

INSTITUT DE PHYSIQUE ET DE CHIMIE DES MATÉRIAUX DE STRASBOURG

THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE STRASBOURG

Mouvement du spin de l'électron dans les systèmes Fe/Ag(001) et MgO/Fe(001)

par

THIBAUT BERDOT

Soutenue publiquement le 04/07/2011 devant le jury composé de :

Wolfgang WEBER	Directeur de thèse
Henri-Jean DROUHIN	Rapporteur externe
Michel HEHN	Rapporteur externe
Eric BEAUREPAIRE	Examineur interne



REMERCIEMENTS

Je voudrais remercier tous les amis et collègues qui m'ont aidé à terminer cette thèse. Par qui commencer ? Bien sûr, l'ordre ne signifie pas grand-chose ici. Naturellement, je pense à ma famille : mon père, ma mère, mon frère qui m'ont toujours soutenu et encouragé dans la voie que j'ai choisie. Leur appui a été décisif dans la réalisation de cette thèse.

Tous les profs qui m'ont fait aimer la physique. Sans eux, je n'aurais sans-doute jamais découvert les joies de la recherche. Mr Jardot, mon professeur en collège, pour son enthousiasme à transmettre son savoir. Mr Jeanblanc et Mme Fritsch, et A. Ponche pour sa bonne humeur et son optimisme lors de mon stage de Master 1.

Plus en rapport avec la thèse : toutes les personnes qui ont contribué à l'achèvement de cette grande aventure. D'abord, Logane Tati-Bismaths, qui m'a initié aux secrets de la manipe. Merci de m'avoir transmis ton savoir avec amitié. Puis, mes collègues : Ali Hallal et Puja Dey, pour toutes les heures agréables passées ensemble en salle de manipe et toutes les discussions fructueuses autour d'un café. Merci à Manu Acosta, Daniel Spor, Jacek Arabski et Jacques Faerber toujours prompts à aider en cas de soucis technique. Merci à Fabrice Scheurer et à Virginie Speisser de m'avoir prêté du matériel tout au long de cette thèse, avec gentillesse. Merci à Abdelkader Bourzami, avec qui j'ai eu la chance de travailler pendant 3 mois, et dont l'expérience et les conseils m'ont été précieux.

Evidement, je ne peux oublier les personnes qui, parfois sans même le savoir, m'ont offert un soutien important. Merci à Laureen Mangot , merci à la "dream team" de l'ipcms : Thomas Gelot, Jean Besbas, Bertrand Yuma pour tous les bons moments passés ensemble. Et à tous les autres thésards : Saqib Javaid, Jean-Baptiste Beaufrand, Vina Faramarzi, et j'en oublie, ce fut un plaisir de vous voir tous les jours.

Enfin, j'adresse mes plus sincères remerciements à mon directeur de thèse : Wolfgang Weber. Le soutien, les conseils et les critiques toujours pertinentes dont tu m'as fait bénéficier m'ont été très précieux.

« Le bonheur c'est de chercher. »

Jules Renard

Table des matières

I	Théorie et dispositif expérimental	5
1	Spin et mouvement du spin	1
1.1	Le Spin de l'électron	1
1.1.1	Expérience de Stern et Gerlach	2
1.1.2	Formalisme de Pauli	3
1.2	Polarisation d'électrons	5
1.2.1	Etat de spin	5
1.2.2	Faisceau d'électrons	7
1.3	Mouvement du spin	9
1.3.1	Interactions d'un faisceau d'électrons polarisés avec la matière	9
1.3.2	Effet d'un ferromagnétique	10
2	Techniques expérimentales	15
2.1	Dispositif expérimental	15
2.2	Principe de l'expérience	16
2.3	Production d'électrons polarisés en spin	17
2.3.1	Principe de l'émission d'électrons polarisés par un crystal d'AsGa	18
2.3.2	Activation du cristal d'AsGa	20
2.3.3	Cellule de Pockels	22
2.4	Chambre principale	23
2.4.1	Optiques électroniques	23

2.4.2	Analyseur en énergie	24
2.4.3	Porte échantillon	25
2.4.4	Evaporateurs	26
2.4.5	Microbalance à quartz	28
2.4.6	Décapage ionique	29
2.4.7	Spectroscopie Auger	29
2.4.8	Diffraction d'électrons lents	31
2.4.9	Schéma des potentiels dans l'expérience	32
2.5	Détection de spin	34
2.5.1	Diffusion de Mott	35
2.5.2	Fonctionnement du détecteur de Mott	36
2.5.3	Mesure du mouvement du spin	40
2.5.4	Accélération à 100 keV	42

II Résultats et discussion 43

3 Mouvement du spin dans le système Fe/Ag(001) 45

3.1	Echantillon	45
3.1.1	Substrat	45
3.1.2	Fe : propriétés cristallographiques	46
3.1.3	Etude du mode de croissance	47
3.2	Etudes précédentes	51
3.2.1	Résultats	51
3.2.2	Oscillations dues à un effet de puits quantique	53
3.2.3	Oscillations dues à la variation périodique du paramètre de maille	56
3.3	Résultats	58
3.4	Discussion	61
3.4.1	Méthode de calcul	61

3.4.2	Relaxation hors-plan de la distance intercouche	62
3.4.3	Ramsauer-Townsend	64
3.4.4	Structure de bandes	66
3.5	Conclusion	66
4	Mouvement du spin dans le système MgO/Fe(001)	69
4.1	Echantillon	70
4.1.1	Substrat	70
4.1.2	MgO	70
4.1.3	Etude du mode de croissance	71
4.2	Résultats	75
4.2.1	Intensité réfléchie	75
4.2.2	Précession et rotation	80
4.3	Discussion	82
4.3.1	Modification des propriétés magnétiques de Fe(001) induite par MgO	84
4.3.2	Mode de croissance de MgO/Fe(001)	86
4.3.3	Composition de la couche de MgO	88
4.3.4	Relaxation hors-plan en surface de Fe(001) induite par MgO	90
4.4	Conclusion	97

Introduction

Alors que l'électronique conventionnelle est basée sur la charge de l'électron, la découverte de la magnétorésistance géante (MRG) [1, 2] a ouvert une nouvelle voie de recherche basée sur le spin de l'électron. La MRG désigne la variation de résistance qui apparaît lorsque l'aimantation relative de deux couches ferromagnétiques change d'orientation. A partir de 1997, elle est exploitée industriellement pour la fabrication de disques durs.

Le phénomène de transfert de spin, qui a été prédit par Slonczewski [3] et Berger [4], constitue une autre avancée importante dans le domaine du stockage de l'information sur support magnétique. Alors que l'aimantation d'une couche ferromagnétique est généralement orientée par l'action d'un champ magnétique externe, le transfert de spin est basé sur l'utilisation d'un courant d'électrons polarisés en spin, qui vont transférer une partie de leur moment angulaire à l'aimantation. Cet effet a ensuite été démontré expérimentalement. Il est ainsi possible de totalement renverser l'aimantation dans des systèmes multicouches magnétiques nanostructurés, en injectant un courant électrique polarisé en spin de densité suffisante ($\approx 10^9 A/cm^2$) [5]. Cette expérience prouve qu'il est possible de renverser une aimantation sans l'aide d'un champ magnétique. Une application directe de ce phénomène est la conception de mémoires magnétiques (MRAM) de plus grande capacité et qui consomment moins d'énergie que les systèmes actuels dans lesquels la commutation est effectuée par un champ magnétique [6]. De plus, l'effet du courant polarisé est localisé sur l'élément à commuter et n'a pas d'influence sur les éléments voisins.

Pour comprendre le transfert de spin, il est nécessaire d'analyser le transfert du moment angulaire entre les électrons et l'aimantation. Comme la conservation du moment angulaire total implique que le couple exercé sur l'aimantation par les électrons incidents est opposé au couple exercé par les électrons sur l'aimantation, il est possible d'étudier l'effet de transfert de spin en se concentrant sur la mesure de la polarisation des électrons après interaction. Dans les expériences concernant la MRG, la polarisation du faisceau est parallèle ou anti-parallèle à l'aimantation. Cependant dans cette configuration, le couple exercé par l'aimantation sur le spin est nul. Pour obtenir un couple maximal il faut choisir une configuration perpendiculaire. Dans ce cas, on s'attend à observer un mouvement du vecteur polarisation.

Un mouvement du spin de l'électron peut-être induit de différentes manières : par un champ électrique externe [7], par un champ électrique interne par l'intermédiaire du couplage spin-orbite [8], par un champ magnétique externe [9]. Enfin, par le champ magnétique interne (ou champ d'échange) d'un matériau ferromagnétique. Cependant, en ce qui concerne l'application d'un champ magnétique externe, les électrons devraient parcourir de longues distances (au moins plusieurs μm) dans le matériau pour obtenir une précession significative, ce qui semble difficile compte tenu du libre parcours moyen des électrons. Cette contrainte est également valable pour un champ électrique interne par couplage spin-orbite. Par contre, le champ d'échange dans les matériaux ferromagnétiques est de plusieurs ordres de grandeur plus élevé que les champs magnétiques externes typiquement appliqués, c'est pourquoi des distances de quelques couches atomiques sont suffisantes pour obtenir une précession non négligeable. En conséquence, l'utilisation de matériaux ferromagnétiques s'avère être la piste privilégiée pour la réalisation de dispositifs électroniques exploitant le mouvement du spin.

Récemment, Weber et collaborateurs ont développé une technique de mesure du mouvement du spin, basée sur l'injection d'électrons polarisés transmis à travers des films minces ferromagnétiques [10]. Exploitant une configuration perpendiculaire de la polarisation du faisceau d'électrons et de l'aimantation, les études montrent que le

mouvement du vecteur polarisation qui apparait peut se décomposer en deux sous-mouvements : un mouvement de rotation vers l'aimantation du ferromagnétique, et un mouvement de précession autour de l'aimantation. D'abord en géométrie de transmission, ce type d'étude a permis de mieux comprendre le phénomène de transfert de spin. Cependant, pour obtenir une image plus complète de ce phénomène dans des dispositifs électroniques, il est nécessaire d'étudier le mouvement de spin dans le cas d'électrons réfléchis. On pourrait penser que la réflexion d'électrons polarisés n'est pas idéale pour induire une précession du vecteur polarisation, car le temps d'interaction avec l'aimantation est très court (de l'ordre de quelques fs), cependant il a été montré que l'angle de précession peut-être important en réflexion [11]. Le but de ce travail a donc été d'apporter une contribution à l'étude du mouvement de spin en géométrie de réflexion sur des systèmes ferromagnétiques.

Ce manuscrit a été organisé en quatre parties. Dans le premier chapitre, nous nous intéressons au mouvement de spin des électrons, en commençant par un bref rappel sur le spin et sur l'état de polarisation de spin de l'électron. Nous serons ensuite en mesure de comprendre le principe du mouvement du vecteur polarisation d'un électron après une interaction avec un film mince ferromagnétique. Le second chapitre décrit le dispositif expérimental que nous avons utilisé. Le troisième chapitre présente les résultats obtenus pour le système Fe/Ag(001). Un mouvement de précession de 180° sera mis en évidence. Il s'agit de la valeur maximale qu'il est possible de détecter. Ce phénomène est expliqué par la relaxation de la couche de Fe durant la croissance. Le quatrième chapitre est consacré à l'étude du mouvement de spin dans le système MgO/Fe(001). Cette étude montre une atténuation très brutale des angles du mouvement du spin pour des épaisseurs de MgO (inférieures à la monocouche). Les calculs *ab initio* confirment l'hypothèse d'une relaxation hors-plan de la couche de fer en surface, induite par le dépôt de MgO, comme étant à l'origine de cet effet.

Première partie

Théorie et dispositif expérimental

Chapitre 1

Spin et mouvement du spin

Cette partie essentiellement théorique rappelle des notions de base pour la compréhension de la section portant sur le mouvement du spin.

1.1 Le Spin de l'électron

La mécanique quantique associe à l'électron un moment angulaire orbital, mais également un moment angulaire de spin. En 1925, Uhlenbeck et Goudsmit postulent l'existence de ce mouvement de rotation intrinsèque [12]. Auparavant, on décrivait un état de l'électron à un instant donné par une fonction d'onde ne dépendant que de ses coordonnées spatiales.

Cette approche, bien que suffisante pour expliquer le spectre d'émission et d'absorption de l'hydrogène, par exemple, ne permet pas d'interpréter certains phénomènes expérimentaux. Les manifestations expérimentales du spin de l'électron sont nombreuses : la structure fine des raies spectrales, l'effet Zeeman, le comportement des atomes d'argent dans l'expérience de Stern et Gerlach [13]. De plus, les propriétés magnétiques de nombreux corps et notamment celles des matériaux ferromagnétiques ne s'expliquent que par l'existence du spin.

Nous nous limiterons ici à la description de l'expérience de Stern et Gerlach, puis

nous examinerons les postulats sur lesquels est basée la théorie de Pauli, permettant d'incorporer le spin à la mécanique quantique non-relativiste.

1.1.1 Expérience de Stern et Gerlach

Cette expérience a été mise au point en 1922. Elle montre l'existence de moments cinétiques quantifiés, et par la même l'existence du spin de l'électron.

L'expérience consiste à étudier la déviation d'un jet d'atomes d'argent (atomes neutres et paramagnétiques) dans un champ magnétique inhomogène. Pour cela, des atomes d'argent, contenus dans une enceinte chauffée à blanc à haute température, s'en échappent par un orifice étroit et se propagent ensuite en ligne droite suivant la direction Oy dans le vide poussé qui règne à l'intérieur de tout l'appareil (figure 1.1). Le jet atomique réalisé à l'aide d'une fente collimatrice traverse ensuite l'entrefer d'un électroaimant avant de se condenser sur une plaque. Les caractéristiques du champ magnétique \vec{B} créé par l'électro-aimant sont les suivantes : sa plus grande composante est suivant O_z , et elle varie fortement avec z . Il y a également une composante suivant O_x et aucune composante suivant O_y .

La mécanique classique prévoit que l'atome d'argent qui pénètre dans l'entrefer est soumis à la seule force :

$$F = m_z \overrightarrow{\text{grad}}(B_z)$$

avec m_z la composante suivant z du moment magnétique de l'atome tel que $\vec{m} = \gamma \vec{\Phi}$ avec Φ le moment cinétique de l'atome et γ le rapport gyromagnétique du niveau considéré. Cette force est parallèle à Oz et proportionnelle à m_z . Comme à l'entrée de l'entrefer, les moments des différents atomes du jet sont répartis de façon isotrope (toutes les valeurs de m_z comprises entre $|m|$ et $-|m|$ sont possibles), on s'attend à ce que le jet vienne former sur la plaque P une seule tâche symétrique en H, les limites supérieure N_1 et inférieure N_2 de cette tâche correspondant aux valeurs maximale $|m|$ et $-|m|$ de m_z .

En réalité, le résultat de l'expérience est tout autre : on observe deux tâches, centrées

en N_1 et N_2 ce qui signifie qu'une mesure de m_z ne peut donner que deux résultats possibles. Il y a donc quantification du résultat de la mesure et les prédictions de la mécanique classique sont infirmées. En effet, les résultats de l'expérience conduisent à la conclusion suivante : si l'on mesure la composante Φ_z du moment cinétique intrinsèque dans l'état fondamental, on ne peut trouver que l'une ou l'autre des deux valeurs correspondant aux déviations HN_1 et HN_2 . Nous sommes donc obligés de rejeter l'image classique d'un vecteur $\vec{\Phi}$ dont l'angle avec le champ magnétique peut prendre n'importe quelle valeur : Φ_z est une grandeur physique quantifiée dont le spectre discret comporte seulement deux valeurs propres.

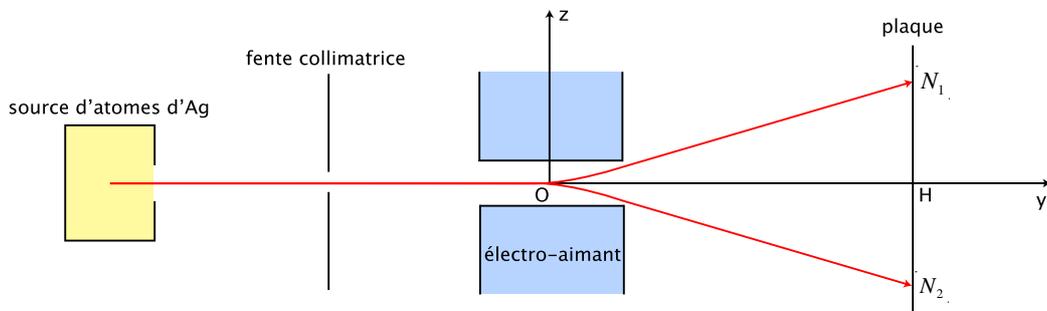


FIGURE 1.1 – Expérience de Stern et Gerlach. La séparation du faisceau d'atomes en deux est une manifestation expérimentale du spin.

Les résultats de l'expérience de Stern et Gerlach s'interprètent uniquement si on considère un moment cinétique intrinsèque \vec{S} appelé spin auquel est associé un moment magnétique $\vec{\mu}_S = -\frac{e}{m_e}\vec{S}$. Le moment cinétique total de l'atome est donc la combinaison linéaire du moment cinétique orbital et du moment cinétique intrinsèque :

$$\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$$

1.1.2 Formalisme de Pauli

Les postulats de la théorie de Pauli relative au spin sont les suivants : l'opérateur de spin \vec{S} est un moment cinétique. A ce titre il obéit à l'algèbre des moments cinétiques,

ses trois composantes $S_i (i = x, y, z)$ sont des observables vérifiant les relations de commutation tel que :

$$[S_x, S_y] = i\hbar S_z$$

les deux autres relations se déduisant par permutation circulaire des indices x, y, z. S^2 et S_z constituent un ensemble complet d'observables qui commutent. L'espace dans lequel agissent les opérateurs de spin est donc généré par l'ensemble des états propres $|s, m\rangle$ communs à S^2 et S_z :

$$S^2 |s, m\rangle = s(s + 1)\hbar^2 |s, m\rangle$$

$$S_z |s, m\rangle = m\hbar |s, m\rangle$$

Dans le cas de l'électron, l'espace des spins est de dimension 2. Nous pouvons prendre comme base le système orthonormé $\{|+\rangle, |-\rangle\}$ des kets propres communs à S^2 et S_z , qui vérifient les équations :

$$\begin{cases} S^2 |\uparrow\rangle = \frac{3}{4}\hbar^2 |\uparrow\rangle \\ S^2 |\downarrow\rangle = \frac{3}{4}\hbar^2 |\downarrow\rangle \\ S_z |\uparrow\rangle = +\frac{1}{2}\hbar |\uparrow\rangle \\ S_z |\downarrow\rangle = -\frac{1}{2}\hbar |\downarrow\rangle \end{cases}$$

$$\begin{cases} \langle \uparrow | \downarrow \rangle = 0 \\ \langle \uparrow | \uparrow \rangle = \langle \downarrow | \downarrow \rangle = 1 \end{cases}$$

$$|\uparrow\rangle \langle \uparrow| + |\downarrow\rangle \langle \downarrow| = 1$$

L'observable S_z a ainsi pour valeur propre $\pm\frac{\hbar}{2}$.

