

la même courte période. Ces deux phénomènes sont bien corrélés entre eux, maximum de résistance correspond à l'état antiferromagnétique et minimum de résistance correspond à l'état peu couplé. Malgré la forte corrélation entre ces deux phénomènes, aucun effet magnéto-résistif n'a été observé dans le plan des couches, ce qui nous impose de conclure que l'effet GMR n'est pas à l'origine des oscillations de résistance observées dans nos multicouches Co/Si.

Nous avons aussi montré la corrélation entre ces propriétés physique et la structure interfaciale de nos multicouches. Nous discuterons dans le chapitre suivant de(s) l'origine(s) possible(s) des phénomènes observées et de leur corrélation (cause commune sous-jacente ou relation de cause à effet).

Références :

B - C - D

[Baibich 88] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* 61, 2472 (1988)

[Celinski 91] Z. Celinski, B. Heinrich, J. Magn. Magn. Matt. 99, L25 (1991)

[Demokritov 92] S. Demokritov, J. A. Wolf, P. Grunberg, W. Zinn, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* Vol. 231, 133 (1992)

E - F - G

- [Enkovaara 00] J. Enkovaara., A. Ayuela, R. M. Nieminen, *Phys. Rev. B* 62, 16018 (2000)
- [Fuss 92] A. Fuss, S. Demokritov, P. Grunberg, W. Zinn, J. Magn. Magn. Matt. 103, L221 (1992)
- [Grünberg 86] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky, H. Sowers, *Phys. Rev. Lett.* 57, 2442 (1986)

Η

- [Herzer 89] G. Herzer, IEEE Trans. Magn. 25, 332 (1989)
- [Herzer 90] G. Herzer, IEEE Trans. Magn. 26, 332 (1990)
- [Heinrich 91] B. Heinrich, J. F. Cohran, M. Kowalewski, J. Kirschener, Z. Celinski, A. S. Arrott, K. Myrtle, *Phys. Rev. B* 44, 9348 (1991)
- [Huang 91] Y. Y. Huang, G. B. Felcher, S. S. P. Parkin, J. Magn. Magn. Matt. 99, L31 (1991)
- [Heinrich 94_2] Chapter 2, in Ultrathin Magnetic Structures II, ed. by B. Heinrich, J. A. C. Bland (Springer-Verlag, Telos, Decembre 1994)
- [Heinrich 94_3] Chapter 3, in Ultrathin Magnetic Structures II, ed. by B. Heinrich, J. A. C. Bland (Springer-Verlag, Telos, Decembre 1994)
- [Heinrich 94_4] Chapter 4, in Ultrathin Magnetic Structures II, ed. by B. Heinrich, J. A. C. Bland (Springer-Verlag, Telos, Decembre 1994)

J

[Johnson 92] M. T. Johnson, S. T. Purcell, N. W. E. McGee, R. Coehoorn, J. aan de Steg, W. Hoving, *Phys. Rev. Lett.* 68, 2688 (1992)

P

- [Parkin 90] S. S. P. Parkin, N. More, K. P. Roche, Phys. Rev. Lett. 64, 2304 (1990)
- [Parkin 91_a] S. S. P. Parkin, Phys. Rev. Lett. 67, 3598 (1991)
- [Parkin 91_b] S. S. P. Parkin, A. Mansour, G. P. Felcher, *Appl. Phys. Lett.* 58, 1473 (1991)
- [Purcell 91] S. T. Purcell, W. Folkerts, M. T. Johnson, N. W. E. McGee, K. Jager, J. Aan de Stegge, W. P. Zeper, P. Grunberg, *Phys. Rev. Lett.* 67, 903 (1991)

R - U

- [Rodmacq 91] B. Rodmacq, P. Mangin, C. Vettier, Europhys. Lett. 15, 503 (1991)
- [Ruhrig 91] M. Ruhrig, R. Schafer, A. Hubert, R. Mosler, J. A. Wolf, S. Demokritov, P. Grunberg, *Phys. Status Solidi*, A125, 635 (1991)
- [Unguris 91] J. Unguris, R. J. Celotta, D. T. Pierce, Phys. Rev. Lett. 67, 140 (1991)
- [Unguris 97] J. Unguris, R. J. Celotta, D. T. Pierce, Phys. Rev. Lett. 79, 2734 (1997)

Chapitre V

Discussion générale

Chapitre V

Discussion générale

V.1. Introduction

Dans les chapitres III et IV nous avons présenté respectivement les propriétés structurales, magnétiques et de transport de nos multicouches Co/Si déposées par pulvérisation cathodique à 90 K. Des phénomènes originaux ont été mis en évidence dans ces multicouches tels que : (1) L'oscillation de l'énergie à saturation qui est attribuée à une oscillation du couplage d'échange magnétique intercouche (d'antiferromagnétique fort (AF) à couplage faible (CF)) au travers de la couche de Si. (2) L'oscillation de la résistance en fonction de l'épaisseur de la couche de Si entre un état faible résistance et un état forte résistance, avec une amplitude de l'ordre d'un 4 entre maximum et minimum. (3) L'oscillation de la rugosité (ou diffusion) d'interface en fonction de l'épaisseur de Si. Ces trois phénomènes oscillent en fonction de l'épaisseur de Si avec une période d'oscillation courte de l'ordre de 0.4 nm.

L'oscillation du couplage d'échange magnétique et de la résistance, dans les multicouches Co/Si, sont bien corrélés entre elles, le maximum de résistance correspond à l'état AF et le minimum de résistance correspond à l'état CF. Malgré la forte corrélation entre ces deux phénomènes, aucun effet de GMR n'a été observé dans les multicouches Co/Si. L'oscillation de la rugosité d'interface dans les multicouches Co/Si est, elle aussi, corrélés aux deux autres propriétés physiques.

Ce chapitre est consacré à la discussion des différents phénomènes observés dans nos multicouches Co/Si. Sur un plan général, ces phénomènes sont des signes indubitables d'un changement périodique de la structure électronique des multicouches Co/Si ou de la couche de Si elle-même, à l'échelle de la monocouche de Si. Nous allons essayer de trouver et nous discuterons l(es)'origine(s) possible(s) des différents phénomènes observés. Nous serons amenés à examiner le problème selon deux approches. En premier nous examinerons la possibilité d'expliquer la corrélation observée entre les trois propriétés comme ayant une cause commune sous-jacente. La seconde approche, sachant l'influence de la structure des multicouches sur leurs propriétés, consistera à considérer les corrélations en termes de relation de cause à effet entre la rugosité des couches et les deux autres propriétés. Il restera que, même dans la seconde hypothèse, nous devrons trouver la cause primaire de l'oscillation de rugosité.

V.2. Interprétation(s) possible(s) de l'oscillation du couplage magnétique dans les multicouches Co/Si

Dans cette partie nous discutons l(es)'interprétation(s) possible(s) de l'oscillation de couplage observée en fonction de l'épaisseur de la couche de Si. Dans un premier temps nous mettrons en évidence les similitudes (et les différences) entre nos résultats expérimentaux et les prédictions théoriques de Enkovaara *[Enkovaara 00]* qui avaient suscité cette étude et les calculs ab-initio d'Olivier Bengone dans les tricouches Co/Si/Co. Dans un deuxième temps nous confronterons ces résultats avec le modèle standard d'interférences quantiques. Nous discuterons en particulier la dépendance en température du couplage et sa variation en fonction de l'épaisseur de Si. Finalement nous examinerons la possibilité que l'oscillation de la rugosité d'interface en fonction de l'épaisseur de Si dans les multicouches Co/Si (cf chapitre III) soit à l'origine d'un tel comportement du couplage.

V.2.1. Oscillation du couplage magnétique dans les multicouches Co/Si et confrontation avec les calculs ab-initio.

(*Remarque* : outre les calculs d'Enkovaara et al. les calculs ab initio présentés dans cette partie ont été effectués par Olivier Bengone à l'IPCMS).