1.2 Polarisation d'électrons

1.2.1 Etat de spin

Le formalisme utilisé pour décrire l'état d'un spin est basé sur les spineurs et matrices de Pauli. Pour les électrons non-relativistes, le mouvement du à la charge est découplé du mouvement du spin. Nous ne considérerons donc que ce qui concerne les spins.

Il est possible de décrire le spin d'un électron dans n'importe quelle direction de l'espace par une combinaison linéaire de deux états de spin :

$$|\chi\rangle = u_1 |\uparrow\rangle + u_2 |\downarrow\rangle$$

où u_1 et u_2 sont des nombres complexes.

Pauli a introduit trois matrices 2x2, notées σ_i , avec $i = x, y, z$ telles que l'opérateur de spin s'écrive :

$$\vec{S} = \frac{\hbar}{2} \vec{\sigma} \tag{1.1}$$

Ces trois matrices de Pauli s'écrivent explicitement :

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$$
$$\sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}$$
$$\sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$$

Les valeurs moyennes de la polarisation dans l'espace réel, suivant les axes x, y, z d'un système de coordonnées cartésiennes sont données par les valeurs moyennes normalisées des matrices de Pauli :

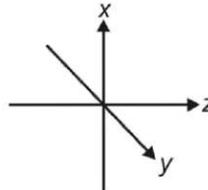
Electron polarization vector	Spin wavefunction	Coordinate system
\mathbf{P}	χ	
\rightarrow	$ +\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$	
\leftarrow	$ -\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$	
\uparrow	$\frac{1}{\sqrt{2}}(+\rangle + -\rangle)$	
\downarrow	$\frac{1}{\sqrt{2}}(+\rangle - -\rangle)$	
\searrow	$\frac{1}{\sqrt{2}}(+\rangle + i -\rangle)$	
\swarrow	$\frac{1}{\sqrt{2}}(+\rangle - i -\rangle)$	

FIGURE 1.2 – Fonctions d’ondes de spin dans le formalisme des spineurs et vecteurs polarisation correspondants dans l’espace réel.

$$P_x = \frac{\langle \chi | \sigma_x | \chi \rangle}{\langle \chi | \chi \rangle} = \frac{u_1^* u_2 + u_2^* u_1}{|u_1|^2 + |u_2|^2}, \quad (1.2)$$

$$P_y = \frac{\langle \chi | \sigma_y | \chi \rangle}{\langle \chi | \chi \rangle} = \frac{i[u_2^* u_1 - u_1^* u_2]}{|u_1|^2 + |u_2|^2}, \quad (1.3)$$

$$P_z = \frac{\langle \chi | \sigma_z | \chi \rangle}{\langle \chi | \chi \rangle} = \frac{|u_1|^2 - |u_2|^2}{|u_1|^2 + |u_2|^2}. \quad (1.4)$$

La figure 1.2 donne le vecteur polarisation dans l’espace réel en fonction de certains états de spin définis par leurs spineurs. Deux fonctions d’ondes orthogonales dans l’espace des spins font correspondre dans l’espace géométrique à trois dimensions deux vecteurs polarisation antiparallèles. D’autre part, comme un état de spin peut-être décrit par la superposition de deux états de spin, une polarisation représentée par le spineur $\begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix}$ peut donc être remplacée par une superposition d’un spin selon $+z$ $|\chi\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$ et selon $-z$ $|\chi\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$.

1.2.2 Faisceau d'électrons

Le formalisme décrit précédemment correspond à la description d'un état de spin. Comme nous considérons généralement un faisceau d'électrons, nous avons besoin d'étendre ce formalisme à un ensemble d'électrons qui peuvent avoir des spins de directions différentes. Intuitivement, le vecteur polarisation du faisceau est proportionnel à la somme des vecteurs des spins individuels. La norme du vecteur polarisation $|P|$ définit le degré de polarisation du faisceau. Si tous les spins ont la même direction, le faisceau est dit complètement polarisé et $|P| = 1$. Dans le cas où les spins ont des directions différentes, le faisceau est dit partiellement polarisé et $0 < |P| < 1$. Cette normalisation du vecteur polarisation nécessite la connaissance du nombre total d'électrons.

Considérons un ensemble d'électrons répartis statistiquement dans des sous-ensembles d'électrons de même état de spin χ_i , possédant une occupation N_i . Le vecteur polarisation d'un sous ensemble est décrit par :

$$\vec{P}^i = \frac{\langle \chi^i | \vec{\sigma} | \chi^i \rangle}{\langle \chi^i | \chi^i \rangle}$$

La polarisation totale du système est la moyenne barycentrique des polarisations \vec{P}^i de chaque classe d'électrons :

$$\vec{P} = \sum_i w^i \vec{P}^i$$

avec

$$w^i = \frac{N^i}{\sum_n N^i}$$

où N^i est le nombre d'électrons qui se trouvent dans l'état de spin $|\chi^i\rangle$.

Les composantes P_x , P_y et P_z peuvent être déterminées à partir des composantes u_1^i et u_2^i prises individuellement. On a vu précédemment que le spin de chaque électron qui se trouve dans un état de spin $|\chi^i\rangle$ peut être décrit comme une superposition d'une composante "up", $u_1^i \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$, parallèle à l'axe de quantification $+\xi$ et d'une composante

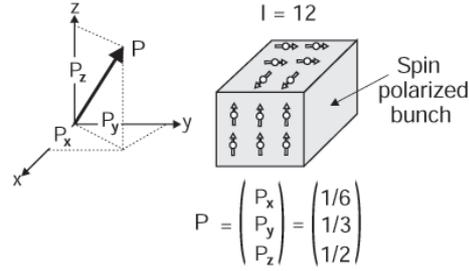


FIGURE 1.3 – Description d'un faisceau d'électrons par un vecteur polarisation P . Nous considérons 12 électrons, dont 6 sont polarisés suivant l'axe z , 4 suivant y , et 2 suivant x .

opposée "down", $u_2^i \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$ parallèle à la direction $-\xi$, avec ξ l'axe de quantification. On peut décrire la polarisation suivant l'axe ξ en soustrayant les probabilités individuelles de spins parallèles et antiparallèles à l'axe de quantification ξ , et ce pour tous les électrons du faisceau. Comme les nombres d'électrons "up" et "down" sont donnés par :

$$n^\uparrow = \sum_i |u_1^i|^2 \quad (1.5)$$

$$n^\downarrow = \sum_i |u_2^i|^2 \quad (1.6)$$

on obtient pour la polarisation selon l'axe ξ :

$$P_\xi = \frac{n^\uparrow - n^\downarrow}{n^\uparrow + n^\downarrow} . \quad (1.7)$$

La figure 1.3 illustre un exemple de calcul du vecteur polarisation pour un faisceau d'électrons partiellement polarisés. Il s'agit de déterminer P_x , P_y , P_z , en définissant l'axe de quantification respectivement suivant x , y , z . Notons qu'en général, le faisceau incident contient des électrons dont les spins sont non-parallèles aux axes du système de coordonnées.

1.3 Mouvement du spin

1.3.1 Interactions d'un faisceau d'électrons polarisés avec la matière

Il existe quatre processus majeurs liés à l'interaction entre un faisceau d'électrons polarisés en spin et la matière. Ces processus peuvent avoir une influence sur la norme et/ou la direction du vecteur polarisation du faisceau.

- Précession de spin : La précession de spin provient d'un déphasage des fonctions d'ondes partielles des spins up et down. Ceci résulte en un mouvement de précession du vecteur polarisation autour de l'axe de quantification (choisi parallèle à la direction du champ magnétique externe, ou parallèle à l'aimantation dans le cas d'un matériau ferromagnétique).
- Spin-flip : Le phénomène de "spin-flip" désigne la transition entre états de spin opposés. Ces transitions sont rares, validant le modèle à deux courants du transport électronique. Ce phénomène conduit à une modification de $|\vec{P}|$ par rapport à l'axe de quantification.
- Absorption sélective de spin : Les propriétés de diffusion des électrons sont dépendantes en spin. Ceci cause un mouvement de rotation du vecteur \vec{P} et une modification de sa norme.
- Déphasage de spin : Correspond à l'apparition d'un déphasage lors du mouvement de précession des spins individuels. Dans les matériaux non-magnétiques, cela peut donner lieu à une complète dépolarisation. Dans les matériaux magnétiques, cela donne lieu à une diminution de P_{\perp} .

Dans notre expérience de réflexion d'électrons polarisés en spin par un matériau ferromagnétique nous ne considérons que les phénomènes de précession de spin et d'absorption sélective de spin car les deux autres sont négligeables.

1.3.2 Effet d'un ferromagnétique

Considérons donc le cas d'un faisceau d'électrons totalement polarisé en spin réfléchi par un matériau ferromagnétique et étudions l'interaction entre le spin de l'électron et l'aimantation. La polarisation du faisceau est définie suivant la direction $+x$ et l'aimantation de l'échantillon est orientée perpendiculairement suivant $+z$. Par convention, l'axe de quantification est défini par la direction de l'aimantation. Ainsi, la fonction d'onde de spin d'un électron incident peut être définie comme une combinaison linéaire de deux spineurs $\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$ et $\begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$, correspondant respectivement aux électrons majoritaires avec un spin "up" orienté suivant $+z$ et aux électrons minoritaires avec un spin "down" orienté dans la direction opposée :

$$|\chi_0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \right]$$

Lorsque les électrons entrent en interaction avec la surface ferromagnétique, les deux fonctions d'onde partielles sont diffusées différemment à cause de la sélectivité en spin de l'interaction d'échange et acquièrent des phases différentes. La diffusion est dépendante en spin et la fonction d'onde devient :

$$|\chi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[|r^\uparrow| e^{i\theta^\uparrow} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} + |r^\downarrow| e^{i\theta^\downarrow} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \right]$$

avec $|r^{\uparrow,\downarrow}|$ et $\theta^{\uparrow,\downarrow}$ le module et la phase de la diffusion dépendante en spin. Exprimons maintenant les composantes du vecteur polarisation du faisceau réfléchi. Dans notre expérience, le faisceau incident n'est pas totalement polarisé. En définissant P_0

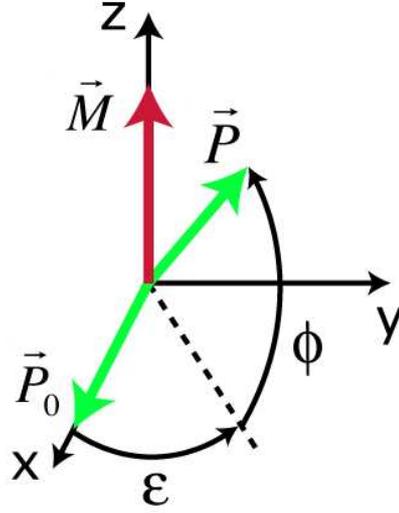


FIGURE 1.4 – Mouvement du vecteur polarisation, composé d'un mouvement de précession autour de l'aimantation et d'un mouvement de rotation tendant à aligner \vec{P} et \vec{M} de manière parallèle ou anti-parallèle.

la polarisation du faisceau incident il vient :

$$\vec{P} = \begin{cases} \frac{2P_0|r^\uparrow||r^\downarrow| \cos(\theta^\downarrow - \theta^\uparrow)}{|r^\uparrow|^2 + |r^\downarrow|^2} \\ \frac{2P_0|r^\uparrow||r^\downarrow| \sin(\theta^\downarrow - \theta^\uparrow)}{|r^\uparrow|^2 + |r^\downarrow|^2} \\ \frac{|r^\uparrow|^2 - |r^\downarrow|^2}{|r^\uparrow|^2 + |r^\downarrow|^2} \end{cases} . \quad (1.8)$$

En définissant l'asymétrie telle que

$$A = \frac{|r^\uparrow|^2 - |r^\downarrow|^2}{|r^\downarrow|^2 + |r^\uparrow|^2} \quad (1.9)$$

et l'angle ϵ tel que :

$$\epsilon = \theta^\downarrow - \theta^\uparrow , \quad (1.10)$$

le vecteur polarisation devient :

$$\vec{P} = \begin{cases} P_0 \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon \\ P_0 \sqrt{1 - A^2} \sin \varepsilon \\ A \end{cases} . \quad (1.11)$$

Dans l'espace réel, le vecteur polarisation subit un mouvement de précession d'un angle ε autour de l'aimantation et un mouvement de rotation d'un angle ϕ dans le plan défini par \vec{P} et \vec{M} . L'angle ϕ est défini par :

$$\phi = \arctan \left(\frac{A}{P_0 \sqrt{1 - A^2}} \right)$$

Le mouvement de précession du vecteur polarisation est analogue à la rotation Kerr du champ électrique d'une onde lumineuse linéairement polarisée réfléchie par un ferromagnétique [14, 15].

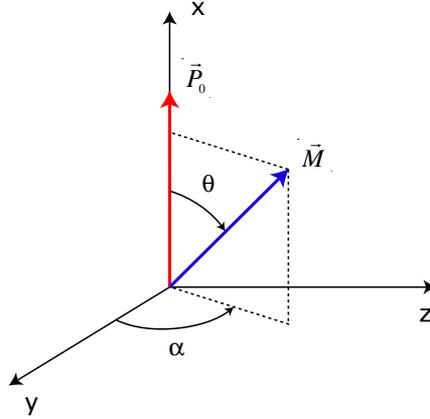
Nous voulons maintenant exprimer les composantes du vecteur polarisation dans un autre repère, à savoir le repère du détecteur de spin. Le précédent a été choisi par commodité. Il existe une expression de \vec{P} qui rend possible le calcul de la polarisation d'un faisceau d'électrons après interaction quelles que soient les directions de \vec{P}_0 et \vec{M} [16] :

$$\vec{P} = \frac{R_\varepsilon(\vec{u})\vec{P}_0 + A\vec{u}}{1 + A\vec{u} \cdot \vec{P}_0}$$

où \vec{u} est un vecteur unitaire dans la direction de l'aimantation et $R_\varepsilon(\vec{u})$ représente la matrice rotation d'un angle ε autour de \vec{u} , dans laquelle les composantes perpendiculaires à \vec{u} (à savoir tous les termes contenant ε) sont multipliés par $\sqrt{1 - A^2}$.

La formule de Rodrigues nous permet d'obtenir la matrice de rotation $R_\varepsilon(\vec{u})$ en donnant l'expression de \vec{b} en fonction de \vec{a} , \vec{u} et ε :

$$\vec{b} = \vec{a} \cos \varepsilon + (\vec{a} \cdot \vec{u})\vec{u}(1 - \cos \varepsilon) + \vec{u} \wedge \vec{a} \sin \varepsilon$$


 FIGURE 1.5 – Définition des angles α et θ .

avec $\vec{a} = \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix}$ un vecteur quelconque de l'espace géométrique et $\vec{b} = \begin{pmatrix} x' \\ y' \\ z' \end{pmatrix}$ son image par la rotation d'un angle ε autour du vecteur \vec{u} .

Ainsi, avec les angles α et θ définis par la figure 1.5 on détermine les termes de $R_\varepsilon(\vec{u})$ dans le repère $\{x, y, z\}$:

$$\left\{ \begin{array}{l} R_{11} = \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon + (1 - \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon) \cos^2 \theta \\ R_{12} = (1 - \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon) \cos \alpha \sin \theta \cos \theta - \sqrt{1 - A^2} \sin \alpha \sin \varepsilon \\ R_{13} = (1 - \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon) \sin \varepsilon \sin \theta \cos \theta + \sqrt{1 - A^2} \cos \alpha \sin \varepsilon \\ R_{21} = (1 - \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon) \cos \alpha \sin \theta \cos \theta + \sqrt{1 - A^2} \sin \alpha \sin \varepsilon \sin \theta \\ R_{22} = \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon + (1 - \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon) \cos^2 \alpha \sin^2 \theta \\ R_{23} = (1 - \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon) \sin \alpha \cos \alpha \sin^2 \theta - \sqrt{1 - A^2} \sin \varepsilon \cos \theta \\ R_{31} = (1 - \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon) \sin \alpha \sin \theta \cos \theta - \sqrt{1 - A^2} \cos \alpha \sin \varepsilon \sin \theta \\ R_{32} = (1 - \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon) \sin \alpha \cos \alpha + \sqrt{1 - A^2} \sin \varepsilon \cos \theta \\ R_{33} = \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon + (1 - \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon) \sin^2 \alpha \sin^2 \theta \end{array} \right.$$

Dans notre expérience, la polarisation initiale est toujours perpendiculaire à l'aimantation, tel que $\theta = 90^\circ$. Le faisceau d'électrons incident forme un angle de 45° avec

la normale de l'échantillon. L'angle α entre l'aimantation et l'axe y du repère $\{x, y, z\}$ du détecteur de spin est donc de 45° . L'expression de \vec{P} devient donc :

$$\left\{ \begin{array}{l} P_x = P_0 \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon \\ P_y = \frac{1}{\sqrt{2}} (A + P_0 \sqrt{1 - A^2} \sin \varepsilon) \\ P_z = \frac{1}{\sqrt{2}} (A - P_0 \sqrt{1 - A^2} \sin \varepsilon) \end{array} \right.$$

Chapitre 2

Techniques expérimentales

Dans ce chapitre nous parlerons des différentes techniques expérimentales utilisées dans le cadre de cette thèse. Nous parlerons aussi de la mise en œuvre du protocole des expériences.

2.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental (voir figure 2.1) est composé de trois chambres sous ultra-vide. La première est destinée à la préparation de la source d'électrons polarisés en spin. Il s'agit de deux cristaux d'arséniure de galium (AsGa). La pression est maintenue à 10^{-10} mbar par une pompe ionique et un sublimateur de titane. Pour les besoins de la préparation, nous disposons d'un dispenseur de césium et d'une arrivée d'oxygène.

La deuxième chambre est la partie principale du dispositif expérimental. Elle contient l'échantillon, sur un porte-échantillon à quatre degrés de liberté : les trois directions de l'espace et une rotation autour de son axe. On dispose de deux évaporateurs permettant de réaliser une croissance cristalline de films minces de fer et d'oxyde de magnésium sur le substrat. La vitesse de dépôt est calibrée à l'aide d'une micro-balance à quartz. La qualité des films réalisés (cristallographie et pureté) peut-être contrôlée à l'aide de deux techniques : diffraction d'électrons de basse énergie (LEED) et spectroscopie Auger. On

dispose d'un canon à ions pour décaper l'échantillon. Elle comprend également un système de guidage et de focalisation des électrons, avant et après l'échantillon, composé de deux optiques électroniques. On a aussi un analyseur en énergie (une grille) qui permet de filtrer les électrons en fonction de leur énergie. La pression de base est de l'ordre de $2 \cdot 10^{-10}$ mbar, à l'aide d'une pompe à palettes, une pompe turbo-moléculaire, une pompe ionique et d'un sublimateur de titane. La troisième chambre abrite le détecteur d'électrons (détecteur de Mott).

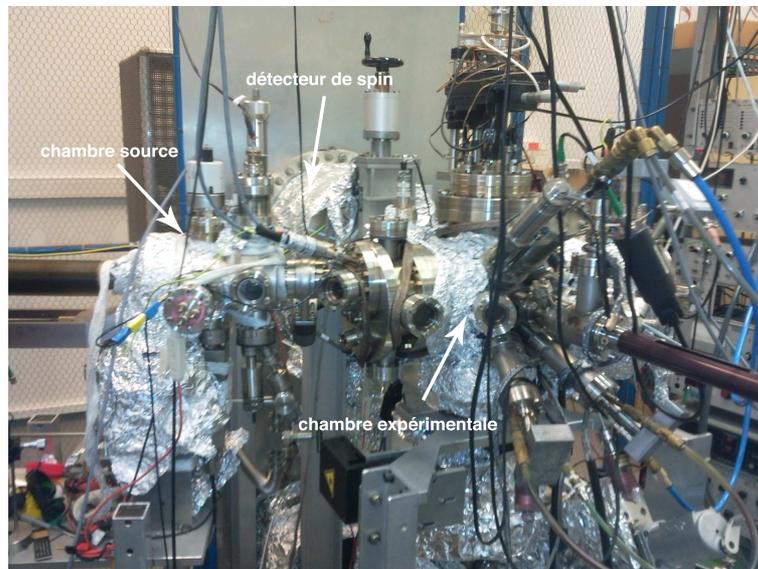


FIGURE 2.1 – Dispositif expérimental : l'ensemble est constitué de trois chambres sous ultra-vide

2.2 Principe de l'expérience

Il s'agit d'une expérience de réflexion d'électrons polarisés en spin par une surface ferromagnétique (figure 2.2). Les électrons, produits par un cristal d'AsGa, arrivent avec un angle d'incidence de 45° par rapport à la normale de l'échantillon. La polarisation et l'aimantation sont perpendiculaires. Les électrons réfléchis spéculairement

passent à travers une grille retardatrice permettant de sélectionner les électrons primaires. Ces électrons sont ensuite accélérés à 100 keV puis discriminés en spin par un détecteur de Mott.

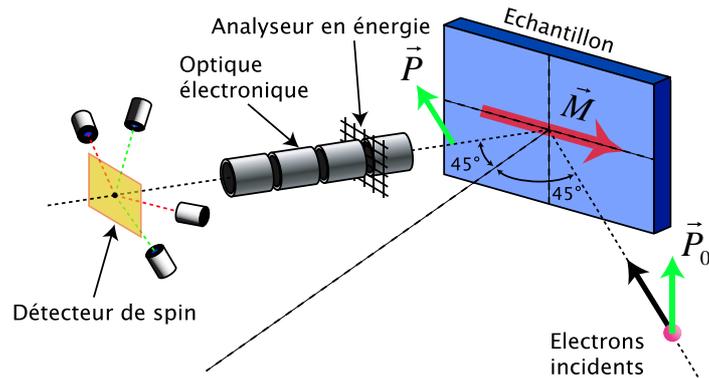


FIGURE 2.2 – Principe de l'expérience de spectroscopie d'électrons polarisés en spin en géométrie de réflexion

2.3 Production d'électrons polarisés en spin

La polarisation en spin du faisceau d'électrons est créée à partir d'un matériau semi-conducteur non-magnétique excité optiquement, et est le résultat des règles de sélection qui régissent les transitions produites par la lumière circulairement polarisée. Avec un traitement de surface approprié, il est possible de diminuer le niveau de vide du semi-conducteur pour que les électrons du bas de la bande de conduction soient émis.

2.3.1 Principe de l'émission d'électrons polarisés par un crystal d'AsGa

Le GaAs est un semi-conducteur à gap direct ($E_g = 1,52eV$) centré au point Γ de la zone de Brillouin [17]. La bande de valence est constituée des niveaux énergétiques 4p de As. L'interaction spin-orbite provoque la levée de dégénérescence de l'état 4p en un état $4p^{1/2}$ deux fois dégénérés et un état $4p^{3/2}$ quatre fois dégénérés. La différence énergétique entre les niveaux $4p^{1/2}$ et $4p^{3/2}$ est de 0,34eV. La bande de conduction est constituée des états $5s^{1/2}$ qui sont deux fois dégénérés.

La figure 2.3 représente la structure de bande de l'AsGa en a) et en b) les états dégénérés correspondants avec les différentes transitions possibles. Les probabilités de transitions relatives sont indiquées dans les cercles et s'obtiennent en calculant les éléments de matrice $\langle \Psi_f | H_{\text{int}} | \Psi_i \rangle$.

Voyons maintenant le principe de la production d'électrons polarisés en spin. Considérons des photons polarisés circulairement droite (moment magnétique $m = +1$) ou circulairement gauche (moment magnétique $m = -1$), possédant une énergie $E \approx 1,52eV$ afin de ne sélectionner que les transitions allant des états $p_{3/2}$ à $s_{1/2}$. Les règles de sélection pour la photoémission définissent les transitions possibles telles que $\Delta l = \pm 1$ et $\Delta m = \pm 1, 0$. Ainsi, pour un photon polarisé circulairement droite, les seules transitions possibles sont celles des états $4p^{3/2}$ aux états $5s^{1/2}$ telles que :

- $m_j = -3/2$ (bande de valence) $\rightarrow m_j = -1/2$ (bande de conduction)
- $m_j = -1/2$ (bande de valence) $\rightarrow m_j = +1/2$ (bande de conduction)

Pour un photon polarisé circulairement gauche :

- $m_j = +3/2$ (BV) $\rightarrow m_j = +1/2$ (BC)
- $m_j = +1/2$ (BV) $\rightarrow m_j = -1/2$ (BC)

La polarisation est définie telle que :

$$P = \frac{N_{\uparrow} - N_{\downarrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}}$$

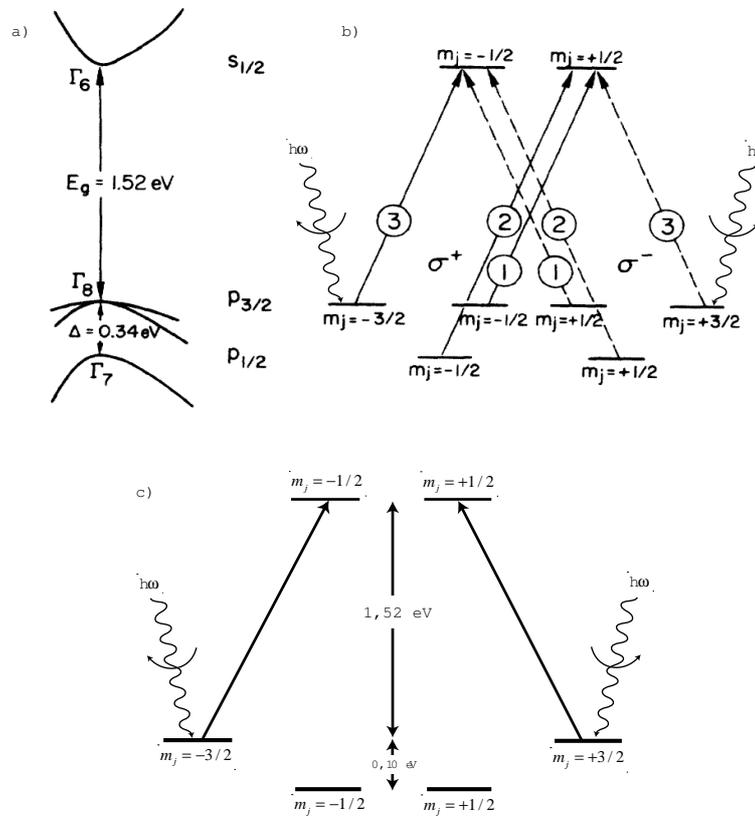


FIGURE 2.3 – Principe de la photoémission d’électrons polarisés en spin. a) Structure de bandes de GaAs proche du niveau de Fermi au voisinage du point Γ . b) Transitions électroniques possibles dans un cristal d’AsGa non contraint excité par de la lumière polarisée circulairement droite σ^+ et gauche σ^- . Les probabilités relatives de transition sont inscrites dans les cercles. c) Transitions électroniques possibles dans un cristal d’AsGa contraint excité par de la lumière polarisée circulairement droite σ^+ et gauche σ^- . On note une levée de dégénérescence de 0,1eV des niveaux $p_{3/2}(m_j = \pm 3/2)$ et $p_{3/2}(m_j = \pm 1/2)$ par rapport à l’AsGa non contraint.

où N_{\uparrow} , N_{\downarrow} sont le nombre d’électrons ayant un moment magnétique respectivement parallèle ou anti-parallèle à une direction donnée. En considérant les différentes probabilités de ces transitions, on peut estimer que la polarisation obtenue par ce type de

cristal est de l'ordre de 50 %. On obtient expérimentalement une polarisation de 25 % car les électrons diffusent dans la BC et perdent leur cohérence en spin avant d'être éjectés dans le vide.

Mais il est cependant possible d'augmenter la polarisation. Nous disposons en effet de deux cristaux d'AsGa : un cristal d'AsGa dit "normal" et un autre contraint en surface par des super-réseaux AsGa-AsGaP. La différence de paramètre de maille due aux multicouches de AsGaP avec différents taux de dopage p génère une contrainte et une distorsion de la maille. Ceci lève la dégénérescence des états $p_{3/2}$ (les niveaux $p_{3/2}(m_j = \pm 1/2)$ et $p_{3/2}(m_j = \pm 3/2)$ se retrouvent séparés de 0,1 eV, voir figure 2.3 c)) et rend possible l'obtention d'une polarisation théorique de 100 % et expérimentale de plus de 80 %. Toutefois, le courant émis avec ce type de cristal est dix fois inférieur par rapport au cristal dit "normal". Les deux cristaux sont collés l'un à côté de l'autre sur le porte substrat par de l'indium. Il est ainsi facile de choisir l'un ou l'autre suivant les besoins et la nature de l'échantillon (réflectivité faible ou élevée).

2.3.2 Activation du cristal d'AsGa

L'activation du cristal d'AsGa est un processus visant à rendre l'affinité électronique des électrons négative par traitements de surfaces successifs en déposant du Cs et de l' O_2 (figure 2.5). Ainsi, le niveau de vide se retrouve en-dessous du bas de bande de conduction, et les électrons peuvent sortir dans le vide sans apport d'énergie extérieure.

Durant l'activation, les cristaux d'AsGa sont dans la chambre source. Un laser de longueur d'onde 635 nm (rouge) et d'une puissance de 10 mW irradie en permanence un des cristaux. Comme il n'est pas nécessaire d'obtenir des électrons émis polarisés durant l'activation, on peut utiliser un laser de cette longueur d'onde. Le courant émis par la source est mesuré par un ampèremètre. Une tension de -30 V est appliquée en permanence sur le cristal afin de collecter les électrons. Le césium est fourni par un dispensateur (ou filament) situé en regard des cristaux tandis que l'oxygène est sous forme gazeuse. La pression dans la chambre lors de l'exposition à l'oxygène est de

5.10^{-9} mbar.

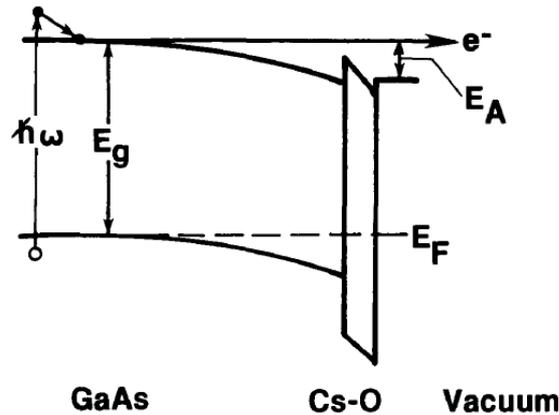


FIGURE 2.4 – L’activation du cristal d’AsGa a pour but de rendre l’affinité électronique négative (NEA), de telle sorte que les électrons excités dans la bande de conduction puissent être émis sans apport d’énergie extérieure.

La première étape consiste à nettoyer le cristal. Pour cela, on procède à un recuit à 500°C durant plus de 30 minutes pour favoriser la désorption de toutes les impuretés de la surface. Ensuite, on laisse refroidir le cristal jusqu’ à une température de 50°C , car l’adsorption des atomes de Cs est impossible à plus haute température. Puis on débute le traitement chimique. Le premier cycle est toujours à base de césium. Après dix minutes, on observe une augmentation du courant émis par la photocathode d’AsGa (figure 2.5). Le premier pic, d’intensité environ $2 \mu\text{A}$ arrive après quinze minute. En continuant l’exposition du cristal au césium, le courant diminue alors progressivement. On débute alors un nouveau cycle en ouvrant la vanne d’oxygène jusqu’à avoir une pression de 5.10^{-9} mbar dans la chambre. De même que précédemment, le courant émis augmente fortement. Après obtention d’un nouveau maximum de courant, on répète alors l’opération décrite précédemment jusqu’à obtenir une saturation. La durée de ce procédure est de 60 minutes. Après activation, la valeur du courant émis est de l’ordre de $30 \mu\text{A}$. Cette valeur décroît de façon exponentielle avec le temps. Toutefois

sa demi-vie qui est de quelques heures peut être augmentée par le dépôt constant de césium sur la surface du cristal, c'est pourquoi la chambre principale est également équipée d'un distributeur de césium situé sur la plaque accélératrice avant le déflecteur à 90° de l'optique électronique.

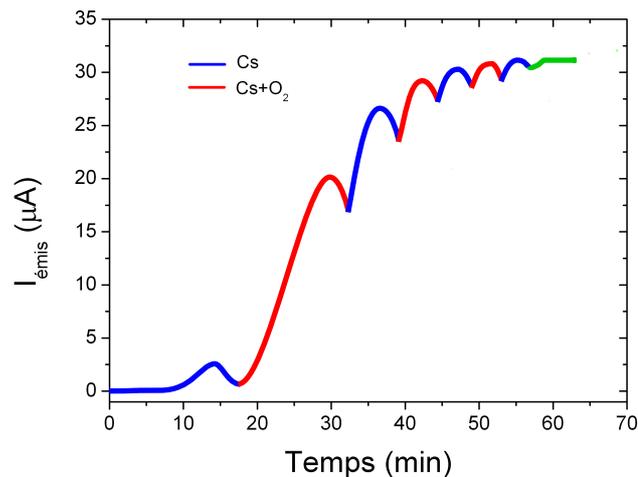


FIGURE 2.5 – Courant émis par le cristal d'AsGa en fonction du temps. L'activation du cristal d'AsGa consiste en un traitement de surface par dépôts successifs de Cs (en rouge) et de O_2 (en bleu).

2.3.3 Cellule de Pockels

Nous disposons d'un ensemble composé d'un polariseur et d'une cellule de Pockels pour obtenir une polarisation circulaire du faisceau lumineux. En sortant du laser, la lumière est polarisée elliptiquement. En traversant le polariseur, la polarisation devient linéaire, avant d'entrer dans la cellule de Pockels.

On parle d'effet Pockels ou effet électro-optique du premier ordre lorsque la biréfringence est proportionnelle au champ électrique appliqué. La cellule de Pockels est composée d'un matériau à biréfringence contrôlée. Dans ce cas, l'indice de réfraction

dépend des directions de propagation et de polarisation du rayon lumineux. Or la polarisation de la lumière peut être décomposée en deux composantes : chaque composante ne se propage pas à la même vitesse selon qu'elle est parallèle ou perpendiculaire à l'axe optique. Nous appliquons aux bornes de notre cellule de Pockels une tension de +/- 140 V pour avoir une polarisation circulaire gauche ou circulaire droite. Dans notre cas, le déphasage introduit permet de passer d'une polarisation linéaire à l'entrée de la cellule à une polarisation circulaire en sortie.

2.4 Chambre principale

2.4.1 Optiques électroniques

Pour focaliser le faisceau électronique sur l'échantillon nous disposons d'un système d'optique électronique. Cet élément est constitué de quatre cylindres portés à des tensions différentes, formant ainsi un ensemble de trois lentilles électrostatiques. Un gradient de champ électrique est créé entre deux cylindres (figure 2.6). Un électron entrant dans la lentille par la droite (au potentiel le plus faible) sera réfracté en direction de l'axe à chaque équipotentielle convexe et en dehors de l'axe à chaque équipotentielle concave. L'inverse serait vrai si l'électron entrait dans l'optique du potentiel le plus haut vers le potentiel le plus faible. Une lentille électrostatique agit toujours comme une lentille convergente, car l'électron est accéléré ou décéléré par la composante longitudinale du gradient de potentiel de telle sorte qu'il passe toujours plus de temps dans les régions convergentes que dans les régions divergentes.

Il y a également un système de déflexion du faisceau pour modifier la trajectoire des électrons horizontalement et verticalement. Ce système est constitué de plaques verticales et horizontales portées à des potentiels différents.

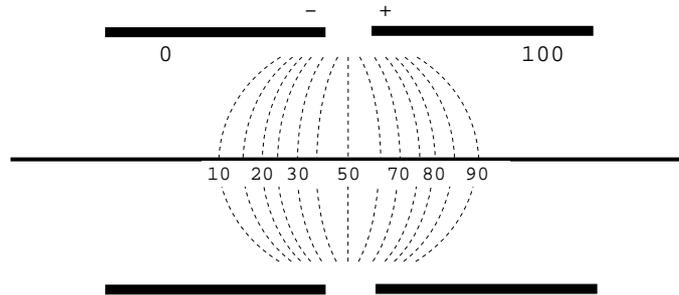


FIGURE 2.6 – Principe d’une lentille électrostatique : représentation des lignes de champs résultant de la différence de potentiel entre les deux cylindres.

2.4.2 Analyseur en énergie

Après interaction avec l’échantillon les électrons réfléchis spéculairement pénètrent dans une seconde optique électronique constituée d’éléments similaires à la précédente. Toutefois, elle dispose d’un analyseur d’énergie à champ retardant. Il s’agit d’une grille portée à un potentiel négatif V_{grille} , ne laissant passer que les électrons ayant une énergie supérieure à eV_{grille} . Le principe est donc similaire à un filtre passe-haut en électronique, ne laissant passer que les fréquences inférieures à la fréquence de coupure.