Le couplage attendu théoriquement dans un système MF/SC/MF est un couplage d'échange indirect par effet tunnel (couplage magnétique entre deux couches F à travers une couche séparatrice NM non métallique, cf II.2.3). Mais, dans un tel cas, que ce soit dans le modèle de Slonczevski (cf II.2.3.1) ou le modèle d'interférence quantique de P. Bruno (cf II.2.3.2) le couplage d'échange magnétique doit être de nature AF (ou F) avec une décroissance exponentielle en fonction de l'épaisseur de la couche séparatrice isolante et non oscillant comme nous l'avons observé expérimentalement.

D'un autre coté, l'oscillation de couplage observée dans nos multicouches Co/Si est en accord, au moins qualitatif, avec le comportement prévu par calculs ab-initio de Enkovaara *[Enkovaara 00]*. Dans ce calcul ab-initio, Enkovaara et al. montrent l'existence d'un couplage magnétique oscillant de AF à F entre le deux couches de Co à travers une couche de Si. La période de l'oscillation prédite est de deux plans atomiques comme le montre la figure 1. Cette période d'oscillation, obtenue à partir des calculs ab-initio, est égale à la période d'oscillation observée expérimentalement dans nos multicouches Co/Si de 0.4 nm.



Figure 1 : Oscillation du couplage d'échange dans les multicouches Co/Si(n)/Co, obtenue par calcul ab-initio de Enkovaara [Enkovaara 00], en fonction de l'épaisseur de Si. Le couplage ferromagnétique (F) et antiferromagnétique (AF) entre les couches de Co, correspond respectivement aux valeurs négatives et positives de ΔE ($E_F - E_A$).

Le fait que, dans le calcul de Enkovaara, le couplage soit oscillant a été attribué par ces auteurs à l'absence de gap dans la structure électronique du Si en couche mince lorsque la couche de Si est confinée entre deux couches ferromagnétiques de Co. La présence d'un pseudo gap et donc de porteurs dans le semi-conducteur serait une tendance générale dans les multicouches métal de transition/SC. Dès lors Enkovaara et al. suggèrent que la structure électronique d'un système MF/SC/MF peut être décrite dans un modèle de puits quantique et le passage périodique des résonances de puits quantique au niveau de Fermi serait à l'origine de l'oscillation de l'énergie d'échange intercouche (IEC).

Le confinement d'un électron dans une boîte de potentiel d'épaisseur D conduit à une résonance pour $2kD + \phi_1 + \phi_2 = 2n\pi$, qui correspond à une interférence constructive de l'onde électronique (n est un entier, $\phi_{1(2)}$ représentent le déphasage subit par les ondes électronique lors de la réflexion sur l'interface 1(2) et k est la composante du vecteur d'onde électronique perpendiculaire aux interfaces). La résonance implique un pic de densité d'état électronique dans la couche séparatrice pour le vecteur d'onde considéré. L'état de puits quantique sera dénommé QWS (Quantum Well State) dans la suite. L'évolution des résonances de puits quantique en fonction de l'épaisseur de la couche séparatrice est présentée schématiquement sur la figure 2. De manière générale le système est stabilisé lorsque, pour certaines épaisseurs, il y a une résonance à l'énergie de Fermi. Comme, de plus, l'écart en énergie entre les QWS et le niveau de Fermi dépend de la configuration, parallèle ou antiparallèle, des aimantations des couches MF, on voit la possibilité qu'une de ces configurations soit stabilisée par rapport à l'autre si elle permet à un QWS d'être au niveau de Fermi. Le calcul de Enkovaara montre que, pour un nombre pair de monocouches de Si et pour une configuration parallèle des aimantations dans les couches de Co, il existe en effet un QWS du Si au niveau de Fermi. Ce serait donc ce QWS qui stabiliserait un couplage ferromagnétique pour ces épaisseurs.



Figure 2 : Représentation schématique de l'évolution des résonances de puits quantique avec l'épaisseur de la couche séparatrice. Les trois panneaux illustrent les états liés dans le puits (lignes) et les résonances au dessus du puits (ellipses floues). Les flèches indiquent comment chaque résonance se déplace en fonction de l'épaisseur [Stile 04]

En résumé, selon Enkovaara, le fait qu'il n'y ait qu'un pseudo gap dans la structure de bande du Si suggère que l'oscillation de couplage est de même nature que dans le cas d'une couche séparatrice métallique. Nous discuterons cette hypothèse après avoir décrit les calculs ab-initio de Olivier Bengone (IPCMS).

Les calculs ab-initio de Enkovaara ont été faits pour des multicouches composées seulement de deux plans atomiques de Co hexagonal et avec un Si de structure hexagonale contraint au paramètre de maille de Co massif. Le calcul a été effectué dans le formalisme de la fonctionnelle de densité (DFT, density-functional theory) en utilisant la méthode de FLAPW (full-potential linearized augmented plane-wave) [Blaha 97]. Le potentiel d'échange de corrélation a été calculé dans l'approximation de gradient généralisé (GGA) de Perdew et al. [Perdew 96]. Il faut noter aussi que les calculs ab-initio d'Enkovaara ont été réalisés pour des multicouches Co/Si avec une interface parfaite sans interdiffusion à l'interface.

Afin d'étendre les calculs ab-initio à une situation plus proche de nos multicouches réelles Olivier Bengone a fait ses calculs dans les tricouches Co/Si/Co pour des épaisseurs

de Si nettement plus importantes et en introduisant des défauts aux interfaces et dans la couche de Si. De plus, par contraste avec le travail de Enkovaara les calculs ont été faits pour du Si de structure diamant confiné entre 2 couches semi-infinies de Co cfc. Les trois couches étaient orientées selon la direction <100> et le réseau du Si a été contraint d'adopter le pas de réseau du Co. Les calculs ont été effectués en utilisant la fonction de Green de surface [Drchal 96 ; Turek 97], dans une approximation de liaisons fortes sur une base LMTO (Linear Muffin-Tin Orbitals) [Andersen 75]. Le spin a été traité dans une approximation de densité locale (avec le paramétrage de Vosko-Wilk-Nusair [Vosko 80]).

Trois cas ont été étudiés : (1) le premier est le cas idéal, qui correspond à une interface parfaite sans interdiffusion entre les atomes de Co et les atomes de Si. (2) Dans le deuxième cas une interdiffusion a été introduite à l'interface entre le Co et le Si (2 plans atomiques mélangés avec 20%(80%) de mélange de chaque coté). (3) Dans le troisième cas des impuretés de Co (10 %) ont été introduites de façon homogène dans toute la couche de Si. La figure 3 présente les résultats de ces calculs pour les 3 différents cas.

Bien que les méthodes et les conditions de calcul soient différentes de celles du travail de Enkovaara, nous retrouvons dans le cas idéal une oscillation du couplage d'échange magnétique de l'état F à l'état AF en fonction de l'épaisseur de Si. L'oscillation de couplage est à courte période de l'ordre de 2 plans atomiques. Cette oscillation de couplage est présentée sur la figure 3 (cas idéal). Ce résultat d'oscillations du couplage obtenu par les calculs de Olivier Bengone est, qualitativement, similaire au résultat de Enkovaara. Nous remarquons cependant que les oscillations sont très dissymétriques : les demi-périodes antiferromagnétiques sont d'énergies nettement plus fortes et, au dessus de 10 monocouches de Si (2 nm) on observe essentiellement une oscillation entre couplage antiferromagnétique fort et couplage faible comme dans nos observations expérimentales.



Figure 3 : Résultats de calculs ab-initio dans les tricouches Co/Si(n)/Co obtenus par le calcul ab-initio d'Olivier Bengone. Nous avons étudié 3 cas différents : $1^{ére}$ cas idéal (sans diffusion à l'interface), $2^{éme}$ cas avec interdiffusion à l'interface et $3^{éme}$ cas Si dopé par 10% de Co. Dans le deux premiers cas, nous avons une oscillation du couplage d'échange en fonction de l'épaisseur de Si, le couplage ferromagnétique (F) et antiferromagnétique (AF) entre les couches de Co, correspond respectivement aux valeurs négatives et positives de l'énergie d'échange. Dans le $2^{éme}$ cas l'amplitude du couplage diminue d'un ordre de grandeur environ en raison de l'interdiffusion. Dans le $3^{éme}$ cas nous avons un couplage AF qui décroît rapidement en fonction de l'épaisseur de Si pour devenir F vers 5 M et décroître ensuite.