La figure 2.7 représente l’intensité des électrons collectés dans le détecteur de spin en fonction de la tension appliquée à la grille. On remarque que ce courant diminue faiblement jusqu’à une énergie proche de l’énergie cinétique des électrons incidents et que au-delà de cette énergie, plus aucun électron n’arrive au détecteur de Mott. La courbe en pointillés représente : $I(V_{grille}) = \int_0^{\infty} N(V_{grille})dV_{grille}$ avec $N(V_{grille})$ le nombre d’électrons possédant une énergie eV_{grille} . Sa dérivée (en trait plein) par rapport à V représente donc le nombre d’électrons atteignant le détecteur en fonction de la tension de grille.

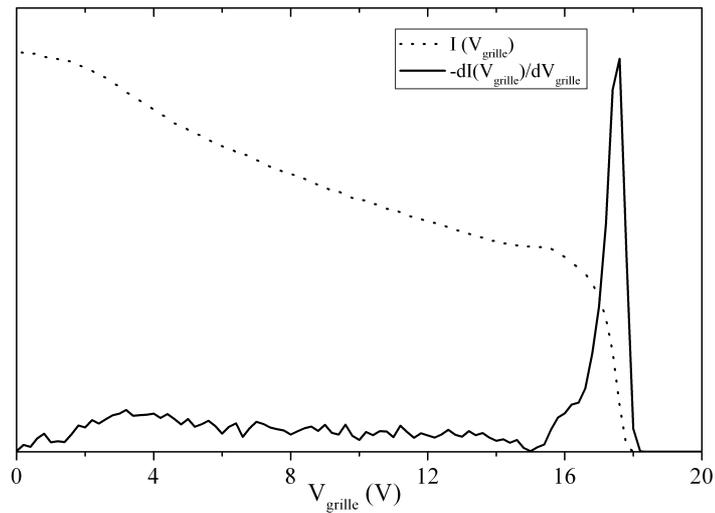


FIGURE 2.7 – Intensité du courant d’électrons collecté par le détecteur de spin, en fonction de la tension appliquée à l’analyseur en énergie (trait plein) et sa dérivée (pointillés) pour une énergie cinétique des électrons incidents de 17,5eV.

2.4.3 Porte échantillon

Le porte-échantillon comprend l’échantillon, un système de recuit, un système de bobines pour modifier l’aimantation de l’échantillon (voir figure 2.8). Le tout est un ensemble mobile à quatre degrés de liberté : une translation dans les trois directions de l’espace et une rotation d’axe vertical.

L’échantillon est isolé de son support par des éléments en céramique, et est relié à la terre de façon *ex-situ*. Le courant électronique collecté par l’échantillon passe au préalable par un micro-ampèremètre.

Le système de recuit de l’échantillon est constitué d’un filament de tungstène de 0,2mm de diamètre, dans lequel circule un courant de 3 A pour atteindre une température de thermo-émission. Les électrons émis sont ensuite accélérés par la différence de potentiel avec l’échantillon, auquel est appliquée une tension positive de 500 V. Ce bombardement électronique sur l’échantillon permet d’atteindre des températures de

l'ordre de 500°C , nécessaires lors de la préparation du cristal avant dépôt. Le contrôle de la température a été effectué par un thermocouple $PtRh_{10}/Pt$.

L'échantillon est placé au centre de deux bobines d'Helmholtz, constituées chacune de 100 spires de fil de cuivre de diamètre 0,2mm, recouvert d'isolant. Le champ magnétique délivré est de 12 Oe par Ampère. Les impulsions d'un courant de 150 A à travers les bobines permettent de générer un champ magnétique suffisant pour changer l'aimantation de l'échantillon de manière rémanente. Toutes les parties environnant l'échantillon sont recouvertes d'une peinture de particules de graphite colloïdales, rendant la surface conductrice pour éviter une éventuelle accumulation de charge perturbant la trajectoire des électrons.

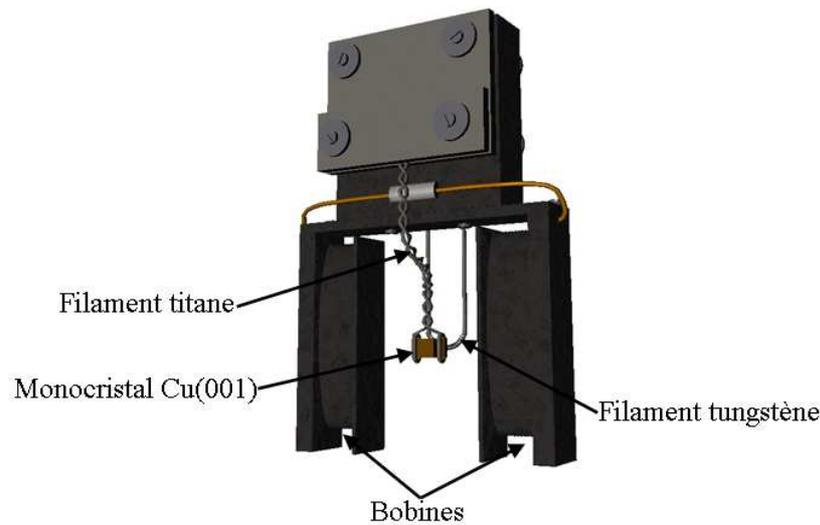


FIGURE 2.8 – Représentation du porte-échantillon. On note les bobines permettant de modifier l'aimantation rémanente du cristal.

2.4.4 Evaporateurs

Le mot épitaxie vient des racine grecques *epi* signifiant “au-dessus” et *taxis* signifiant “d’une manière ordonnée”. L’épitaxie par jets moléculaires est une méthode de dépôt

permettant l'élaboration de films monocristallins : la structure cristallographique du film déposé est déterminée par celle du substrat, ce qui détermine son orientation. D'un point de vue technique, l'épitaxie par jets moléculaires nécessite un environnement sous vide poussé (10^{-8} mbar), de telle sorte que les atomes aient un libre parcours moyen supérieur à la distance les séparant de l'échantillon, et afin de limiter les impuretés. La vitesse de dépôt est faible, inférieure à $200 \text{ \AA}/\text{min}$.

Les échantillons sont préparés par évaporation d'éléments purs sur le substrat. Pour cela on dispose de deux types d'évaporateurs. La différence réside dans la forme de l'élément à évaporer : pour MgO (température de fusion proche de 2800°C), on utilise un creuset de molybdène contenant des grains du matériau. Pour le fer (température de fusion proche de 1500°C), le creuset est remplacé par une tige de ce même matériau. Les constituants communs aux évaporateurs sont les suivants (voir figure 2.9) : deux filaments de tungstène (diamètre $0,2 \text{ mm}$), un circuit de refroidissement par eau, un obturateur mobile permettant de stopper l'émission du flux dans la chambre expérimentale, cinq tiges de molybdène permettant de maintenir la structure et d'acheminer un courant et une tension.

Le principe d'évaporation est basé sur le bombardement électronique. On envoie un courant de 3 A environ dans les filaments. Le creuset ou la tige est porté à un potentiel positif (généralement 1150 V). Les électrons circulant dans le filament vont être émis et accélérés par la différence de potentiel avec la cible. Les électrons arrivent donc avec une grande énergie cinétique, ce qui se traduit par une augmentation de la température et une sublimation du matériau. Durant nos expériences, les courants d'émission (électrons émis par le filament) sont typiquement de 24 mA et de 75 mA pour le Fe et pour MgO, les flux de matière correspondants (vitesses de dépôt) sont de l'ordre de $1 \text{ \AA}/\text{min}$ et $0,3 \text{ \AA}/\text{min}$.

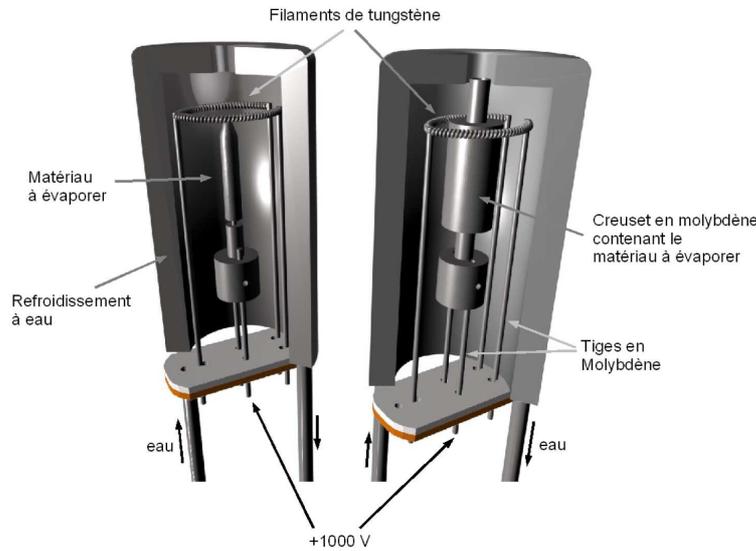


FIGURE 2.9 – Représentation des deux types d'évaporateurs.

2.4.5 Microbalance à quartz

La vitesse de dépôt est mesurée à l'aide d'une microbalance à quartz. Le principe de fonctionnement repose sur la piezo-électricité du cristal de quartz utilisé : ce matériau possède la propriété de se polariser électriquement sous l'action d'une contrainte mécanique et réciproquement de se déformer lorsqu'on lui applique un champ électrique. Ici, le quartz subit une oscillation suite à une stimulation piézoélectrique. La fréquence de résonance du cristal est corrélée à sa masse. Une légère variation de masse d'une des électrodes induit une baisse de fréquence de résonance du quartz. Cet effet a été modélisé par Sauerbrey en 1959 pour aboutir à une équation qui porte désormais son nom [18]. Elle lie la variation de masse Δm sur les électrodes à la variation Δf de fréquence de résonance :

$$\Delta f = \frac{-2f^2}{A\rho c} \Delta m$$

où $\rho = 2650 \text{ kg.m}^{-3}$ est la masse volumique du quartz, c est la célérité d'une onde acoustique dans la coupe du quartz et A l'aire de recouvrement des électrodes.

Ainsi, en mesurant la variation de la fréquence de vibration du quartz il est pos-

sible de déterminer la masse du matériau déposé, et donc la vitesse de dépôt. Lors de notre expérience, il est nécessaire pour utiliser la microbalance de positionner le quartz mobile à la place de l'échantillon. Cette contrainte expérimentale signifie qu'il est impossible de contrôler la vitesse de dépôt pendant la mesure. Elle est évaluée avant et après l'expérience. Afin de tenir compte des éventuelles fluctuations, on mesure le courant ionique provenant de l'évaporateur (lorsque celui-ci est mesurable), qui est proportionnel à la quantité de matière déposée sur l'échantillon. Autrement, on suppose une variation linéaire de la vitesse de dépôt. Nous avons ainsi une idée précise de l'épaisseur du film déposé.

2.4.6 Décapage ionique

Après chaque expérience en fonction de l'épaisseur du film déposé, il s'agit de décaper l'échantillon afin de retrouver un cristal propre. Il faut pour cela envoyer des particules suffisamment lourdes et avec une énergie cinétique suffisamment grande pour arracher les atomes du substrat. On utilise un canon à ions. On introduit dans la chambre principale un gaz d'Argon. Les ions Ar^+ sont obtenus par collision des électrons produits par thermoémission à partir d'un filament qui se trouve dans le canon et des atomes d'Ar. Les ions sont ensuite accélérés et focalisés sur le substrat. Typiquement, avec une pression d'Ar de 10^{-6} mbar dans la chambre principale et une énergie cinétique 1,5 keV, on obtient un courant ionique de $2,5\mu A$, qui permet de décaper 5 nm de Fe en 1h30.

2.4.7 Spectroscopie Auger

La spectroscopie Auger (AES Auger Electron Spectroscopy) est une technique d'analyse très utilisée en physique des surfaces et interfaces. Les usages prédominants sont : contrôle de la propreté de surfaces préparées sous ultra-vide, étude du mode de croissance d'un film, analyse de la composition chimique de la surface. En alternance

avec un décapage, cette dernière application permet de déterminer la concentration d'éléments chimiques particuliers en fonction de la profondeur.

Le principe du processus Auger est expliqué par la figure 2.10. L'électron primaire incident crée un trou par ionisation d'un niveau de coeur (couches K ou L). La structure électronique de l'atome ionisé se réarrange à partir d'une couche d'énergie supérieure. Cette transition peut être accompagnée par l'émission caractéristique d'un photon dans la gamme des rayons X. Il est également possible que le processus de désexcitation soit une transition Auger non-radiative : l'énergie gagnée par l'électron provenant d'un niveau supérieur est transférée à un électron de la même couche ou d'une couche différente. Cet électron est émis avec une énergie Auger caractéristique, laissant l'atome dans un état de double ionisation.

Pour illustrer le calcul de l'énergie caractéristique d'un électron Auger, considérons la transition KL_1L_2 . Dans une première approche, l'énergie cinétique de l'électron Auger serait donnée par la différence des énergies des niveaux de coeur correspondant. Cependant, il est nécessaire d'introduire un terme de correction ΔE pour prendre en compte le réarrangement du nuage électronique suite à la création d'un trou ainsi que le travail de sortie $e\phi$:

$$E_{cin} = E_K - E_{L_1} - E_{L_2} - \Delta E(L_1L_2) - e\phi$$

Comme l'électron Auger émis a une énergie cinétique qui est directement liée aux différences d'énergie des niveaux de coeur, la mesure de cette énergie peut être utilisée pour déterminer la nature de l'atome.

Nous avons utilisé pour nos expériences Auger un appareil Spectaleed de la marque Omicron. Il s'agit d'un système LEED à quatre grilles qui agissent comme analyseur en énergie (RFA Retarding Field Analyser). Ce système présente le désavantage d'avoir une sensibilité relative beaucoup plus faible qu'un analyseur à miroir cylindrique (CMA Cylindrical Mirror Analyser), de ce fait il est hors de propos de procéder à une analyse chimique quantitative. L'appareil est également constitué d'un canon à électrons produisant un faisceau focalisé, jusqu'à une énergie de 3 kV (à cette énergie la taille du

faisceau est de $250 \mu\text{m}$).

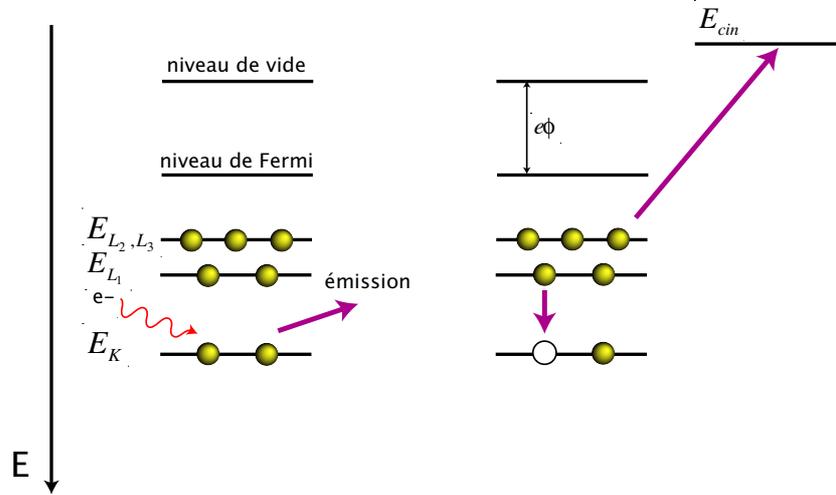


FIGURE 2.10 – Exemple d’un processus Auger. Un électron incident crée un trou dans le niveau d’énergie K de l’atome, qui est ensuite rempli par un électron de la couche L. L’énergie libérée par cette transition est transférée à un autre électron et est suffisante pour provoquer son émission dans le vide.

2.4.8 Diffraction d’électrons lents

Pour les premières expériences de diffraction électronique en 1927, Davisson et Germer [19] ont utilisé des électrons de faible énergie. Cette technique est devenue par la suite une des méthodes fondamentales d’étude structurale de surfaces cristallines.

Le but est d’analyser la structure cristallographique d’un matériau soumis à un faisceau d’électrons de basse énergie par observation des électrons diffractés. Les électrons ont une énergie comprise entre 10 et 500 eV, leur longueur d’onde correspondante est dans la gamme des rayons X. Il s’agit d’une analyse de surface, car le libre parcours moyen des électrons dans la matière est très faible dans cette gamme d’énergie (5-10 Å).

La figure de diffraction obtenue par LEED correspond au réseau réciproque de

surface du matériau analysé. Les maxima d'intensité observés correspondent aux angles déterminés par la condition de Laue (voir figure 2.11) :

$$\vec{k}_{R//} - \vec{k}_{I//} = h_1 \vec{a}_1^* + h_2 \vec{a}_2^* = \Delta \vec{k}_{//}$$

où $\vec{k}_{R//}$ et $\vec{k}_{I//}$ sont la projection par rapport à la surface des vecteurs d'onde respectivement du faisceau incident et réfléchi, et \vec{a}_1^* et \vec{a}_2^* sont les vecteurs du réseau réciproque surfacique. Les électrons sont émis perpendiculairement à la surface. Ils sont diffractés par les atomes du substrat puis collectés par un écran fluorescent placé en regard de l'échantillon. Les principaux éléments constitutifs du diffracteur sont donc les suivants :

- Le canon à électrons, qui émet les électrons en produisant un faisceau parallèle de 0.1 à 1 mm de section.
- L'écran hémisphérique, centré sur l'échantillon. Sa géométrie permet une déformation angulaire minimale du diagramme (homothétie avec la sphère d'Ewald). D'autre part, il est porté à un potentiel de 5 kV, afin d'accélérer les électrons avant l'impact et de provoquer la fluorescence des atomes de phosphore.
- Les quatre grilles concentriques, portées au potentiel des électrons diffractés. Elles permettent de ne pas laisser passer les électrons secondaires.