Lorsqu'on introduit de l'interdiffusion à l'interface Co/Si, ce qui correspond mieux à notre système expérimental, on trouve toujours une oscillation du couplage d'échange magnétique (de l'état AF à l'état F) en fonction de l'épaisseur de Si. Cependant, dans ce cas, l'amplitude du couplage d'échange est beaucoup diminuée par rapport au cas idéal,

d'environ un ordre de grandeur. La figure 4 montre un agrandissement de la figure 3 où on a placé une échelle d'énergie en erg/cm² (à droite) pour comparer quantitativement valeurs théoriques et expérimentales. On peut remarquer que si l'amplitude déduite du calcul dans le cas idéal est beaucoup plus grande que celle du couplage expérimental, celle déduite dans le cas d'interdiffusion est tout à fait comparable à celle du couplage expérimental (0.15 à 0.2 erg/cm²). Malheureusement la précision des calculs n'a pas permis de pousser l'épaisseur de Si vers des valeurs aussi grandes que dans le cas idéal. Nous ne pouvons donc pas vérifier la tendance observée à forte épaisseur à n'avoir que des oscillations entre couplage AF fort et couplage faible (CF).



Figure 4 : Oscillation du couplage d'échange dans les tricouches Co/Si(n)/Co, obtenu le calcul ab-initio de Bengone, en fonction de l'épaisseur de Si. L'amplitude d'oscillation du couplage est donnée en mRy (échelle de gauche) et en erg/cm^2 (échelle de droite) pour comparaison avec les valeurs expérimentales.

Le troisième cas étudié par calcul ab-initio correspond à l'existence d'impuretés dans la couche de Si (concentration homogène de 10% d'atomes de Co dans la couche de Si). Dans ce cas, nous n'avons plus d'oscillation à courte période du couplage d'échange. Le

couplage, AF à faible épaisseur de Si, décroît pour devenir un couplage F au-delà de 5 ML de Si qui décroît à son tour pour devenir négligeable aux fortes épaisseurs de Si. Un comportement similaire du couplage d'échange a été observé par Faure-Vincent et al. dans le système Fe/MgO/Fe *[Faure-Vincent 02]*. Le couplage AF était interprété comme un couplage par effet tunnel magnétique, et le passage du couplage MF à F avec l'épaisseur de la barrière était expliqué comme une conséquence du couplage magnétostatique (peau d'orange), ce qui n'est évidemment pas le cas dans cette étude théorique. Ce même type de comportement a aussi été discuté par Zhuravlev et al. *[Zhuravlev 05]* en termes d'impuretés dans la barrière tunnel, ce qui correspond bien à notre troisième cas. Dans le cas où la barrière n'est pas parfaite, la présence des impuretés ou des défauts peut créer des états localisés dans le gap de l'isolant. Lorsque le niveau d'énergie d'impuretés se trouve au niveau de Fermi ou au dessous du niveau de Fermi, alors le couplage est respectivement de nature AF ou F. Quoi qu'il en soit ce comportement ne correspond pas à nos observations expérimentales et on peut exclure la possibilité que notre oscillation de couplage ait comme origine la présence d'impuretés de Co dans la couche de Si.

En résumé les calculs ab-initio dans les tricouches Co/Si/Co montrent l'existence d'une oscillation du couplage d'échange magnétique à courte période aussi bien dans le cas idéal que dans le cas d'interdiffusion. Ces résultats sont en accord qualitatif (période) avec notre résultat expérimental et même quantitatif (amplitude) dans le cas du modèle théorique avec interdiffusion.

Il faut noter toutefois que le fait qu'expérimentalement l'oscillation du couplage magnétique à courte période soit observée dans des multicouches de structure polycristalline, sans direction de croissance préférentielle, est un peu étonnant. Remarquons que les études théoriques présentées ci-dessus montrent que la période de l'oscillation est la même pour deux structures et deux orientations de croissance différentes, Si hc <0001> et Si diamant <001>. Par ailleurs nos avons vu que l'oscillation de couplage n'est observée que si les grains monocristallins sont grands et le rapport d'aspect de ces grains (300/3) les rend comparables, individuellement, à une couche monocristalline. Il reste qu'il faut que l'oscillation de couplage soit en phase pour une majorité de grains ce qui est surprenant. On pourrait aussi invoquer que la couche de Si se comporte, dans son ensemble, comme un gaz d'électrons à deux dimensions.

V.2.2. Oscillation de couplage dans les multicouches Co/Si dans le modèle d'interférence quantique et dépendance en température.

Au vu des densités d'états locales sur le Si que donnait leur calcul ab initio, Enkovaara et al. ont suggéré que les oscillations de couplage que montraient ce calcul résultaient d'effets d'interférences quantiques dans l'espaceur de Si. Cette suggestion était supportée d'une part



Figure 5 : Densité d'état du Si dans une tricouche Co/Si5ML/Co. Deux exemples qui correspondent au plan de Si à l'interface et au plan de Si central. On remarque l'absence de gap dans la structure. La courbe pointillée en rouge représente le cas du Si massif.

en raison de l'absence de vraie bande interdite dans la structure de bande du Si et, d'autre part, en raison de l'observation de pics de résonance (Quantum Well States) au niveau de Fermi pour les épaisseurs de Si telles que le couplage est ferromagnétique. Dans le calcul de Bengone, présenté sur la figure 5, on remarque en effet l'absence de gap dans la structure de bande du Si comme dans le calcul de Enkovaara. Notons que le code utilisé pour les calculs de Bengone, lissant les densités d'états, on ne peut pas distinguer clairement la présence d'états de puits quantique.

Si nous considérons l'absence de bande interdite dans le Si, à la limite, celui-ci se comporterait plutôt comme un métal que comme un semi-conducteur dans le système Co/Si/Co. Nous avons donc examiné si nos résultats pouvaient être simulés, à *titre indicatif*, dans le modèle d'interférence quantique de Bruno avec espaceur métallique. L'ajustement à l'expression 6 du chapitre II, de l'oscillation de couplage magnétique observée expérimentalement est présenté sur la figure 6. La valeur de k_F déduite à partir de cet ajustement est de l'ordre de 0.75 10⁸ cm⁻¹.



Figure 6 : Ajustement de la courbe expérimentale d'oscillation de couplage magnétique par le modèle d'interférence quantique (modèle des électrons libres).

Nous avons injecté la valeur de k_F dans le terme dépendant de la température du modèle de Bruno (Expression 7 chapitre II), pour voir quelle variation de l'énergie pouvait être

attendue entre 0 K et 300 K. Pour les paramètres représentatifs, tels que $D=3 \ 10^{-7} \ cm$, $T=300 \ K \ et \ k_F=0.75 \ 10^8 \ cm^{-1}$ on trouve que :

$$\frac{2\pi k_B TD/(\hbar^2 k_F)}{\sinh(2\pi k_B TD)/(\hbar^2 k_F)} = 0.889,$$

soit une diminution de l'intensité de couplage de l'ordre de -11 % entre 0 K et 300 K. En ce qui concerne l'énergie de saturation mesurée cette variation serait dans les erreurs expérimentales et ne pourrait donc infirmer ni confirmer la validité de l'hypothèse. Mais après correction de la contribution de l'anisotropie l'intensité du couplage est plutôt, comme nous l'avons vu, une fonction croissante de la température. De plus nous n'avons pas observé les arches de couplage ferromagnétique fort que prévoit le modèle. Il semble donc exclu que le Si se comporte comme un simple métal.

L'hypothèse inverse consistant à considérer que le Si se comporte comme un isolant ordinaire est également exclu du fait de la présence d'oscillation de couplage. Cependant on peut imaginer que le Si se comporte encore comme tel lorsqu'il n'y a pas de QWS au niveau de Fermi, c'est-à-dire pour les arches AF de l'énergie de couplage. Dans ce cas l'intensité du couplage est supposée croître avec la température, comme cela est effectivement observé expérimentalement, une fois prise en compte la variation en température de l'anisotropie magnétique (paragraphe IV.2.1.3).

Si nous acceptons une origine quantique à l'oscillation de couplage que nous avons observée nous sommes donc amenés à conclure que le Si se comporte de manière atypique dans le système Co/Si/Co, ni semi-conducteur, ni métal. En l'absence de théorie plus avancée pour un séparateur ne présentant qu'un pseudo gap nous pouvons spéculer que, en l'absence de QWS au niveau de Fermi, le couplage serait de nature AF, dominé par un effet tunnel et que, dans le cas contraire où il y a un QWS au niveau de Fermi, il serait dominé par les états électroniques de vecteur d'onde réel autour de k_F et plutôt de nature F. La faible variation thermique du couplage résulterait d'un comportement intermédiaire entre celui du semi-conducteur où la (dé)population thermique des états liés proches du niveau de Fermi augmente le couplage par effet tunnel et celui du métal où l'élargissement thermique de la distribution de Fermi diminue le couplage.

Il reste que dans tous les modèles théoriques, généraux ou simulations numériques ab-

initio, l'intensité du couplage décroît assez rapidement avec l'épaisseur de l'espaceur. Nos mesures, elles, ne montrent qu'une faible décroissance de l'oscillation du couplage d'échange magnétique en fonction de l'épaisseur de la couche de Si. Comme évoqué dans le chapitre précédent et comme nous le verrons plus en détail dans la section suivante la rugosité et les fluctuations de l'épaisseur de Si en résultant, peuvent expliquer pourquoi on ne voit pas l'augmentation de couplage à faible épaisseur de Si, en raison d'un effet de moyenne entre couplage F et AF. Par contre cet argument ne peut pas expliquer la lente décroissance de l'amplitude de couplage aux fortes épaisseurs de Si. Dans le modèle d'interférence quantique nous ne disposons pas d'élément nous permettant d'évaluer l'échelle de la décroissance (en $1/D^2$ pour un espaceur métallique ou exponentielle pour un espaceur isolant). Expérimentalement la décroissance est lente et donc nous gardons une préférence pour la décroissance en $1/D^2$ qui est la plus lente des décroissances proposées par les modèles dont nous disposons. Par contre la simulation ab initio de Bengone révèle une décroissance de plus d'un ordre de grandeur entre 10 et 20 monocouches (2 à 4 nm de Si) ce qui n'est certainement pas le cas expérimentalement.

V.2.3. Oscillations de l'énergie de saturation et rugosité en fonction de l'épaisseur de Si

Nous avons montré, dans le chapitre III (III.3.2), que la rugosité d'interface oscille en fonction de l'épaisseur de Si dans les multicouches Co/Si. Cette oscillation de la rugosité d'interface est corrélée aux propriétés magnétiques observées dans ces multicouches en fonction de l'épaisseur de Si, comme indiqué en IV.4. La question qui se pose est la suivante : est ce que l'oscillation de la rugosité de l'interface induit une oscillation du couplage magnétostatique dans les multicouches Co/Si, et par suite est-elle à l'origine de l'oscillation de l'épaise est contribution de l'épaise est couplage magnétostatique dans les multicouches Co/Si, et par suite est-elle à l'origine de l'oscillation de l'épaise est contribution de l'épaise est couplage magnétostatique dans les multicouches Co/Si, et par suite est-elle à l'origine de l'oscillation de l'épaise est couplage magnétostatique dans les multicouches Co/Si, et par suite est-elle à l'origine de l'oscillation de l'épaise est couplage magnétostatique dans les multicouches Co/Si, et par suite est-elle à l'origine de l'oscillation de l'épaise de saturation ?

Dans le chapitre II, nous avons vu que la rugosité à longue distance, une ondulation des interfaces, crée un couplage de nature magnétostatique entre le deux couches MF à travers une couche séparatrice non magnétique. L'amplitude de ce couplage croît comme le carré h^2 de l'amplitude des ondulations. Nous pouvons donc imaginer que les oscillations de rugosité observées soient responsables de celles du couplage. Le couplage magnétostatique

a une dépendance exponentielle en fonction de l'épaisseur D de la couche séparatrice, ce qui se traduirait par une énergie de saturation exponentiellement décroissante. L'échelle de cette décroissance est donnée par la période moyenne L des ondulations. Dans notre cas la première source de rugosité à longue distance qui vienne à l'esprit est la présence de gros grains monocristallins. A l'échelle L de la taille de ces grains (300 nm) la décroissance d'un éventuel couplage magnétostatique en fonction de l'épaisseur de Si serait très lente ce qui est un point d'accord avec l'observation expérimentale mais c'est probablement le seul, comme nous allons le voir.

Si nous voulons expliquer les oscillations de couplage observées par une oscillation de couplage magnétostatique celui-ci doit

- 1. en premier lieu, être de type antiferromagnétique
- 2. avoir une intensité comparable aux valeurs mesurées

Le cas le plus habituel de couplage magnétostatique dû à une ondulation des couches est celui où l'ondulation de l'interface supérieure reproduit celle de l'interface inférieure. Cette corrélation, en phase, des deux ondulations est la première qu'on puisse imaginer lorsqu'on dépose une couche d'épaisseur (à peu près) homogène. Dans ce cas les deux couches MF sont couplées ferromagnétiquement. Nous pouvons donc l'éliminer.

Dans le cas où les ondulations sont décorrélées entre les deux interfaces un couplage de nature biquadratique (positionnement des aimantations à 90°) est favorisé. Ce dernier couplage (couplage biquadratique) mérite d'être discuté, nous y revenons ci-dessous, mais il n'explique pas les résultats expérimentaux, de manière générale.

Pour avoir un couplage magnétostatique de type antiferromagnétique il faut que les ondulations des deux interfaces soient corrélées mais en opposition de phase. On peut imaginer une telle situation si le matériau dont est formée la couche séparatrice a tendance à se mettre en boule. On trouve de tels cas dans la littérature pour de faibles épaisseurs d'un matériau séparateur mouillant mal les couches adjacentes (couches granulaires). Cependant aucun cas, à notre connaissance, de couplage antiferromagnétique n'est rapporté dans ces cas où l'existence de trous d'épingle favorise un couplage d'échange ferromagnétique direct. En ce qui concerne notre cas nous n'avons pas d'évidence d'une telle topologie des couches de Si par MET en section transverse mais nous n'avons pas non plus fait

d'observations systématiques en raison de notre mise en œuvre tardive de la technique du coin clivé. Cependant, compte tenu de la nature très réactive des éléments en présence il semble exclu que le Si se ramasse en boule dans la couche séparatrice ce qui ne peut avoir lieu que pour des matériaux non miscibles.

En ce qui concerne l'intensité attendue du couplage magnétostatique nous n'avons pas d'expression théorique pour des ondulations en opposition de phase mais elle diffère sans doute peu de celle publiée pour des ondulations en phase puisque l'interaction dipolaire a lieu entre les pôles magnétiques situés sur les faces latérales de l'ondulation :

$$J_1 = \frac{\pi^2}{\sqrt{2}} \mu_0 M_s^2 \frac{h^2}{L} e^{-2\pi\sqrt{2}D/L}$$

En prenant pour *h* la pire valeur de la rugosité mesurée (2 nm) et 3 nm pour l'épaisseur D de l'espaceur cette expression donne une valeur maximale de 0.07 erg/cm^2 pour une période L de 30 nm. Pour L=300 nm elle n'est que de 0.01 erg/cm^2 . Au plus, et dans le pire des cas, le couplage magnétostatique n'atteint qu'un tiers des valeurs mesurées.

Au vu de ces deux arguments, en particulier le premier, il nous apparaît très peu plausible que l'oscillation de rugosité donne lieu à l'oscillation de couplage observée entre couplage antiferromagnétique fort et couplage faible. Nous avons d'ailleurs vu que la rugosité était plus probablement due à une interdiffusion qu'à une ondulation des interfaces.