2.4.9 Schéma des potentiels dans l'expérience

Nous avons choisi d'exprimer l'énergie des électrons relativement au niveau de Fermi. L'expression $(E - E_F)$ est indépendante de la nature de l'échantillon et du potentiel de l'analyseur et nous permet donc de comparer les résultats expérimentaux. La figure 2.12 montre les différents potentiels mis en jeu dans notre dispositif. Les trois éléments impliqués sont : le cristal d'AsGa caractérisé par V_{AsGa} le potentiel appliqué, l'échantillon et son travail de sortie $e\varphi_S$ et l'analyseur en énergie avec $e\varphi_{grille}$ son travail

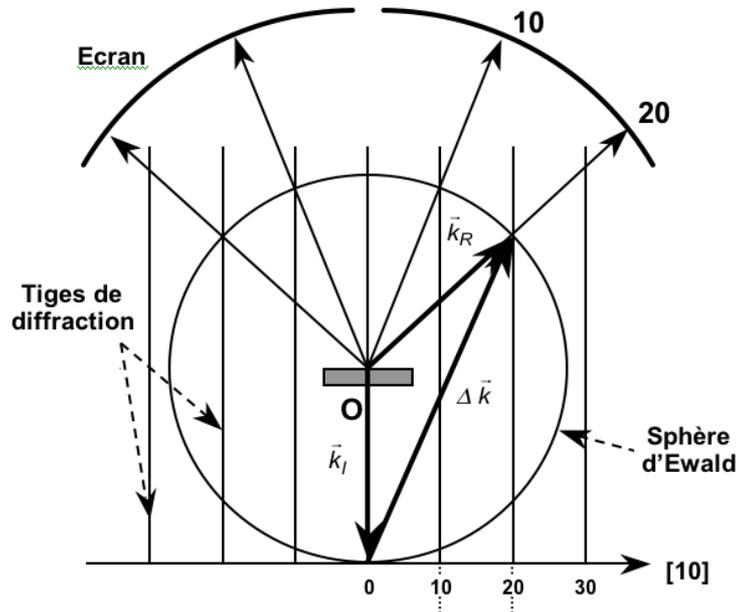


FIGURE 2.11 – Représentation du LEED. \vec{k}_I et \vec{k}_R sont respectivement les vecteurs d'onde des faisceaux incidents et réfléchis. Les maximums d'intensités sur l'écran correspondent à l'intersection de la sphère d'Ewald et des tiges

de sortie. L'énergie des électrons comparée au niveau de Fermi de l'échantillon est :

$$E - E_F = V_{AsGa} + E_g$$

Nous pourrions également exprimer l'énergie cinétique des électrons par rapport au niveau de vide de l'échantillon :

$$E_{kin} = V_{AsGa} + E_g - e\phi_S$$

mais cette expression dépend du travail de sortie de l'échantillon. D'autre part, pour traverser l'analyseur avec $V_{grille} = 0$, un électron doit posséder une énergie supérieure à $e\varphi_{grille}$. L'énergie des électrons incidents doit donc être supérieure à 5eV.

2.5.1 Diffusion de Mott

Soit un faisceau d'électrons de 100 keV qui arrive sur un atome d'Au. A cette énergie les électrons pénètrent dans le nuage électronique de l'atome et sont soumis au champ coulombien du noyau. Dans le référentiel lié à l'électron, c'est l'atome qui se déplace vers l'électron à la vitesse opposée. D'après la relativité restreinte, il y a apparition d'un champ magnétique dans le référentiel lié à l'électron [20]. Les électrons sont ainsi soumis à un champ magnétique circulaire. Ce champ exerce une force sur le moment magnétique de l'électron beaucoup plus grande que la force de Lorentz qui agit sur la charge.

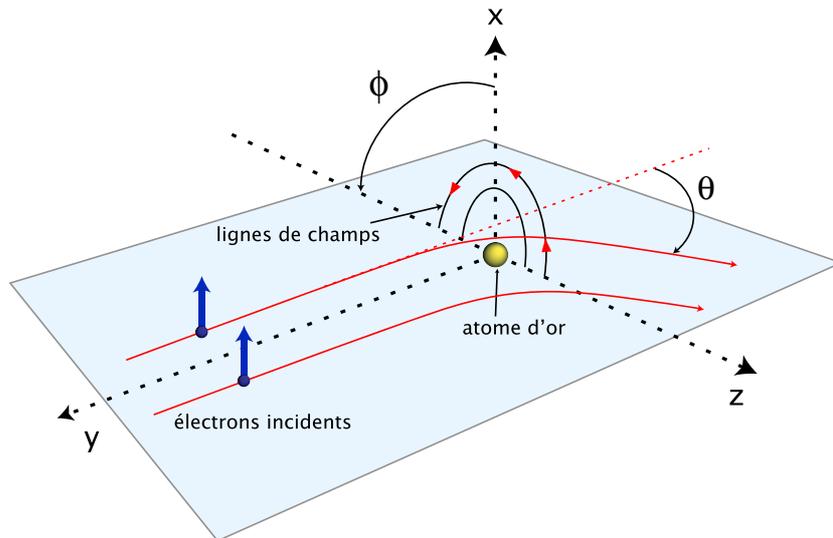


FIGURE 2.13 – Diffusion de Mott : déviation d'un électron de spin "up" due à l'interaction spin-orbite. La force sur le moment magnétique de l'électron est dirigée vers le champs croissant lorsque \vec{S} est anti-parallèle à \vec{H} et vers le champ décroissant lorsque \vec{S} est parallèle à \vec{H}

Soit un électron avec un spin "up" qui passe à droite de l'atome d'Au. Dans ce cas le champ magnétique et le spin sont parallèles. Par conséquent, la force agissant sur le spin pousse l'électron vers la région où le champ est plus faible, soit vers la droite,

comme cela est illustré dans la figure 2.13. Si cet électron passe à gauche de l'atome d'Au le champ magnétique et le spin sont antiparallèles, et la force agissant sur le spin pousse l'électron vers la région où le champ magnétique est plus fort, c'est à dire vers la droite aussi. En résumé, un électron avec un spin "up" est préférentiellement dévié vers la droite et réciproquement un électron avec un spin "down" est préférentiellement dévié vers la gauche. Cette interaction entre le spin et le champ coulombien, plus connue sous le nom de l'interaction spin-orbite induit une asymétrie dans la section efficace différentielle de diffusion élastique des électrons en fonction de l'angle de diffusion θ , défini par le faisceau incident et le faisceau diffusé (voir figure 2.13).

2.5.2 Fonctionnement du détecteur de Mott

L'asymétrie de diffusion entre les électrons "up" et "down" sur un atome en fonction des angles θ et ϕ , le dernier étant l'angle qui fait le plan de diffusion avec l'axe x , est donnée par la différence normalisée des sections efficaces différentielles $\sigma^{\uparrow\downarrow}(\theta, \phi)$ des électrons "up" et "down" (l'indice *so* indique "spin-orbite") :

$$A_{so}(\theta, \phi) = \frac{\sigma^{\uparrow}(\theta, \phi) - \sigma^{\downarrow}(\theta, \phi)}{\sigma^{\uparrow}(\theta, \phi) + \sigma^{\downarrow}(\theta, \phi)} .$$

Dans le cas d'une diffusion sur un atome d'Au, $A_{so}(\theta, \phi)$ présente deux maxima pouvant atteindre 80% aux angles $\theta = \pm 120^\circ$ [21]. Les électrons "up" sont préférentiellement diffusés dans la direction $+120^\circ$, alors que les électrons "down" sont préférentiellement diffusés dans la direction -120° .

En comptant le nombre des électrons qui arrivent sur les détecteurs à droite et à gauche pendant le même intervalle de temps, il est possible de remonter à la polarisation du faisceau d'électrons. Elle est proportionnelle à l'asymétrie entre les deux détecteurs. La mesure de la polarisation est ainsi réduite à un comptage d'électrons dans les deux détecteurs. C'est le principe de base du fonctionnement d'un détecteur de Mott. Notons que seule la composante de la polarisation normale au plan de diffusion peut être détectée.

La connaissance de la section efficace différentielle de diffusion est impérative pour déterminer le nombre des électrons diffusés qui arrivent sur les détecteurs. Dans cette section nous allons calculer dans un premier temps la section efficace différentielle de diffusion des électrons par le champ coulombien d'un atome.

La fonction d'onde des électrons polarisés en spin diffusés par un potentiel coulombien est déterminée par l'équation de Dirac [22]. Elle est décrite par quatre composantes ψ_j ($j = 1 - 4$) dont les expressions asymptotiques à grande distance du potentiel de l'atome sont données par :

$$\psi_j = b_j e^{i\vec{k}\vec{r}} + \frac{e^{ikr}}{r} u_j(\theta, \phi)$$

où le premier terme correspond à l'onde incidente et le second à l'onde diffusée.

Par la suite seulement les composantes d'indices 3 et 4 sont importantes pour la détermination du spin et correspondent aux deux composantes du spineur. Pour un potentiel à symétrie sphérique u_3 et u_4 ont la forme suivante [21] :

$$\begin{cases} u_3 = b_3 f(\theta) - b_4 g(\theta) e^{-i\phi} \\ u_4 = b_4 f(\theta) + b_3 g(\theta) e^{+i\phi} \end{cases}$$

où les fonctions $f(\theta)$ et $g(\theta)$ sont déterminées à partir de la solution détaillée de l'équation de Dirac. La section efficace différentielle des électrons diffusés dans la direction (θ, ϕ) est donnée par :

$$\begin{aligned} \sigma(\theta, \phi) &= \frac{|u_3(\theta, \phi)|^2 + |u_4(\theta, \phi)|^2}{|b_3|^2 + |b_4|^2} \\ &= |f(\theta)|^2 + |g(\theta)|^2 + \frac{b_3^* b_4 e^{-i\phi} - b_3 b_4^* e^{i\phi}}{|b_3|^2 + |b_4|^2} (f(\theta) g^*(\theta) - f^*(\theta) g(\theta)) \\ &= (|f(\theta)|^2 + |g(\theta)|^2) \left[1 + S(\theta) \frac{b_3^* b_4 e^{-i\phi} - b_3 b_4^* e^{i\phi}}{i(|b_3|^2 + |b_4|^2)} \right] \end{aligned} \quad (2.1)$$

avec la fonction de Sherman [23] :

$$S(\theta) = i \frac{f(\theta) g^*(\theta) - f^*(\theta) g(\theta)}{|f(\theta)|^2 + |g(\theta)|^2}$$

qui est une fonction réelle, car le numérateur est la différence de deux fonctions complexes conjuguées.

Dans la suite, la normale \vec{n} du plan de diffusion est parallèle à l'axe x , c.à.d. que $\phi = 90^\circ$. Si l'électron est dans un état de spin perpendiculaire au plan de diffusion on a donc $b_3 = b_4 = 1$ et la section efficace devient :

$$\sigma(\theta, \phi = 90^\circ) = (|f(\theta)|^2 + |g(\theta)|^2)(1 - S(\theta)) \quad .$$

Dans le cas le plus général où le faisceau d'électrons est partiellement polarisé, la section efficace est donnée par [21] :

$$\sigma(\theta, \phi = 90^\circ) = (|f(\theta)|^2 + |g(\theta)|^2)(1 - S(\theta)\vec{P} \cdot \vec{n})$$

où \vec{P} est la polarisation du faisceau incident.

Comme la fonction de Sherman change de signe sous l'inversion de l'argument θ , c'est à dire $S(-\theta) = -S(\theta)$, elle introduit une asymétrie dans le nombre des électrons qui arrivent sur les détecteurs à droite et à gauche :

$$A_{so} = \frac{\sigma(-\theta, \phi = 90^\circ) - \sigma(\theta, \phi = 90^\circ)}{\sigma(-\theta, \phi = 90^\circ) + \sigma(\theta, \phi = 90^\circ)} = S(\theta)\vec{P} \cdot \vec{n} \quad .$$

La connaissance de la fonction de Sherman permet donc de remonter à la valeur de la composante normale de la polarisation, c'est à dire à $\vec{P} \cdot \vec{n} = P_n$.

La valeur de la fonction de Sherman à $\theta = 120^\circ$ (appelé par la suite facteur de Sherman) calculée par Holtzwarth et Meister [24] pour la diffusion sur un seul atome d'Au est $S(120^\circ) = 0.39$. L'utilisation d'une feuille d'Au et non d'un seul atome, mène à l'apparition d'autres phénomènes, tels que des diffusions multiples de l'électron dans la feuille d'Au, ce qui entraîne une diminution du facteur de Sherman [25, 26]. Pour minimiser ces effets, surtout celui des diffusions multiples, on utilise une feuille d'Au très mince (≈ 100 nm). Dans ce cas, on ne parlera plus du facteur de Sherman, mais plutôt du facteur de Sherman effectif S_{eff} qui tient compte de la situation expérimentale. Dans notre dispositif S_{eff} a pour valeur 0.2 ± 0.02 pour $\theta = 120^\circ$ et une tension de 100 keV.

Dans un dispositif dans lequel deux détecteurs identiques sont placés à la même distance de la feuille d'Au et aux angles $\theta = \pm 120^\circ$, l'asymétrie d'intensité droite-gauche

est donc :

$$A_{so} = \frac{N_d - N_g}{N_d + N_g} = S_{eff} P_n$$

avec N_d et N_g le nombre d'électrons collectés dans les détecteurs respectivement à droite et à gauche.

En pratique, les détecteurs ne sont pas parfaitement identiques (différentes efficacités) ni placés parfaitement symétriques par rapport au faisceau d'électrons. Cela entraîne une asymétrie factice dans les mesures. Pour la supprimer, on effectue deux fois la même mesure, en inversant la polarisation du faisceau incident. Pour un faisceau d'électrons incident avec une polarisation "up" (\uparrow) le nombre d'électrons sur les détecteurs à gauche et à droite est [21] :

$$N_g^\uparrow = n\rho E_g \Omega_g I [1 + S_{eff} P_n] \quad ,$$

$$N_d^\uparrow = n\rho E_d \Omega_d I [1 - S_{eff} P_n]$$

où n est le nombre d'électrons incidents, ρ le nombre d'atomes d'Au par unité d'aire, $E_{g,d}$ les efficacités des détecteurs, $\Omega_{g,d}$ les angles solides des détecteurs et $I = |f(120^\circ)|^2 + |g(120^\circ)|^2$.

Pour une polarisation "down" (\downarrow) le nombre d'électrons sur ces détecteurs devient :

$$N_g^\downarrow = n'\rho' E_g \Omega_g I [1 - S_{eff} P_n] \quad ,$$

$$N_d^\downarrow = n'\rho' E_d \Omega_d I [1 + S_{eff} P_n] \quad .$$

Dans cette deuxième expérience, nous avons tenu compte d'un changement de la position et de l'intensité du faisceau incident, en introduisant un nombre d'électrons incidents n' et un nombre d'atome d'or par unité d'aire p' différents de n et p . En définissant N^+ et N^- comme la moyenne géométrique des nombres des électrons qui arrivent sur chaque détecteur dans les deux cas, on a :

$$N^+ \equiv \sqrt{N_g^\uparrow N_d^\downarrow} = \sqrt{nn'\rho\rho' E_g E_d \Omega_g \Omega_d I [1 + S_{eff} P_n]} \quad ,$$

$$N^- \equiv \sqrt{N_g^\downarrow N_d^\uparrow} = \sqrt{nn'\rho\rho'E_g E_d \Omega_g \Omega_d I [1 - S_{eff} P_n]}$$

et on obtient bien une asymétrie qui n'inclut plus l'asymétrie factice :

$$A = \frac{N^+ - N^-}{N^+ + N^-} = P S_{eff}(\theta) .$$

2.5.3 Mesure du mouvement du spin

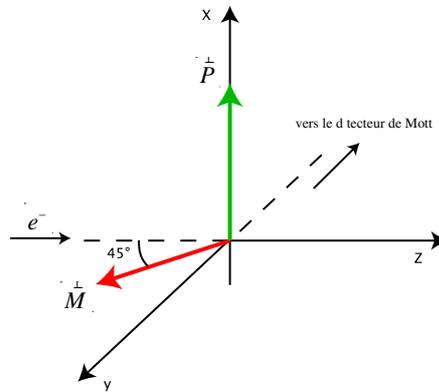


FIGURE 2.14 – Configuration de la polarisation initiale \vec{P}_0 et de l'aimantation \vec{M} dans notre expérience.

Dans notre expérience, pour supprimer les asymétries factices, nous réalisons des mesures dans plusieurs configurations. Nous notons que comme le détecteur de Mott n'est sensible qu'aux composantes P_x et P_z du vecteur polarisation, seules ces composantes seront discutées et exploitées. Considérons un faisceau d'électrons polarisés suivant l'axe $+x$, se propageant initialement suivant la direction $+z$, et une aimantation qui est dans le plan yz faisant un angle de 45° avec le plan xz . La polarisation du faisceau réfléchi est repérée par $\vec{P}^{(M\sigma)}$ avec $M = +$ si l'aimantation est suivant la direction définie sur la figure 2.14 et $\sigma = +$ si le vecteur polarisation est suivant l'axe $+x$. D'après la formule vue au chapitre précédent les composantes du vecteur polarisation sont alors pour la configuration $(M\sigma) = (++)$:

$$\vec{P}^{(++)} = \begin{cases} P_0 \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(A + P_0 \sqrt{1 - A^2} \sin \varepsilon) \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(A - P_0 \sqrt{1 - A^2} \sin \varepsilon) \end{cases} .$$

Après inversion uniquement de la direction de la polarisation initiale on obtient :

$$\vec{P}^{(+-)} = \begin{cases} -P_0 \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(A - P_0 \sqrt{1 - A^2} \sin \varepsilon) \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(A + P_0 \sqrt{1 - A^2} \sin \varepsilon) \end{cases} .$$

Après inversion uniquement de la direction de l'aimantation on obtient :

$$\vec{P}^{(-+)} = \begin{cases} P_0 \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(-A - P_0 \sqrt{1 - A^2} \sin \varepsilon) \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(-A + P_0 \sqrt{1 - A^2} \sin \varepsilon) \end{cases} .$$

Après inversion de la direction de la polarisation initiale ainsi que de la direction de l'aimantation on obtient :

$$\vec{P}^{(--)} = \begin{cases} -P_0 \sqrt{1 - A^2} \cos \varepsilon \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(-A + P_0 \sqrt{1 - A^2} \sin \varepsilon) \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(-A - P_0 \sqrt{1 - A^2} \sin \varepsilon) \end{cases} .$$

Se limitant aux composantes selon x et z on remarque les égalités suivantes :

$$P_x^{(++)} = P_x^{(-+)} = -P_x^{(+-)} = -P_x^{(--)} ,$$

$$P_z^{(-+)} = -P_z^{(++)} \quad ,$$

$$P_z^{(--)} = -P_z^{(+-)} \quad .$$

En constatant ces égalités, on peut combiner les mesures issues de différentes configurations pour obtenir des expressions pour A , P_0 et ε :

$$A = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(P_z^{(--),(+-)} + P_z^{(-+),(++)} \right) \quad ,$$

$$P_0 = \sqrt{\frac{\frac{1}{4} \left(P_x^{(++),(--)} + P_x^{(-+),(+-)} \right)^2 + \frac{1}{2} \left(P_z^{(-+),(++)} - P_z^{(--),(+-)} \right)^2}{1 - A^2}} \quad ,$$

$$\varepsilon = \arcsin \left(\frac{\frac{1}{\sqrt{2}} \left(P_z^{(-+),(++)} - P_z^{(--),(+-)} \right)}{P_0 \sqrt{1 - A^2}} \right) \quad .$$

2.5.4 Accélération à 100 keV

Avant d'entrer dans le détecteur de Mott, les électrons doivent être accélérés à une énergie de 100 keV. Ils sont accélérés en passant par des éléments d'optique de tension croissante, de 400 V, 2kV, 6 kV, 50 kV et enfin 100 kV. Les deux derniers éléments possèdent une géométrie sphérique afin de réduire de façon significative les problèmes d'alignement. Etant donné la haute tension utilisée dans le détecteur de Mott, il est vital de protéger les équipements et les utilisateurs. L'ensemble du détecteur, c'est à dire la partie ultra-vide et le système électronique de comptage, est placé dans une cage de Faraday d'un volume de plusieurs mètres cube. De plus l'air ambiant doit être sec afin d'éviter toute ionisation et donc court circuit dans l'air ambiant. L'air entourant la partie à 100 kV du détecteur de Mott est donc chauffé en permanence pendant son utilisation.

Deuxième partie

Résultats et discussion

Chapitre 3

Mouvement du spin dans le système Fe/Ag(001)

Le choix du système Fe/Ag(001) est motivé par le fait que la différence de paramètre de maille entre Fe et Ag est faible et permet une bonne épitaxie. De ce fait il s'agit d'un système idéal pour l'étude de l'interaction entre la polarisation du faisceau d'électrons incident et l'aimantation d'un film ferromagnétique. Dans cette partie, nous présentons les mesures des angles du mouvement du spin sur ce système. Notamment, nous obtenons une précession de spin de 180° , soit la valeur ultime qu'il est possible de mesurer dans ce type d'expérience.

3.1 Echantillon

3.1.1 Substrat

Le substrat est un monocristal d'argent. Préalablement à tout dépôt de Fe, le cristal est décapé par bombardement ionique. Il est ensuite recuit à une température de 800 K, ce qui améliore la qualité de la surface du substrat. Aucune contamination de la surface d'Ag n'a été observée par spectroscopie Auger.

3.1.2 Fe : propriétés cristallographiques

Structure cristallographique

Le fer cristallise dans une structure de type cubique centré (cc) de paramètre de maille $a = 2,87 \text{ \AA}$. Cette structure cristallographique lui confère une anisotropie magnétocristalline d'ordre quatre (toutes les directions cristallographiques ne sont pas équivalentes). Plus particulièrement, le Fe cc s'aimante plus facilement selon les axes correspondants aux arêtes du cube de la structure cristallographique. Ce sont les axes dits de facile aimantation et ils correspondent aux directions cristallographiques $[001]$, $[010]$ et $[100]$. Les autres directions comme $[110]$ ou $[111]$ sont des axes dits difficiles, la direction $[111]$ étant la plus difficile. Dans le cas de nos échantillons, le champ magnétique extérieur est appliqué parallèlement aux plans (001) des couches, suivant la direction $[100]$ (axe facile) de telle manière que la polarisation initiale du faisceau d'électrons incident et l'aimantation de l'échantillon sont perpendiculaires.

Epitaxie de Fe(001) sur Ag(001)

L'Ag cristallise dans une structure cubique à faces centrées (voir figure 3.1) dont le paramètre de maille est de $4,08 \text{ \AA}$. Lors de la croissance de Fe sur Ag(001), il y a une rotation de 45° entre les directions $[100]$ des mailles de Fe et d'Ag. De cette manière, le désaccord paramétrique entre les mailles des réseaux de Fe et Ag est faible ($-0,9\%$). L'arrangement atomique de l'argent est tel que les atomes définissent un site au centre du carré formé par quatre atomes d'Ag (voir figure 3.1). Ces sites sont occupés par les atomes du premier plan atomique de Fe. Concernant l'arrangement du second plan atomique du Fe, les atomes se superposent à ceux de l'Ag. Tout ceci conduit à un arrangement atomique de surface du Fe identique à celui des atomes d'Ag : le diagramme de diffraction doit être similaire.

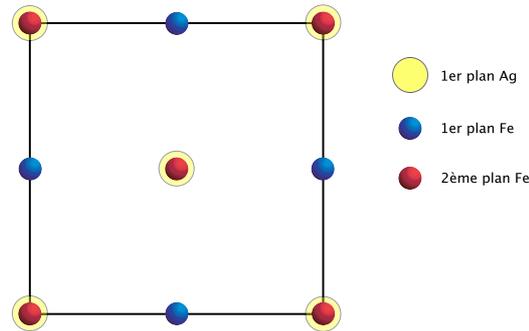


FIGURE 3.1 – Arrangement atomique des deux premiers plans de Fe sur la surface de Ag(001).

3.1.3 Etude du mode de croissance

Une controverse existe quant au mode de croissance de Fe/Ag(001). Certains groupes indiquent une croissance couche par couche pour les premières couches au moins [59, 60, 61], alors que dans d'autres cas on trouve une croissance tridimensionnelle [62]. Afin de clarifier cette question, nous avons procédé à notre propre étude du mode de croissance.

Dépôt de Fe

Les films monocristallins de Fe(001) sont réalisés par épitaxie par jets moléculaires. Les dépôts se font à température ambiante, à partir d'une tige de fer massif qui est chauffée par bombardement électronique. La pression dans la chambre est inférieure de 3.10^{-10} mbar.

Analyse par spectroscopie Auger

La figure 3.2 montre les résultats de l'analyse par spectroscopie Auger de nos échantillons. Le spectre a été acquis sur une gamme d'énergie allant de 500 eV à 750 eV, pour un film de 35 MC de Fe. On observe les trois pics caractéristiques du fer à 596 eV, 651 eV et 703 eV, confirmant la nature du film et écartant tout problème lors du dépôt. On

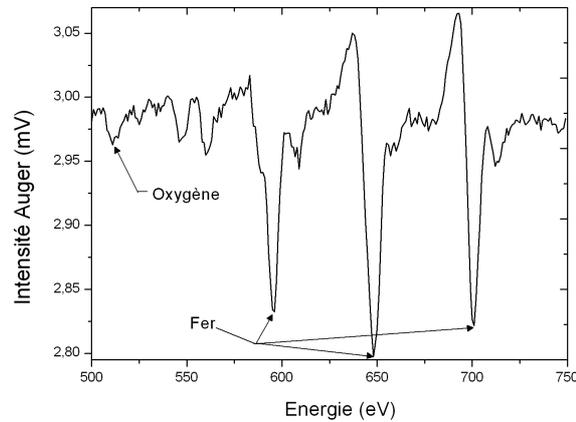


FIGURE 3.2 – Spectre Auger réalisé sur 35ML de Fe, entre 500 eV et 750 eV. On note les trois pics associés à Fe ainsi qu’un pic associé à une faible contamination de la surface par de l’oxygène.

remarque également un pic à 510 eV. Ce pic est associé à l’oxygène, et traduit donc une légère contamination du film de Fe par l’oxygène, malgré la pression très faible dans la chambre.

La figure 3.3 montre l’intensité du pic Auger de l’Ag à 351 eV en fonction de l’épaisseur du film d’Ag et son ajustement par une exponentielle décroissante. Entre deux enregistrements de spectres Auger, un dépôt de 30 s à une vitesse de 0.1 nm/min était effectué. Comme chaque mesure d’un spectre Auger prenait quelques minutes, la vitesse moyenne et effective de dépôt du Fe était alors beaucoup plus faible que 0.1 nm/min.

En général, la variation du signal dans la matière peut être décrite par une loi exponentielle :

$$I(d) = I_0 e^{-\frac{d}{l \cos \alpha}}$$

avec I_0 l’intensité d’une transition Auger du substrat non recouvert, d l’épaisseur du film déposé et l la longueur d’atténuation des électrons dans le film. Le facteur $\cos \alpha$ tient compte de l’angle d’émergence des électrons par rapport à la normale de l’échan-

tillon. La distribution angulaire du faisceau d'électrons Auger dans notre dispositif (un système LEED à quatre grilles) est comprise entre 5° et 50° tel que l'intensité du pic Auger mesurée est donnée par :

$$I(d) = \int_{5^\circ}^{50^\circ} I_0 e^{-\frac{d}{\lambda \cos \theta}} \sin \theta d\theta \approx I_0 e^{-\frac{d}{\lambda \cos 34^\circ}} .$$

On peut considérer que les électrons s'échappent avec un angle moyen θ de 34° .

L'ajustement suivant cette loi nous permet de déterminer la longueur d'atténuation des électrons dans le Fe, autour de 0,6 nm, ce qui est en bon accord avec le libre parcours moyen des électrons à cette énergie calculé par Tanuma *et al.* [63]. On peut conclure que le mode de croissance de Fe/Ag(001) semble être couche par couche.

Cependant, nous avons remarqué qu'en augmentant la vitesse de dépôt moyenne l'analyse des spectres Auger indique plutôt une croissance par îlots. Les conditions de dépôt (vitesse et temps de déposition) ont donc une grande influence sur le mode de croissance de Fe/Ag(001).

Pour toutes les expériences qui suivent, les dépôts ont été réalisés dans les conditions expérimentales utilisées pour l'obtention de la figure 3.3, c'est à dire en augmentant le temps entre deux dépôts consécutifs, ce qui revient à diminuer la vitesse de dépôt moyenne. Ainsi, la croissance est couche par couche. On note également que des substrats avec de faibles densités de marches sont nécessaires pour éviter la formation d'îlots pendant la croissance [60].

Analyse de la qualité cristalline par LEED

Le Figure 3.4 montre les clichés de diffraction LEED réalisés sur le substrat d'Ag(001) à une énergie des électrons de 120 eV (a), et sur un film de 35 MC (1 MC=0.143 nm) de Fe sur Ag(001) à une énergie des électrons de 100 eV (b). Concernant le substrat (a), on observe un diagramme de diffraction correspondant au réseau cfc de Ag(001). Les points sont précis et peu diffus, surtout après recuit, indiquant une bonne qualité cristalline et une surface non-contaminée. Comme précisé précédemment, l'arrangement

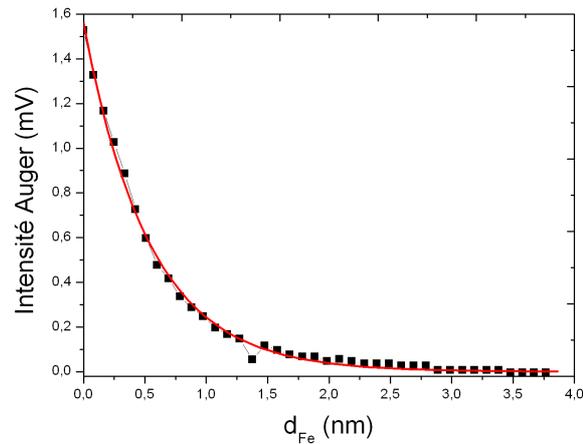


FIGURE 3.3 – Intensité du pic de l’Ag à 351 eV en fonction de l’épaisseur de Fe déposée et ajustement par une exponentielle décroissante (trait rouge). La vitesse de dépôt est de 0,1 nm/min. On trouve une longueur d’atténuation de 0,6 nm.

atomique du Fe est similaire à Ag, on a donc logiquement un diagramme de diffraction similaire (b). Là encore, la surface est de bonne qualité.

Il a été montré que dans le cas d’une surface vicinale [64], on observe un dédoublement des spots pour un angle vicinal supérieur à 4° , indiquant la formation de marches atomiques périodiques. Ce n’est pas le cas ici.

Influence de la vitesse de dépôt sur le mouvement du spin

La figure 3.5 présente la mesure de l’angle de précession lors de la croissance du film de Fe/Ag(001), pour des vitesses de dépôt lentes et rapides. On s’aperçoit qu’avec une vitesse de dépôt rapide, la valeur de ϵ sature vers 10° , tandis qu’avec une vitesse de dépôt lente (et en faisant plus de mesures qui interrompent le dépôt, obtenant ainsi une vitesse moyenne plus faible) on peut obtenir une valeur de ϵ de l’ordre de 60° . Ceci illustre la caractéristique déterminante de la vitesse de dépôt sur le mouvement du spin.

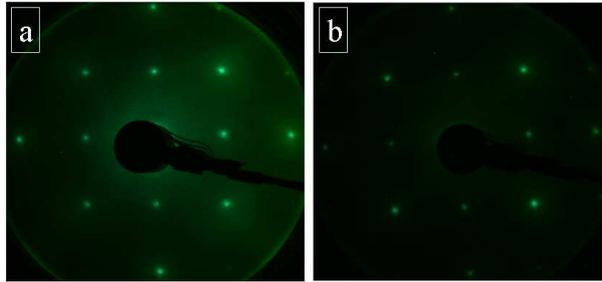


FIGURE 3.4 – Etude LEED de la croissance de Fe sur Ag(001). a) Cliché de diffraction d’un monocristal de Ag(001) avant dépôt de Fe, à 120 eV. b) Cliché de diffraction de 35 MC de Fe sur Ag(001) à 100 eV. L’axe [110] est horizontal.

3.2 Etudes précédentes

3.2.1 Résultats

Les résultats présentés dans cette partie sont issus des travaux précédents de L. Tati-Bismaths *et al.* [41, 65].

La figure 3.6 montre les angles du mouvement du spin ϵ et ϕ en fonction de l’épaisseur de Fe déposée pour une énergie des électrons incidents de 6,5 eV. Trois régimes peuvent être observés. De 0 à 4 MC, aucun mouvement du spin n’est détecté. Ce comportement s’explique par plusieurs raisons. Il a été montré pour le système Fe/Ag(001) que la température de Curie de Fe est légèrement inférieure à la température ambiante pour des épaisseurs inférieures à 2 MC. T_C augmente ensuite linéairement avec l’épaisseur de Fer (jusqu’à 3,4 MC), pour atteindre une valeur autour de 500 K [66]. De plus, d’autres études montrent un changement d’orientation de l’axe de facile aimantation pour une épaisseur de 4 MC. Ainsi, l’aimantation passe d’une configuration perpendiculaire au plan de la surface à une configuration dans le plan de la surface. Or, notre dispositif expérimental, avec ses bobines disposées de chaque côté de l’échantillon, nous permet de créer un champ parallèle à la surface uniquement. Il est donc impossible d’aimanter l’échantillon de manière rémanente perpendiculairement à la surface et de

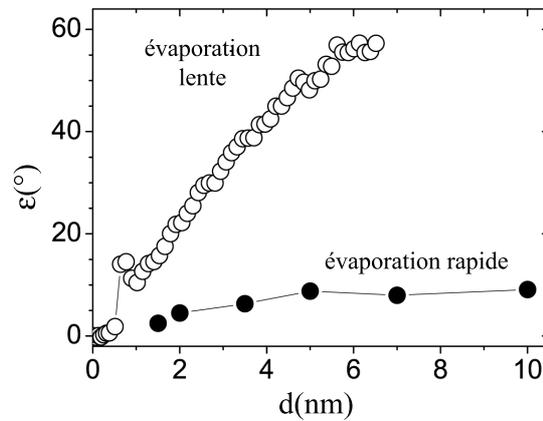


FIGURE 3.5 – Angle de précession ϵ en fonction de l'épaisseur de Fe déposée pour deux vitesses d'évaporation différentes. L'énergie des électrons incidents est $E - E_F = 7eV$. Une vitesse d'évaporation lente permet d'obtenir des valeurs de ϵ plus grandes.

mesurer un mouvement du spin. Les angles de précession et de rotation sont donc nuls en dessous de 4 MC de Fe.

Au dessus de 4 MC, on observe d'abord que les angles ϵ et ϕ sont constants jusqu'à une épaisseur critique de 11-12 MC et augmentent linéairement ensuite jusqu'à 50 MC. Alors que la longueur de pénétration des électrons est de 1-2 nm à cette énergie, il est très surprenant d'observer une augmentation des angles du mouvement du spin jusqu'à des épaisseurs plus grandes. Nous pensons que la structure de bandes de Fe n'est pas stable durant la croissance, même pour des épaisseurs de l'ordre de plusieurs nanomètres. En effet, du fait de la différence de paramètre de maille entre Fe et Ag, la croissance pseudomorphe de Fe induit l'accumulation d'énergie élastique. A partir de l'épaisseur critique, cette énergie élastique est libérée par la création de dislocation interfaciales [67], et le paramètre de maille relaxe progressivement. Les variations de paramètre de maille modifient la structure de bande et influent fortement sur les angles du mouvement du spin.

En plus de ce phénomène, la mesure des angles du mouvement du spin présente des

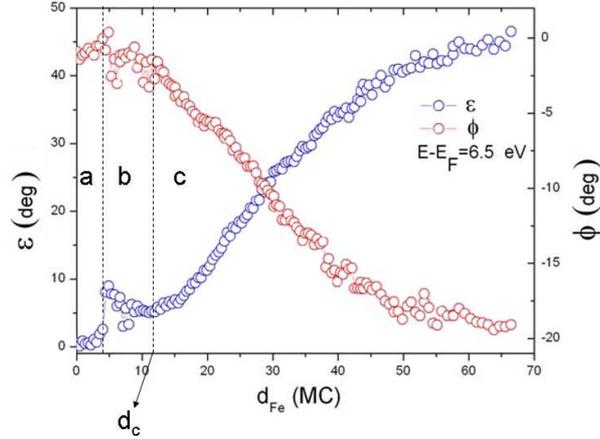


FIGURE 3.6 – Angles de précession ϵ (points bleus) et de rotation ϕ (points rouges) en fonction de l'épaisseur de Fe déposée pour une énergie des électrons incidents de 6,5 eV. On distingue trois régimes.

oscillations de l'angle de rotation et de précession (voir figure 3.7). On voit clairement deux périodes d'oscillations, dont l'existence est confirmée par une analyse de Fourier : une période d'une monocouche, qui est indépendante de l'énergie d'électrons incidents et une période plus longue (3,3 MC) qui dépend de l'énergie d'électrons incidents. L'existence de ces deux période d'oscillations a été observée pour les mesures avec une énergie des électrons incidents $E - E_F$ comprise entre 6 et 9 eV. L'origine de ces oscillations a été attribuée à un phénomène de puits quantique et à la variation périodique du paramètre de maille durant la croissance de Fe.

3.2.2 Oscillations dues à un effet de puits quantique

Un puits quantique correspond à une zone de l'espace où le potentiel ressenti par une particule atteint un minimum. Il s'agit d'une structure de basse dimensionnalité, c'est à dire que la dimension de la structure dans une des directions de l'espace est de l'ordre de la longueur d'onde de Broglie. Il y a confinement de la particule et les prédictions de la mécanique classique ne sont plus valides : l'énergie est quantifiée.