En revanche la rugosité de l'interface affecte certainement le couplage observé. Nous avons discuté plus haut de l'effet de l'interdiffusion. Nous avons également évoqué le fait qu'une inhomogénéité d'épaisseur de la couche de Si pouvait expliquer l'absence d'augmentation du couplage à faible épaisseur de Si. C'est cette question que nous examinons plus précisément ici.

Pour répondre à cette question il faut reprendre les cycles d'hystérésis présentés dans le chapitre précédent. On remarque que, à faible épaisseur de Si ($t_{Si}<2.5nm$), les cycles qui saturent difficilement présente aussi un champ coercitif et une aimantation rémanente non nuls, même à haute température, et la forme autour du champ nul est différente de celle observée pour les épaisseurs plus grandes de Si ($t_{Si}\geq3nm$). Ces deux types de cycles sont présentés sur la figure 6, la figure 6 (a) correspond à $t_{Si}=2.2nm$ et la figure 6 (b) à $t_{Si}=3.45nm$.



Figure 6 : Différences entre les cycles à saturation lente mesurés à 300 K pour les faibles épaisseurs de Si (a) $t_{Si}=2.2$ nm (couplage biquadratique) et les fortes épaisseurs de Si (b) $t_{Si}=3.45$ nm (couplage AF).

Pour avoir des informations sur l'origine de cette différence des formes, nous avons fait une simulation qualitative de cycles d'hystérésis d'une bicouche symétrique en épaisseur de Co au moyen de modèle de Stoner-Wohlfarth (rotation cohérente des aimantations). Les énergies prises en compte sont : l'énergie Zeeman de chaque couche MF, l'énergie de couplage bilinéaire et/ou biquadratique entre les deux couches et une légère énergie d'anisotropie magnétocristalline.

Les résultats de cette simulation sont présentés sur la figure 7. La figure 7 (a) représente le cycle d'hystérésis dans le cas où les deux couches de Co sont couplées au moyen d'un couplage biquadratique, on remarque que ce cycle a la même forme (qualitative) que le cycle présenté sur la figure 6 (a) avec un coercitif et une rémanence non nuls, suivie d'une saturation lente pour 1/3 de l'aimantation totale. Pour annuler coercitif et rémanence il faut un couplage de type AF entre les deux couches de Co, comme le montre la figure 7 (b) qui reproduit (qualitativement) le spectre expérimental représenté sur la figure 6 (b), avec un coercitif nul et la forme particulière autour du champ nul associée, comme nous l'avons vu au chapitre précédent, à une énergie d'anisotropie faible par rapport au couplage AF.



Figure 6 : Cycles d'hystérésis simulés à l'aide de modèle de Stoner-Wohlfarth. (a) correspond à un couplage biquadratique entre les deux couches de Co. (b) correspond à un couplage AF entre les deux couches de Co. Outre le couplage intercouche une énergie d'anisotropie de 5 Kerg/cm³ a été ajoutée dans chaque couche qui fait apparaître l'hystérésis en cas de couplage biquadratique et la plage de faible pente autour de H=0 en cas de couplage antiferromagnétique.

A faible épaisseur de Si, les cycles sont donc caractéristiques de la présence d'un couplage biquadratique plutôt qu'antiferromagnétique entre les deux couches de Co. Par contre la forme des cycles d'hystérésis pour une épaisseur de Si plus élevée ne peut être décrite que par un couplage de nature AF (annulation de coercitif).

Ce couplage biquadratique peut-il être de nature magnétostatique

$$J_2 \approx -\mu_0 M_s^4 \frac{h^2 L}{A_{ex}} e^{-4\pi D/L}$$

Nous voyons qu'il disparaît vite en fonction de l'épaisseur de Si, à l'échelle de 1 nm, ce qui peut correspondre à la décroissance exponentielle attendue. La période moyenne L d'ondulation de surface serait de l'ordre de 10 nm ce qu'on ne peut exclure. Si on évalue l'intensité de ce couplage (avec la valeur de A_{ex} la plus citée de 10^{-6} erg.cm pour Co, D=2 nm et h=2 nm et L=10 nm) on trouve une valeur de -0.01 erg/cm² un ordre de grandeur trop faible. Cependant cette valeur augmente rapidement avec L et pour L=30 nm on trouve une valeur de -0.2 erg/cm^2 compatible avec l'expérience.

A la limite le couplage biquadratique observé à faible épaisseur de Si pourrait donc être de nature magnétostatique, cependant ce n'est pas l'hypothèse que nous favoriserons. Il est en effet beaucoup plus probable, comme dans la plupart des systèmes où ont été observées des oscillations de couplage F à AF, que le couplage biquadratique résulte de la frustration due aux fluctuations locales d'épaisseur et d'un mécanisme à la Slonczewski *[Slonczewski 91 ; Slonczewski 95]*.

$$J_2 \approx -\frac{(\Delta J_1)^2 L}{A_{ex}}$$

Si on évalue l'intensité de ce couplage avec $\Delta J_I = 0.3 \text{ erg/cm}^2$ (1.5 fois le couplage AF mesuré pour t_{Si} =3 nm ou la valeur de ΔJ_I autour de 2 nm dans les calculs théoriques avec interdiffusion, fig. 4) et A_{ex} = 10⁻⁶ erg.cm on trouve $J_2 \sim -0.01 \text{xL}_{nm}$ ce qui peut être compatible avec l'expérience. Avec une période d'oscillation de 2 plans atomiques entre couplage F et AF il suffit de fluctuations d'épaisseur de 0.1 nm pour induire un tel couplage. Par ailleurs le fait qu'à plus forte épaisseur de Si on n'observe plus ce couplage biquadratique s'explique très bien, si l'on suit les calculs ab initio, par l'absence d'arche ferromagnétique dans l'oscillation de couplage et donc pas de frustration d'orientation entre zones voisines d'épaisseur différentes.

En conclusion de cette analyse des effets de la rugosité sur l'intensité et les oscillations du couplage magnétique dans nos multicouches Co/Si/Co nous retiendrons donc que ce n'est pas l'oscillation de rugosité qui est responsable de l'oscillation de couplage. Tout au plus la rugosité est responsable de l'absence d'augmentation de ce couplage à faible épaisseur du séparateur par effet de moyenne entre couplage ferro- et anti-ferromagnétique.

Ainsi, le mécanisme de couplage magnétique est donc bien de nature identique à celui prévu par les calculs ab-initio de Enkovaara et de Bengone : l'oscillation de couplage magnétique dans les multicouches Co/Si serait lié à des effets d'interférences quantiques en l'absence de gap dans la structure de bande du Si lorsque la couche de Si est confinée entre deux couches ferromagnétiques de Co.

V.3. Origine(s) possible(s) de l'oscillation de la résistance

La résistance des nos multicouches Co/Si oscille de faible à forte, avec un facteur $\cong 4$ entre maximum et minimum, en fonction de l'épaisseur de Si. Normalement, pour deux échantillons préparés indépendamment dans deux séries différentes par pulvérisation cathodique, la résistance se reproduit d'un échantillon à l'autre avec une erreur de l'ordre de 10 %. Donc, le facteur 4, entre minimum et maximum de résistance, que nous avons obtenu, montre que l'oscillation systématique de la résistance est due à un réel effet physique et pas à une simple erreur expérimentale.

Nous avons montré dans le chapitre IV, que cette oscillation de la résistance est synchrone avec l'oscillation du couplage magnétique dans les multicouches Co/Si. L'état AF correspond à une forte résistance (\cong 140 ohms) et l'état CF correspond à une faible résistance (\cong 35 ohms). Cependant la forte résistance dans l'état AF ne provient cependant pas d'un effet de GMR : elle ne diminue pas quand on sature l'échantillon sous champ.

Nous avons aussi examiné la possibilité que l'oscillation de résistance dans nos multicouches Co/Si soit due à un effet de super-réseau, modification, due à la superpériode, de la structure de bande par repliement dans la nouvelle zone de Brillouin réduite (à une dimension). Si tel était le cas, on s'attendrait, en diminuant le nombre de bicouches, à une disparition du comportement oscillatoire de la résistance en fonction de l'épaisseur de Si *[Gallego 95]*. Nous avons, donc, déposé des multicouches Co/Si avec 2, 6 et 12 périodes de Co/Si.

La variation de la résistance en fonction de l'inverse du nombre de période est montrée sur la figure 9. Comme le montre cette figure, et quel que soit le nombre de bicouches déposées (2, 6, 12), nous avons toujours deux états de la résistance (min et max) bien définis avec le même rapport en fonction de l'épaisseur de la couche de Si. De plus, la figure 9 montre un comportement linéaire ordinaire pour les deux configurations CF et AF en fonction de l'inverse du nombre de période (ou de l'épaisseur totale de la multicouche). Cet effet ne croit donc pas avec le nombre de bicouches. Donc l'oscillation de la résistance ne peut pas être expliquée par un effet de super réseau de même qu'elle ne montre pas d'effet "multicouche" comme c'est le cas de la GMR dans le plan. Cette observation indique que chaque état correspond à une structure électronique différente à l'échelle de la bi(tri)couche Co/Si(/Co).



Figure 9: Variation de la résistance des multicouches Si(111)[Co/Si] en fonction de l'inverse de nombre de bicouches. Le nombre de bicouches est noté au dessus de chaque point sur la figure. On observe un comportement linéaire pour la configuration à faible couplage (symbole ouvert), comme pour la configuration antiferromagnétique (symbole fermé). Cette figure montre que la variation de la résistance n'est due ni à un effet de super-période ni à un effet « multicouche ».

Il nous faut noter que, dans ces 3 séries d'échantillons, la résistance dans l'état CF est égale (~35 Ω pour 6 bicouches) à celle mesurée dans tous les échantillons CF. Cependant le rapport entre valeur minimale et maximale de la résistance n'est que de 2 et non 4 comme vu avant. Ces 3 séries ont été préparées de manière légèrement différente des autres séries : nous avons utilisé une ouverture deux fois plus large du masque en face des substrats eux-mêmes plus larges (ces échantillons étaient destinés à des mesures de réflectométrie neutronique). Il est très probable que cette différence dans les conditions de préparation, en particulier du flux de chaleur en provenance des magnétrons, soit responsable de la différence observée dans les propriétés de transport. Elle est moins

radicale cependant que lorsque nous avons utilisé un substrat verre, ou des magnétrons inclinés ce qui avaient conduit une disparition totale de l'oscillation.

V.3.1. Origine quantique de l'oscillation de résistance en fonction de l'épaisseur de Si

Nous avons vu plus haut (V.2.1) que la structure électronique d'un système MF/SC/MF pourrait être décrite par un modèle de puits quantique. Plus précisément, les propriétés magnétiques pourraient être modulées par le passage périodique d'un QWS du Si au niveau de Fermi. Dans notre système l'état CF correspond à une faible résistance ce qui s'expliquerait si ce QWS ouvre des canaux supplémentaires de conductivité dans la couche de Si. Inversement, lorsqu'il n'y a pas de QWS proche du niveau de Fermi le système est alors dans l'état AF et la résistance est plus grande. Nous pouvons donc comprendre les oscillations corrélées de couplage magnétique et de résistance en fonction de l'épaisseur de Si comme un effet du passage de niveaux de QWS du Si par le niveau de Fermi du système. Comme l'énergie des états de puits quantique dépend de l'épaisseur de la couche séparatrice, alors la résistance peut osciller entre deux valeurs (min et max) par modification de la distance entre le niveau de Fermi et l'énergie des états de puits quantique.

Cependant avant d'accepter cette explication de nature quantique directe il nous faut examiner la possibilité que la variation de résistance ait pour cause, plus banale, la variation corrélée de rugosité aux interfaces.

V.3.2. Oscillation de la résistance et oscillation de la rugosité en fonction de l'épaisseur de Si.

La question, bien évidemment, qui se pose ici est la suivante : est ce que l'oscillation de la résistance peut être due, tout simplement, à l'oscillation de la rugosité de l'interface ? Pour répondre à cette question, il faut faire une évaluation de la résistance dans les deux cas extrêmes de rugosité en prenant en compte l'épaisseur de Co dans chaque cas.

Nous avons vu (chapitre IV) que la rugosité des interfaces des multicouches Co/Si oscille entre 0.5 nm (au mieux) et 2 nm (au pire). Si on suppose que l'intégralité la zone rugueuse est non conductrice alors nous avons deux épaisseurs conductrices de Co qui, pour une épaisseur déposée de 3 nm sont réduites à 2.5 nm et 1 nm respectivement. Ceci nous indique que, au plus, la résistance des échantillons serait multipliée par 2.5 entre extrema, à résistivité constante. Cette première évaluation ne tient pas compte d'un éventuel effet de taille sur la résistivité des couches ultra-minces. La résistivité d'une couche de Co de structure polycristalline à température nulle a été étudiée par *[Woosi 2005]* qui en a tiré une expression empirique pour les couches ultra-minces :

 $\rho(0) = \rho_b(0)[1 + d_c/d]$ avec $\rho_b(0) = (11\pm 1)\mu\Omega.cm$, la valeur du Co massif par définition, $d_c = (18\pm 1)nm$ une épaisseur caractéristique et d l'épaisseur de la couche de Co. A l'ambiante il faut multiplier la valeur de $\rho(0)$ par un coefficient de l'ordre de 1.2 (pour la contribution des magnons et des phonons).

Pour les deux épaisseurs (2.5 et 1 nm) de Co conductrices considérées dans les cas extrêmes ci-dessus les résistivités attendues seraient alors dans un rapport 2 et, compte tenu du rapport d'épaisseur conductrice, les résistances seraient dans un rapport 5. Il faut donc pousser l'effet de rugosité à la limite du vraisemblable pour obtenir le rapport de résistance observé expérimentalement.

A titre indicatif l'expression empirique ci-dessus donne une valeur de résistivité de 90 $\mu\Omega$.cm à l'ambiante pour une épaisseur nominale de 3 nm et une résistance de 50 Ω pour 6 couches de Co en parallèle contre 35(140) Ω mesurés dans les échantillons lisses(resp. rugueux).

Notons que pour obtenir le rapport de résistance mesuré nous avons supposé dans le raisonnement ci-dessus que la zone interfaciale est non (ou faiblement) conductrice ce qui peut se concevoir, à la limite, s'il s'agit d'une zone interdiffusée. Si la rugosité supplémentaire des échantillons de type AF est à longue distance (ondulations de l'interface) elle ne peut pas expliquer l'augmentation de résistance.

Nous ne rejetons donc pas un effet de la rugosité sur les résistances mesurées mais nous

148

retiendrons au même titre l'hypothèse de canaux de conduction supplémentaires dans le Si dans l'état CF.

V.4. Oscillation de la rugosité de l'interface et structure électronique du Si dans les multicouches Co/Si

Que les oscillations du couplage et de la résistivité soit dues à un effet quantique direct ou soient une conséquence de l'oscillation de rugosité, ce que nous pensons peu vraisemblable en tout cas pour le couplage, il reste à expliquer l'origine de l'oscillation de la rugosité d'interface.

L'existence de QWS est maintenant bien établie pour des couches métalliques minces déposées sur un substrat métallique [*Miller 88 ; Paggel 99 ; Kawakami 99*], sur un substrat semi-conducteur ou sur un substrat isolant [*Jaklevic 71 ; Jalochowski 92 ; Evans 93 ; Abelle 01_a ; Abelle 01_b*].

Récemment, Hong Liu et al. ont montré que le passage d'un QWS au niveau de Fermi d'une couche mince stabilise sa surface *[Hong 04]*. En particulier, lors de l'étude du dépôt d'une couche mince d'Al sur Si(111) à 145 K, ces auteurs ont montré que la surface de cette couche devient très lisse, pour une épaisseur critique de 4 plans atomiques. Cette épaisseur critique correspond précisément à l'existence d'un QWS au niveau de Fermi. Un tel mécanisme de stabilisation d'une surface est, en principe, très général.

Dans cette ligne nous spéculons donc que le passage périodique d'un QWS par le niveau de Fermi stabilise la surface de nos couches de Si lors de leur dépôt.