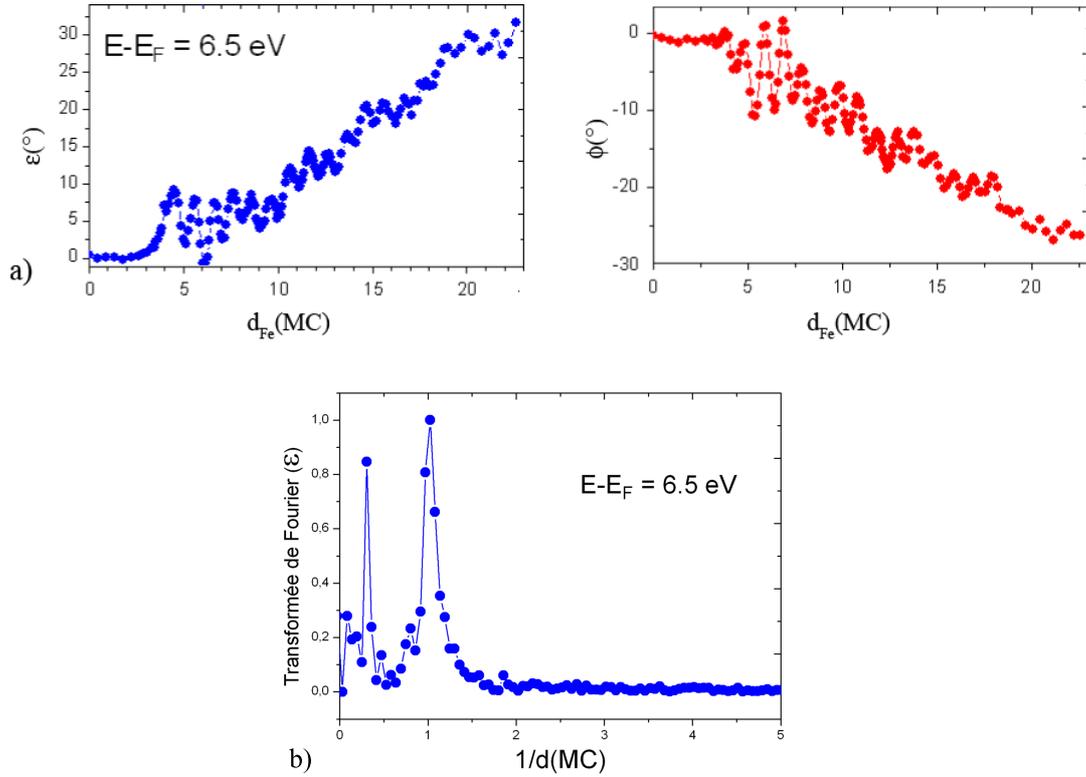


FIGURE 3.7 – a) Angles de précession ϵ (points bleus) et de rotation ϕ (points rouges) en fonction de l'épaisseur de Fe déposée pour une énergie des électrons incidents de 6,5 eV. b) Transformée de Fourier de l'angle de précession. On identifie deux fréquences d'oscillation, d'une périodicité d'1 MC et de 3,3 MC.

Il est possible de mettre en évidence des états de puits quantique dans des films minces, qui confinent le mouvement des électrons dans la direction perpendiculaire à la surface. Dans des nanostructures métalliques, lorsque l'un des matériaux est ferromagnétique, l'interface crée une dépendance en spin du confinement. Dans ce cas, il a été montré que les états de puits quantiques sont responsables d'un certain nombre de phénomènes oscillatoires, comme par exemple les oscillations du couplage d'échange entre deux couches ferromagnétiques séparées par une couche non-magnétique [68, 69]. Récemment, l'influence des états de puits quantiques sur le mouvement du spin de l'électron a également été étudiée [40, 41, 42].

Les solutions de l'équation de Schrödinger pour un électron dans un puits quantique sont des ondes stationnaires caractérisées pas le nombre quantique n , le nombre de demi-longueurs d'onde qui s'étendent dans le puits. Si l'électron est confiné dans un puits d'épaisseur d , des interférences constructives se produisent si le vecteur d'onde k de l'électron remplit la condition suivante :

$$2kd + \phi = 2\pi n$$

On considère que la fonction d'onde de l'électron est modulée par une fonction enveloppe (voir figure 3.8) de vecteur d'onde $k_{env} = k_{BZ} - k$, où $k_{BZ} = \pi/a$ correspond au bord de la zone de Brillouin, a au paramètre de maille. On peut récrire l'équation précédente :

$$2(k_{BZ} - k)d - \phi = 2\pi\nu$$

avec $\nu = m - n$ et m est le nombre de couches atomiques dans le puits.

Dans le cas d'un matériau ferromagnétique, on a deux vecteurs d'onde k_{env}^\uparrow et k_{env}^\downarrow qui donnent naissance à deux périodes d'oscillations :

$$\Lambda_1 = \frac{2\pi}{|k_{env}^\uparrow - k_{env}^\downarrow|}$$

$$\Lambda_2 = \frac{2\pi}{k_{env}^\uparrow + k_{env}^\downarrow}$$

En utilisant un modèle d'électrons libres et en considérant une marche de potentiel unidimensionnelle, on peut calculer l'ordre de grandeur de ces deux périodes d'oscillation. La première période ne serait pas mesurable car elle est bien supérieure au libre parcours moyen des électrons dans la couche de Fe. La seconde période est mesurable. Notons que celle-ci dépend de l'énergie et ne correspond donc pas aux oscillations d'une période d'une monocouche observées quelque soit l'énergie. On l'identifie à la période d'oscillation plus longue (environ 3,3 MC pour une énergie des électrons incidents $E - E_F = 6,5$ eV, voir figure 3.7). De plus la variation de cette période mesurée en fonction de l'énergie présente un comportement caractéristique de l'existence d'états quantiques dans la couche de Fe [70].

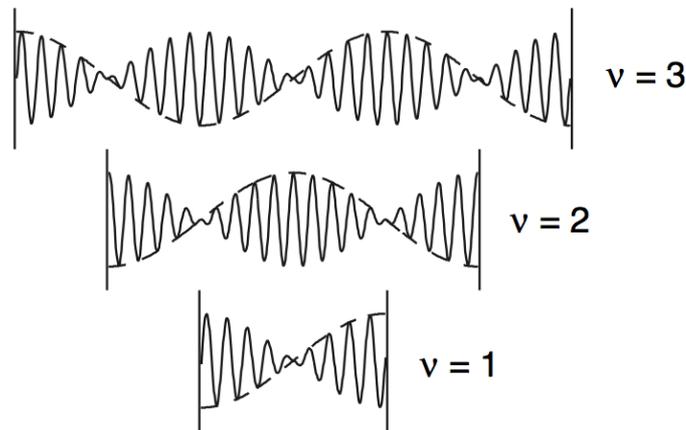


FIGURE 3.8 – Représentation schématique des fonctions d’onde dans un puits quantique à une énergie donnée pour $\nu = 1, 2, \text{ et } 3$. L’amplitude de l’onde électronique d’oscillation rapide est modulée par la fonction enveloppe (ligne pointillée).

3.2.3 Oscillations dues à la variation périodique du paramètre de maille

L’origine des oscillations des angles du mouvement de spin de période d’une monocouche est attribuée à la variation périodique du paramètre de maille de Fe pendant la croissance. Le désaccord paramétrique entre Fe et Ag (-0,9 %) induit une contrainte dans le film, mais seuls les atomes de la couche incomplète en surface, situés en bord d’îlots peuvent relaxer. Les couches complètes du film ont un paramètre de maille identique à celui du substrat. En effet, des atomes en bordure d’îlots, possèdent moins de voisins et n’ont pas autant de liaisons que les atomes au sein des îlots. Par conséquent, le paramètre de maille moyen du film change et dépend du nombre et de la taille des îlots. La relaxation pour de gros îlots est faible, alors que pour de petits îlots avec un nombre relativement élevé d’atomes en bordure la relaxation est forte.

La figure 3.9 montre la relaxation et l’évolution du paramètre de maille moyen en fonction de l’épaisseur du film pour le système Co/Cu(001)[71]. En l’occurrence le

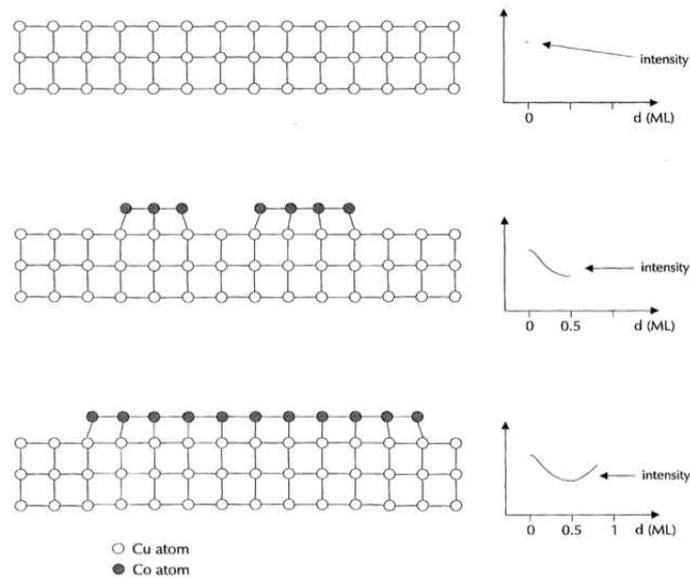


FIGURE 3.9 – Illustration de la relaxation et de l'évolution du paramètre de maille moyen dans la couche de surface pour Co/Cu en fonction de l'épaisseur de Co déposée, et intensité RHEED correspondante [71]. Le paramètre de maille est minimum pour les couches semi-complètes.

désaccord paramétrique est positif. Alors que pour une couche à moitié complète le paramètre de maille moyen est minimal, les contraintes dans le film pour une couche complète sont maximales, c'est à dire que le paramètre de maille moyen est celui du substrat. Nous avons donc des oscillations du paramètre de maille moyen avec une période d'une monocouche pendant la croissance.

Il est vraisemblable qu'un phénomène similaire se produise pour le système Fe/Ag(001), cette fois-ci avec un désaccord paramétrique négatif. La variation de la morphologie en surface, oscillant entre couche complète et couche semi-complète, provoque une oscillation du paramètre de maille, qui induit une oscillation des angles du mouvement du spin de même périodicité.

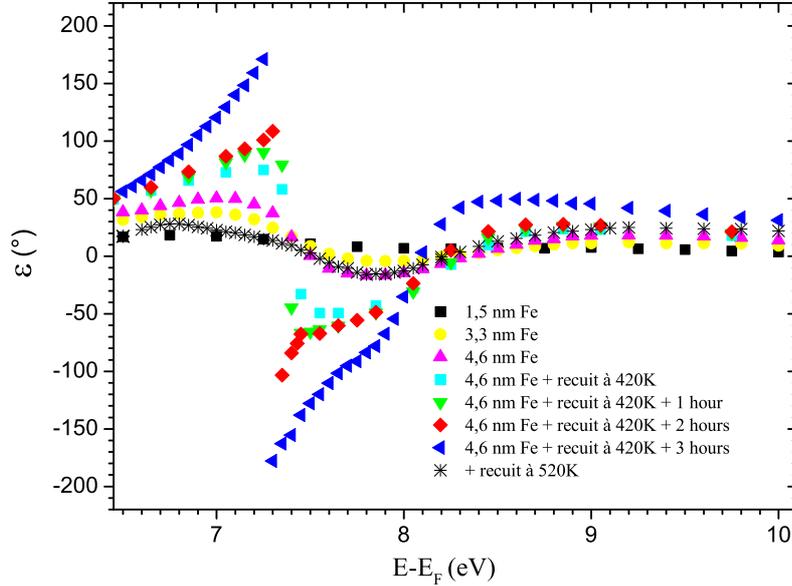


FIGURE 3.10 – Angle de précession en fonction de l'énergie des électrons incidents $E - E_F$ pour différents échantillons de Fe

3.3 Résultats

La figure 3.10 représente l'angle de précession ϵ pour différents échantillons de Fe. La première étape a consisté à varier l'épaisseur de Fe déposée à température ambiante. Autour de $E - E_F = 7,4$ eV, une structure "plus/moins" devient plus prononcée en augmentant l'épaisseur. Pour un film de 4,6 nm de Fe, on obtient une valeur de 50° pour ϵ . Si on suppose que l'augmentation de l'angle de précession en fonction de l'épaisseur de Fe est due à une relaxation de la contrainte, un recuit de l'échantillon devrait provoquer une exaltation encore plus importante de cette valeur. En effet, l'effet de températures plus élevées est connu pour promouvoir une relaxation du réseau. C'est pourquoi nous avons recuit le film à 420 K pendant 10 minutes avant la mesure. On constate une augmentation drastique de la structure considérée, ϵ atteignant une valeur de plus de 110° . En répétant la mesure, on s'aperçoit que le film n'est pas stable : une heure après

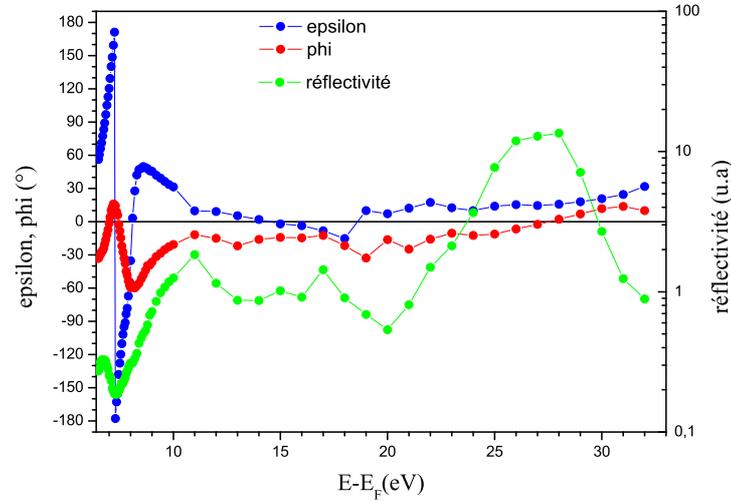


FIGURE 3.11 – Angles de précession ϵ , de rotation ϕ et intensité des électrons réfléchis I en fonction de l'énergie des électrons incidents. On remarque une structure autour de $E - E_F \sim 7eV$.

le recuit, les valeurs des angles du mouvement du spin sont supérieures. Ceci indique un processus de relaxation très lent. Après trois heures, la structure "plus/moins" est stable et on obtient finalement une valeur de 180° . Chose intéressante, lorsque ϵ a atteint 90° , sa valeur continue à augmenter. Aucune mesure n'a pu mettre en évidence une diminution de ϵ après avoir dépassé 90° . On note qu'il n'est pas possible de faire la différence entre une augmentation au-delà de 180° et une variation de -180° vers des valeurs moins négatives. A ce titre, 180° est la valeur maximale qu'il est possible de détecter dans ce type d'expérience. On remarque aussi qu'un recuit d'une durée de 30 minutes permet d'obtenir une structure à 180° directement, sans avoir besoin de temps d'attente.

Enfin, l'échantillon a été recuit à 520 K. A cette température, il y a diffusion d'atomes d'argent en surface. En effet, d'après la littérature cette diffusion se produit au-delà de 500 K [72]. Cette hypothèse a été confirmée par une analyse Auger. La formation d'un alliage avec des atomes d'argent en surface atténue l'aimantation

du système. Ainsi, l'amplitude de la structure "plus/moins" diminue jusqu'aux valeurs faibles observées avant recuit. On notera que l'on doit différencier un recuit et la croissance d'un film à haute température. Le recuit à 420 K d'un film de Fe épais ne génère pas d'interdiffusion, ce qui n'est pas le cas lors de la croissance d'un film de Fe à cette même température. C'est pourquoi nous n'avons pas effectué d'expériences avec des films de Fe dont la croissance a été faite à chaud, car l'interdiffusion commence déjà pour des températures très modérées.

La figure 3.11 montre les angles du mouvement du spin ϵ et ϕ ainsi que l'intensité des électrons réfléchis I , mesurés sur une gamme d'énergie plus grande (6,5 eV à 35 eV). L'échantillon est un film de Fe de 4,6 nm d'épaisseur ayant été recuit à 420 K. On observe que la structure principale formée par ϵ à 7,4 eV est accompagnée d'un minimum prononcé de l'intensité. Egalement la valeur de ϵ , bien que faible par rapport à la structure, reste significative pour la plupart des énergies supérieures à 10 eV. L'angle de rotation ϕ présente également une structure dans la gamme d'énergie 7-8 eV, avec une valeur minimum de -60° . On note que les valeurs minimales et maximales pouvant être prises par ϕ sont -90° et 90° et correspondent aux situations où respectivement la polarisation du faisceau après interaction est antiparallèle ou parallèle à l'aimantation.

La dépendance en énergie de ϕ comparée à ϵ est inhabituelle pour les énergies autour de la structure à 7,4 eV. En fait, comme nous l'avons vu au chapitre 1, notre expérience est analogue à une expérience d'effet Kerr magneto-optique longitudinal [73]. Il existe une relation entre ϵ et ϕ qui est similaire à la relation de Kramers-Kronig existant entre l'ellipticité et la rotation Kerr [74]. Ainsi, la dérivée par rapport à l'énergie de ϵ reproduit fidèlement le tracé de la dépendance en énergie de ϕ [11]. Toutefois, pour cette expérience ce principe n'est valide que pour les faibles valeurs de ϵ . Il semble qu'en augmentant l'amplitude de la structure en ϵ à 7,4 eV, on s'éloigne de cette relation. Dans le cas de photons, un tel comportement a également été observé pour des expériences par effet Kerr [75].

3.4 Discussion

Nous avons montré au chapitre précédent l'influence de la relaxation sur le mouvement du spin de l'électron dans le système MgO/Fe(001). La variation du paramètre de maille hors-plan entraîne une modification importante de la structure électronique du système. Dans le cas du système Fe/Ag(001), nous pensons également que la relaxation du réseau de Fe est responsable de la précession de spin *geante* observée à basse énergie. Cette hypothèse a été confirmée à l'aide de simulations *ab initio*.

3.4.1 Méthode de calcul

La simulation est basée sur un processus en deux étapes similaire à celui utilisé pour le système MgO/Fe(001). Cela consiste d'abord en l'obtention des potentiels auto-consistants par la méthode LMTO (Linear Muffin-Tin Orbital) [52]. Nous nous intéressons aux faibles énergies car l'ensemble des fonctions d'onde de base utilisé dans la méthode LMTO ne permet pas de déterminer la structure électronique aux énergies supérieures. De plus, nous avons systématiquement vérifié la concordance des valeurs obtenues par cette méthode avec celles obtenues par la méthode FLAPW (Full-Potential Linear Augmented Plane Wave), qui nous permet également de calculer la relaxation. Les potentiels obtenus sont ensuite utilisés pour calculer le mouvement du spin en géométrie de réflexion par la méthode KKR (Korringa-Kohn-Rostocker) [53]. Le paramétrage des calculs a été fait par A. Hallal (thèse en préparation).