Cette spéculation est, sans nul doute, hardie, considérant que

- nos échantillons sont polycristallins, ce serait donc la face supérieure de ces grains qui présenterait ce que l'on peut appeler une "transition rugueuse" (ici en fonction de l'épaisseur non de la température). Notons toutefois que le rapport d'aspect de ces grains (300/3) les rend comparables, individuellement, à une couche monocristalline.
- 2. les directions de croissance des grains sont diverses. Il faut supposer que les

résonances QWS sont peu dépendantes de l'orientation cristalline. Nous avons vu, d'ailleurs, que les calculs ab initio prédisent une période des oscillations de couplage identique pour au moins deux orientations de croissance. Les états électroniques pertinents dans le Si s'apparenteraient à un gaz d'électrons libres.

3. la variation de rugosité est très importante, de plus de 5 plans atomiques, pour une variation d'épaisseur déposée de 1 monocouche. Remarquons que ce constat étonnant doit être pris en compte quel que soit le mécanisme responsable des variations de rugosité. En fait il semble tout à fait invraisemblable qu'une surface, supposée lisse (ou peu mélangée) pour une certaine épaisseur, devienne nettement plus rugueuse (ou plus mélangée) sur 5 plans atomiques supplémentaires après dépôt d'une seule monocouche et, réciproquement. Il est habituel pour les systèmes qui croissent couche par couche (ou pour certains bicouche par bicouche) de trouver un maximum de rugosité en milieu de période (une demie couche ou une couche) mais l'amplitude de cette rugosité ne dépasse pas la demie période.

Paradoxalement c'est le dernier constat, extrêmement surprenant, qui apporte un support à notre spéculation. La seule explication vraisemblable que nous ayons trouvée pour nos observations structurales est la suivante. Quelle que soit l'épaisseur de Si déposée à basse température la couche est relativement lisse. Cependant pour certaines épaisseurs il y a un état résonant au niveau de Fermi et pour d'autres non. Lors de la remontée à température ambiante les premières, stabilisées par le QWS, présentent une faible mobilité atomique et des interactions chimiques réduites avec le Co déposé au dessus et au dessous et l'interdiffusion est limitée. Une situation analogue à une surface de Si "passivée", dans la terminologie de la chimie du Si. Par contre, pour les épaisseurs où les couches ne développent pas de QWS, les atomes de Si aux interfaces sont plus mobiles, Co et Si interagissent et diffusent fortement. L'augmentation de rugosité ou de mélange observée pour les multicouches AF se produirait à température ambiante, non durant le dépôt. De telles modifications lors du retour à température ambiante ont été observées par des expériences in situ sur les couches Fe/Si/Fe [Briner 94]. Selon ces auteurs les effets seraient moindres avec FeNiB amorphe, ce qui se comprend en raison de la présence de 20% de bore.

V.6. Conclusion

En conclusion, l'étude de propriétés magnétiques et de transport des multicouches Co/Si déposées à 90 K, nous a permis de mettre en évidence, pour la première fois expérimentalement, des phénomènes physiques originaux dans ces multicouches Co/Si, tels que : une oscillation du couplage d'échange magnétique d'antiferromagnétique fort à faible (ferro- ou antiferro-magnétique) et une oscillation de la résistance de faible à forte avec un facteur \cong 4 entre maximum et minimum. Ces deux phénomènes sont bien corrélés entre eux. Malgré la forte corrélation entre ces deux phénomènes (le maximum de résistance correspond à l'état antiferromagnétique et le minimum de résistance correspond à l'état de couplage faible) aucun effet de GMR n'a été observé. Donc, l'effet GMR ne peut pas expliquer l'oscillation de la résistance observée dans nos multicouches Co/Si.

Nous avons montré aussi que l'oscillation de la rugosité d'interface est, elle aussi, corrélée aux deux autres propriétés physiques. Nous avons interprété ces trois résultats en termes communs suggérant la formation ou le passage périodiques d'un QWS dans la couche de Si au niveau de Fermi, QWS prévu par les calculs ab-initio d'Enkovaara.

Ainsi, les trois phénomènes observés dans les multicouches Co/Si déposées à basse température (90 K) en fonction de l'épaisseur de Si, oscillation de couplage d'échange magnétique, oscillation de la résistance et oscillation de la rugosité d'interface de plate à rugueuse, s'expliqueraient de manière unifiée par la formation d'un QWS au niveau de Fermi dans la couche de Si pour des épaisseurs critiques multiples de 0.4 nm. Il est toutefois plausible que l'oscillation de résistance soit une conséquence de l'oscillation de rugosité interfaciale.

Par ailleurs nos mesures magnétiques montrent des comportements inhabituels du couplage d'échange magnétique: une décroissance très lente de l'oscillation du couplage magnétique en fonction de l'épaisseur de Si et une variation thermique de ce couplage de type couplage tunnel en contradiction avec la présence d'oscillation. La théorie actuelle du couplage d'échange n'explique pas ces résultats ce qui demande plus de recherche et de développement dans ce domaine.

Références :

A - B

- [Abelle 01_a] L. Abelle, C. Rogero, S. Gokhale, S. Kulkarni and K. Horn, Surface Science 582-485, 488-494 (2001)
- [Abelle 01_b] L. Abelle, C. Rogero, P. Kratzer, S. Gokhale, and K. Horn, *Phys. Rev. Lett.*87, 156801-156804 (2001).

[Andersen 75] O. K. Andersen, Phys. Rev. B 12, 3060 (1975)

[Briner 94] B. Briner, M. Landolt, Phys. Rev. Lett. 73, 340 (1994)

[Blaha 97] P. Blaha, K. Schwarz, and J. Luitz, WIEN97, Vienna University of Technology, 1997 (An improved and update Unix version of the copyrighted WIEN code, which was published by P. Blaha, K. Schwarz, P. Sorantin, and S.B. Trickey, Comput. Phys. Commun. 59, 399 (1990))

D - **E** - **F**

[Drchal 96] V. Drchal, J. Kudrnovsk, I. Turek, Comp. Phys. Comm. 97, 111 (1996)

[Evans 93] D. A. Evans, M. Alonso, R. Cimino, and K. Horn, Phys. Rev. Lett. 70, 3483 (1993)

[Enkovaara 00] J. Enkovaara, A. Ayuela, R. M. Nieminen, Phys. Rev. B 62, 16018 (2000)

[Faure-Vincent 02] J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehen, F. Montaigne, and Alain Schuhl, *Phys. Rev. Lett.* 89, 107206 (2002)

G - H

- [Gallego 95] J.M. Gallego, D. Lederman, S. Kim, and Ivan K. Schuller, *Phys. Rev. Lett.*74, 4515, (1995)
- [Hong 2004] Hong Liu, Y.F. Zhang, D.Y. Wang, M.H. Pan, J.F. Jia, and Q.K. Xue, Surface Science 571, 5-11 (2004)

J - K

[Jaklevic 71] R. C. Jaklevic, J. Lambe, M. Mikkor, and W. C. Vassell, *Phys. Rev. Lett.* 26, 88 (1971)
- [Jalochowski 92] M. Jalochowski, H. Knoppe, G. Lilienkamp, and E. Bauer, *Phys. Rev. B* 46, 4693 (1992)
- [Kawakami 99] R. K. Kawakami, E. Rotemberg, H. J. Choi, E. J. Escorcia-aparicio, M. O. Bowen, J. H. Wolf, E. Arenholz, Z. D. Zhang, N. V. Smith, and Z. Q. Qiu, *Nature (London)* 398, 132 (1999)

M - P

[Miller 88] T. Miller, A. Samsavar, G. E. Franklin, and T. C. Chiang, *Phys. Rev. Lett.* 61, 1404 (1988)

[Perdew 96] J. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, Phys. Rev. Lett. 77, 3865 (1996)

[Paggel 99] J. J. Paggel, T. Miller, and T. C. Chiang, Science 283, 1709 (1999)

S - T - V- Z

[Slonczewski 91] J. C. Slonczewski, Phys. Rev. Lett. 67, 3172 (1991)

- [Slonczewski 95] J. C. Slonczewski, J. Magn. Magn. Mater. 150, 13 (1995)
- [Stiles 04] M. D. Stiles, in *Ultrathin Magnetic Structures III*, ed. by B. Heinrich, J. A. C. Bland (Springer-Verlag, Berlin, 2004)
- [Turec 1997] I. Turek, V. Drchal, J. Kudrnovsk, P. Weinberger, *Electronic Structure of Disordered Alloys, Surfaces and Interfaces* (Kluwer, Boston-London-Dordrecht, 1997)

[Vosko 80] S. H. Vosko, L. Wilk, M. Nusair, Can. J. Phys. 58, 1200, (1980)

- [Zhuravlev 05] M. Ye. Zhuravlev, E. Y. Tsymbal, and A. V. Vedyayev, *Phys. Rev. Lett.*94, 026806 (2005)
- [Zhang 06] P. Zhang, E. Tevaarwerk, B.N. Park, D.E. Savage, G.K. Celler, I. Knezevic, P.G. Evans, M.A. Eriksson, and M. Lagally, *Nature* 439, 704 (2006)

Conclusion et perspectives

Conclusion et perspectives

Les propriétés magnétiques des systèmes MF/SC sont très controversées et voir même quelques fois incompréhensibles. Cela est attribué au fort processus de diffusion atomique, à l'interface du système MF/SC, donnant lieu à des interfaces très étendues qui sont à l'origine des divers comportements magnétiques observés dans ce système. Dans le travail de cette thèse, nous avons étudié les propriétés structurales, magnétiques et de transport des multicouches Co/Si déposées par pulvérisation cathodique à basse température (90 K) dans le but de limiter la diffusion aux interfaces.

Nous avons pu montrer, à partir des études structurales, que le dépôt des multicouches Co/Si à basse température (90 K) par pulvérisation cathodique limite le mélange à l'interface des multicouches Co/Si. De façon surprenante nous avons également obtenu des multicouches très bien cristallisées quoique polycristallines, avec une taille de grains très grande > 300 nm. Cela nous a permis de mettre en évidence, pour la première fois expérimentalement, des phénomènes physiques originaux dans les multicouches Co/Si : (1) Oscillation du couplage d'échange magnétique de antiferromagnétique fort (AF) à faible (CF) en accord avec les résultats de calculs ab-initio, (2) Oscillation de la résistance de faible à forte avec un facteur \cong 4 entre maximum et minimum et (3) Oscillation de la rugosité de l'interface, en fonction de l'épaisseur de Si. La période des oscillations est courte, de l'ordre de 0.4 nm. Aucun de ces effets n'a été observé sur les échantillons contenant du silicium amorphe ou nanocristallin, ce qui explique la diversité des résultats rapportés dans la littérature car, pour les observer, il est non seulement nécessaire de réduire le mélange aux interfaces, mais également obtenir du Si bien cristallisé. Lorsqu'ils sont observés, les 3 phénomènes sont bien corrélés entre eux. Le maximum de résistance correspond à l'état AF et à des interfaces assez rugueuses, alors que le minimum de résistance correspond à l'état CF et des interfaces peu rugueuses.

Nous proposons une explication de nature quantique à ces phénomènes. En effet, les calculs ab initio montrent que la structure électronique d'un système MF/SC/MF peut être décrite par un modèle de puits quantique. Les 3 phénomènes observés peuvent alors être interprétés en termes communs suggérant la formation ou le passage périodique d'un état de puits quantique (QWS) dans la couche de Si au niveau de Fermi. Nous obtenons alors deux cas. (1) Lorsqu'un QWS du Si passe au niveau de Fermi, le système se trouve dans l'état CF, il possède une faible résistance (QWS ouvre des canaux supplémentaire de conductivité dans la couche de Si) et présente une interface plate (QWS stabilise la surface de couches de Si). (2) Inversement, lorsqu'il n'y a pas de QWS proche du niveau de Fermi, le système est alors dans l'état AF, avec une forte résistance et une interface rugueuse. Néanmoins, il faut noter que nous n'excluons pas un effet de la rugosité sur les résistances mesurées mais nous retiendrons cette hypothèse au même titre que celle de l'origine quantique de l'oscillation de la résistance. En plus de ces effets, le système présente des comportements inattendus. Tout d'abord on observe une faible décroissance de l'oscillation du couplage en fonction de l'épaisseur de Si. Dans les modèles théoriques et les simulations numériques, l'intensité du couplage décroît assez rapidement avec l'épaisseur de l'espaceur. Cette question reste donc ouverte. Ensuite, alors que l'observation d'oscillations de couplage suggère que le Si possède un caractère « métallique », l'intensité du couplage AF croit avec la température, ce qui est caractéristique d'un couplage au travers d'un matériau isolant ou semiconducteur. De nombreuses questions restent donc posées. Quoi qu'il en soit, ces résultats peuvent renouveler l'intérêt pour les systèmes MF/SC tant du point de vue fondamental que technologique dans le domaine de l'électronique de spin.

Parmi les perspectives à ce travail, la première consiste à tenter de mettre en évidence expérimentalement les QWS dans la couche de Si. Ces états, prédits par calcul, sont à la base de l'interprétation de nos résultats, il est donc important de tenter de les mettre directement en évidence. Ensuite, nos résultats de mesures de transport ont été obtenus en faisant passer le courant dans le plan de l'échantillon, il serait intéressant d'étudier le transport en géométrie perpendiculaire pour confirmer les oscillations de résistance dans cette configuration. Pour cela il faudra trouver un processus de nano structuration sans étape de chauffage pour ne pas risquer d'endommager l'interface métal/semi-conducteur. Enfin il serait intéressant d'étudier d'autres systèmes MF/SC déposés à basse température dans le but de voir si les phénomènes observés dans le Co/Si existent aussi dans les autres systèmes.

RESUME

Nous avons étudié les propriétés structurales et physiques des multicouches Co/Si déposées par pulvérisation cathodique à 90 K dans le but de limiter la diffusion aux interfaces. Nous avons obtenu des multicouches très bien cristallisées quoique polycristallines, formées de très grands grains > 300 nm et un mélange limité par rapport à celui des multicouches déposées à 300 K. Cela nous a permis d'observer des phénomènes physiques nouveaux, originaux et spectaculaires dans ces multicouches : (1) Oscillation du couplage d'échange magnétique en accord avec les calculs ab initio, (2) Oscillation de la résistance de faible à forte et (3) Oscillation de la rugosité de l'interface, en fonction de l'épaisseur de Si. La période des ces oscillations, bien corrélées entre elles, est courte de l'ordre de 0.4 nm soit 2 ML. Cela nous a conduit de proposer une interprétation commune de ces résultats, basé sur le passage périodique au niveau de Fermi d'un état de puits quantique dans la couche de Si.

Mots Clés : multicouches magnétiques, semi-conducteur, Co, Si, couplage d'échange magnétique intercouche, puits quantiques, effet d'interface, magnétorésistance.

ABSTRACT

In this work we studied the structural and physical properties of the Co/Si multilayers deposited by sputtering at 90 K with the aim of limiting the interdiffusion at interfaces. We have obtained very well crystallized multilayers although polycristalline, formed of very big grains > 300 nm with limited interfacial mixing as compared to that of multilayers deposited at 300 K. It allowed us to observe new, original and spectacular physical phenomena in these multilayers: (1) Oscillation of the interlayer exchange coupling in agreement with ab-initio calculations, (2) Oscillation of the multilayer resistance from weak to strong and (3) Oscillation of the roughness of the interface, according to the thickness of Si. The period of these oscillations, which are well correlated between them, is short of the order of 0.4 nm (2 ML). This led to us to propose a common interpretation of these results, based on the periodic passage at the Fermi level of a quantum well state in the Si layer.

Keywords : magnetic multilayers, semiconductor, Co, Si, interlayer exchange coupling, quantum well states, interface effects, magnetoresistance.

DISCIPLINE :

Physique de la matière condensée.

LABORATOIRE :

Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg (IPCMS) Groupes d'Etudes des Matériaux Métallique (GEMME) 23 rue de Loess 67034 Strasbourg