Nous avons pris en compte une maille élémentaire du réseau de Fe, sur neuf couches atomiques. On présume que le volume d'une maille élémentaire reste constant, comme cela a été montré par une étude LEED sur un système similaire Fe/GaAs [48]. C'est pourquoi, si le paramètre de maille dans le plan de la surface est augmenté de a_{\parallel} de 1 %, le paramètre de maille hors-plan (perpendiculairement à la surface) a_{\perp} est diminué de 2 %.

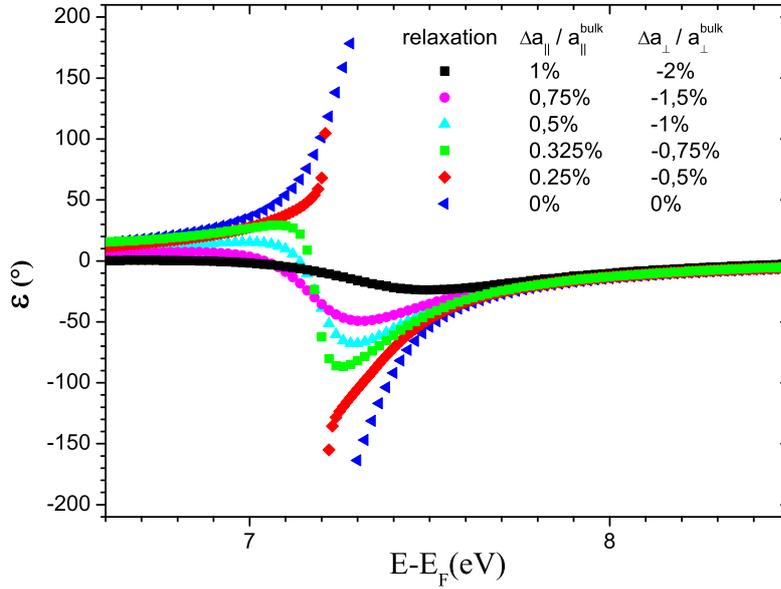


FIGURE 3.12 – Angle de précession ϵ calculé en fonction de l'énergie des électrons incidents pour différents degrés de relaxation du réseau de Fe.

3.4.2 Relaxation hors-plan de la distance intercouche

La figure 3.12 représente l'angle de précession ϵ calculé en fonction de l'énergie des électrons incidents pour différents degrés de relaxation du réseau. Bien que la structure autour de 7,3 eV s'étende sur une gamme d'énergie plus faible, on observe qualitativement la même tendance. Pour les fortes contraintes, la structure est petite. En diminuant la contrainte, la structure devient plus prononcée. En particulier, entre $\Delta a_{\perp} / a_{\perp}^{bulk} = -0,75\%$ et $-0,5\%$, on observe une augmentation spectaculaire : ϵ atteint une valeur de 180° . Cette simulation montre que l'angle de précession est extrêmement sensible à la relaxation du réseau. On peut s'interroger quant à l'apparition de cette forte sensibilité autour d'une énergie particulière. On peut penser qu'il s'agit d'une manifestation de l'effet Ramsauer-Townsend généralisé [76].

La figure 3.13 montre la simulation des angles de précession ϵ et de rotation ϕ ainsi que l'intensité I des électrons réfléchis en fonction de l'énergie pour un film de Fe

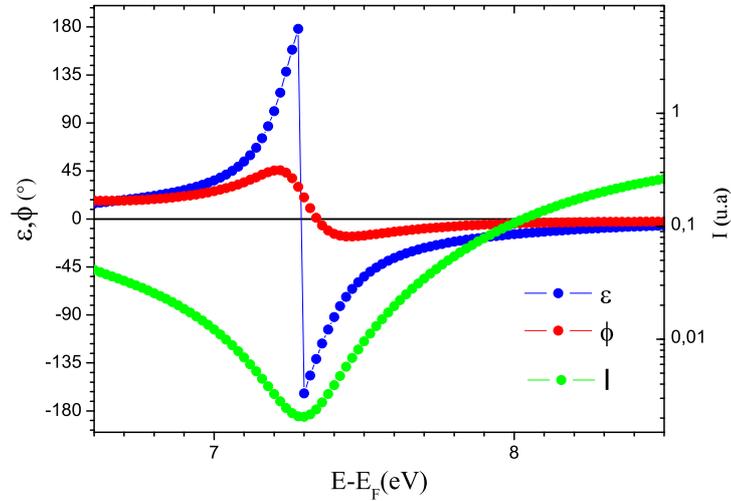


FIGURE 3.13 – Angles de précession ϵ , de rotation ϕ et intensité des électrons réfléchis calculés en fonction de l'énergie des électrons incidents pour un film de Fe complètement relaxé.

complètement relaxé ($\Delta a_{\perp}/a_{\perp}^{bulk} = \Delta a_{\parallel}/a_{\parallel}^{bulk} = 0$). De manière identique aux résultats expérimentaux, la structure $\pm 180^\circ$ formée par l'angle de précession est accompagnée par une structure de ϕ et un minimum prononcé de l'intensité réfléchie. Cependant, comme pour ϵ , ces structures apparaissent sur une gamme d'énergie plus réduite par rapport aux résultats expérimentaux. Nous ignorons la raison d'une telle différence, qui ne peut pas être expliquée par la résolution en énergie du dispositif expérimental (environ 0,3 eV). On note que les structures de l'angle ϕ expérimental et calculé sont décalées de 40° verticalement, bien que leur amplitude soit comparable (76° pour l'expérience et 62° pour la simulation).

On note qu'en plus de la relaxation du paramètre de maille volumique, une relaxation additionnelle de la distance intercouche des deux premières couches de Fe a été prise en compte. La figure 3.14 montre la relaxation de la surface calculée pour un film complètement relaxé dans le volume. Les simulations réalisées sans prendre en compte cet effet montrent que la forte augmentation de ϵ apparaît maintenant entre

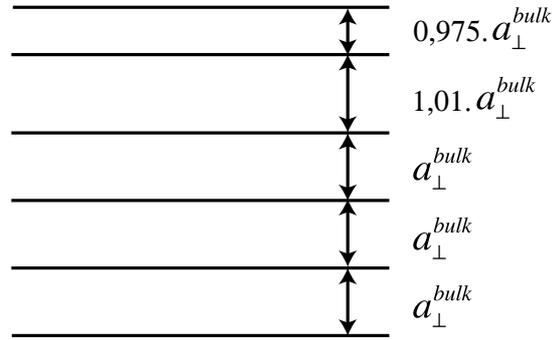


FIGURE 3.14 – Relaxation des deux premières couches de Fe en surface dans le cas où le paramètre de maille dans le volume est complètement relaxé.

$\Delta a_{\perp}/a_{\perp}^{bulk} = -1,5\%$ et -1% , c'est à dire pour des films moins relaxés.

3.4.3 Ramsauer-Townsend

Comme nous avons vu précédemment, la relaxation de la couche de fer exalte une structure dans la gamme d'énergie 6-9 eV. Pourquoi cet effet ne se manifeste pas à d'autres énergies? Nous pensons à l'effet Ramsauer-Townsend.

Ramsauer et Townsend [77, 78] ont observé que la diffusion des électrons pour un gaz noble d'argon, autour d'une énergie de 1 eV, présente un minimum qui n'est pas prévu par la théorie cinétique des gaz. N. Bohr donna une explication de cet effet à partir de la formule de l'amplitude de diffusion d'électrons par un atome. L'amplitude totale est déterminée par les amplitudes partielles des différents moments angulaires tel que :

$$f(\alpha, k) = (2ik)^{-1} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1)(e^{2i\delta_l} - 1)P_l(\cos \alpha)$$

avec l le moment angulaire, δ_l la phase partielle, $P_l(\cos \alpha)$ le polynome de Legendre d'ordre l . Pour de faibles énergies cinétiques, seule l'orbitale s contribue et on a donc qu'une seule phase partielle δ_0 . Si $\delta_0 = 180^\circ$, la diffusion est minimale. A plus hautes énergies, on parle d'effet Ramsauer-Townsend généralisé. Plusieurs ondes partielles

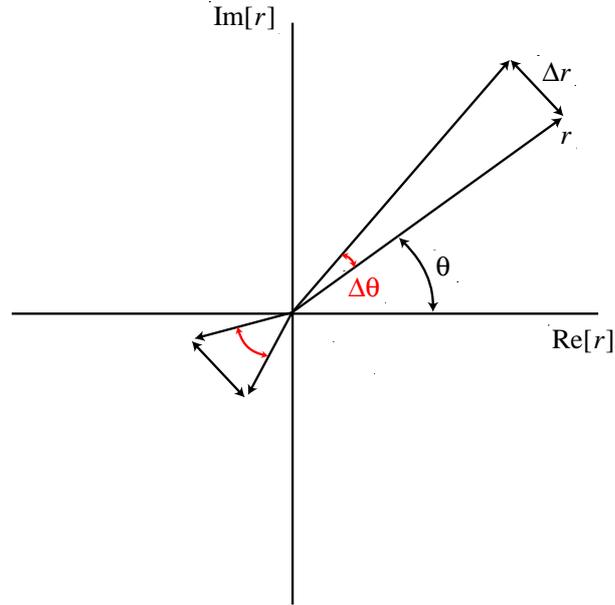


FIGURE 3.15 – Représentation de $r^{\uparrow,\downarrow}$ dans l'espace complexe. On applique la même variation $\Delta r^{\uparrow,\downarrow}$ dans le cas où $I^{\uparrow,\downarrow}$ est grand ou petit. On voit que lorsque $I^{\uparrow,\downarrow}$ est petit, la variation de phase est plus grande.

contribuent à l'amplitude de diffusion (dans notre cas $l = 0 - 4$). C'est pourquoi, alors qu'avec l'effet Ramsauer-Townsend classique on a une amplitude nulle pour tous les angles et à basse énergie, l'effet Ramsauer-Townsend généralisé n'apparaît qu'à des énergies et angles spécifiques.

Pour obtenir une structure en ϵ aussi prononcée, il est clair que les phases totales dépendantes en spin $\theta^{\uparrow,\downarrow}$ doivent subir une variation très forte. D'après la figure 3.11, on voit que la structure "plus/moins" coïncide avec un minimum d'intensité prononcé, pouvant correspondre à l'effet Ramsauer-Townsend. Dans ce cas, la moindre variation de $r^{\uparrow,\downarrow}$ provoquée par la relaxation aura une grande influence sur la valeur de l'angle ϵ . En effet, dans notre expérience, lorsque les intensités réfléchies dépendantes en spin $I^{\uparrow,\downarrow}$ ($\sim |r^{\uparrow,\downarrow}|^2$) sont faibles, une variation donnée de $r^{\uparrow,\downarrow}$ donne lieu à une variation de $\theta^{\uparrow,\downarrow}$ (et donc de ϵ) beaucoup plus forte que lorsque $I^{\uparrow,\downarrow}$ est grand (voir figure 3.15). D'autre part, nos calculs ont montré que l'amplitude de la structure "plus/moins"

est liée au minimum d'intensité : plus l'intensité est faible, plus la structure en ϵ est prononcée.

3.4.4 Structure de bandes

Nous avons examiné la structure de bandes dépendante en spin de Fe pour différents degrés de relaxation, pour identifier des modifications liées à la variation du paramètre de maille. Cependant, il est impossible de mettre en évidence des changements significatifs pouvant expliquer l'émergence de la structure formée par ϵ . On rappelle que l'angle de précession est la différence de phase des spins "up" et "down" après interaction avec le matériau ferromagnétique. Il n'est donc pas surprenant que la structure de bandes ne nous fournisse pas d'indication quant à cette précession de spin géante, car les phases proviennent du processus de réflexion qui n'est pas pris en compte dans les propriétés électroniques de Fe.

3.5 Conclusion

Le mouvement du spin dans les films de Fe/Ag(001) a été étudié par expériences de réflexion d'électrons polarisés. Des études précédentes ont mis en évidence des oscillations des angles du mouvement du spin en fonction de l'épaisseur de Fe. On distingue deux périodes d'oscillation. La première, dont la période est d'une monocouche, est attribuée à la variation périodique du paramètre de maille en surface. La seconde est liée à un phénomène de confinement électronique. Le résultat prédominant de notre étude est l'obtention d'une précession de 180° , soit la valeur maximale qu'il est possible de détecter en géométrie de réflexion. Cette précession de spin géante a été attribuée à la relaxation du paramètre de maille de Fe durant la croissance. Cette hypothèse a été confirmée par des calculs *ab initio*. Il est intéressant de noter que ce phénomène est localisé dans une gamme d'énergie restreinte (entre 6 et 9 eV). Des études subséquentes pour tenter de contrôler l'apparition de cette structure et sa position énergétique, par

choix du substrat et de son orientation ou par réalisation d'alliages seraient d'un grand intérêt scientifique.

Chapitre 4

Mouvement du spin dans le système MgO/Fe(001)

Récemment, le système MgO/Fe(001) a bénéficié d'un intérêt grandissant de la communauté scientifique pour deux raisons. Premièrement, de très grandes valeurs de magnéto-résistance tunnel (MRT) ont été prédites et observées pour les jonctions tunnel Fe/MgO/Fe(001) épitaxiées [27, 28]. Deuxièmement, le renversement d'aimantation par couple de transfert de spin, un des concepts les plus intéressants du magnétisme contemporain, est étudié dans les jonctions tunnel à base de MgO [29, 30]. Dans les deux cas, l'interface MgO/Fe et en particulier ses propriétés dépendantes en spin sont d'une grande importance car elle déterminent la polarisation du transport électronique et le moment angulaire de spin transféré. Bien que beaucoup d'études se soient intéressées à la structure interfaciale de MgO/Fe [31, 32], et à son influence sur la magnéto-résistance tunnel et au couple de transfert de spin [33, 34], peu d'investigations se sont concentrées sur les propriétés de réflexion d'électrons dépendantes en spin. C'est pourquoi nous avons mesuré le mouvement du spin de l'électron dans le système MgO/Fe(001).

4.1 Echantillon

Nos échantillons consistent en des films minces d'oxyde de magnésium. Le substrat est un monocristal d'Ag(001) sur lequel a été préalablement déposé une couche de 5 nm (sauf mention contraire) de Fe(001).

4.1.1 Substrat

La croissance de Fe(001) est étudiée en détails dans le chapitre 3. Nous ne présenterons ici que l'étude du mode de croissance de MgO/Fe(001). Rappelons juste que le dépôt de fer est effectué à température ambiante à partir d'une tige de fer chauffée par bombardement électronique, sous ultra-vide. Le cristal d'Ag(001) a été nettoyé par plusieurs cycles de bombardement ionique suivis par un recuit à 800 K.

4.1.2 MgO

Structure cristallographique

L'oxyde de magnésium (MgO) cristallise dans une structure cubique de type NaCl (figure 4.1), c'est à dire deux structures cubiques à faces centrées décalées de $(1/2, 0, 0)$, avec un paramètre de maille $a_{MgO} = 0,421 \text{ nm}$. C'est un isolant à gap direct avec le maximum de sa bande de valence et le minimum de sa bande de conduction situés au centre de la zone de Brillouin appelé point Γ .

Epitaxie de MgO(001) sur Fe(001)

L'épitaxie du MgO(001) sur le Fe(001) s'effectue selon la relation suivante : Fe(001)[110] || MgO(001)[100] (figure 4.2). Elle se fait donc via une rotation de 45° de la maille de MgO(001) dont l'axe [100] se superpose à l'axe [110] du Fe(001) entraînant un désaccord paramétrique entre mailles $\Delta a/a$ de l'ordre de 3,7 % avec $\Delta a/a = (a_{MgO} - a_{Fe}\sqrt{2})/a_{Fe}\sqrt{2}$. Par ailleurs, les études de minimisations d'énergie ainsi que les résul-

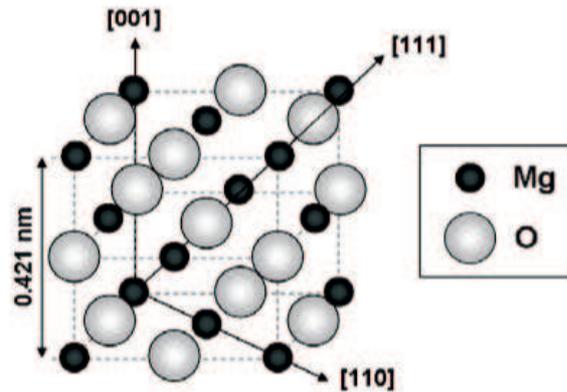


FIGURE 4.1 – Structure cristallographique de MgO. Elle est de type NaCl avec un paramètre de maille $a_{MgO} = 0,421 \text{ nm}$.

tats expérimentaux [35, 36] montrent que les atomes d'O de la maille de MgO se placent au-dessus des atomes de la maille de Fe. La distance Fe-O est évaluée entre 0,2 nm et 0,23 nm.

Le faible désaccord paramétrique entre les mailles de Fe et de MgO permet d'obtenir une très bonne épitaxie des couches dans la direction de croissance (001). Cela en fait un système idéal pour la réalisation de jonctions monocristallines Fe/MgO/Fe(001) où la symétrie est conservée à travers l'empilement [27].

4.1.3 Étude du mode de croissance

D'après [36], le MgO(001) croît de façon pseudomorphe sur le Fe(001) jusqu'à 6 monocouches (MC) pour ensuite relaxer par l'intermédiaire de la formation de dislocations à l'interface Fe/MgO(001). Nous avons procédé à notre propre étude du mode de croissance de MgO/Fe(001).

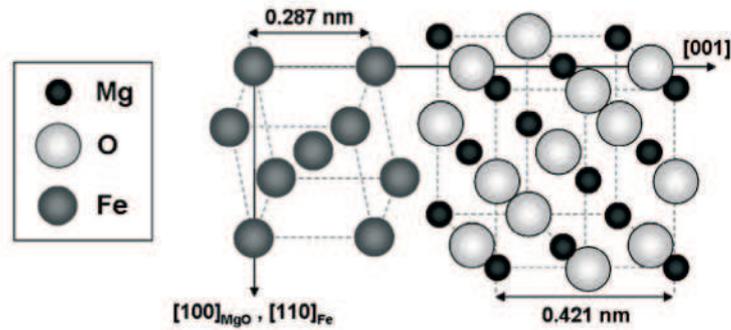


FIGURE 4.2 – Epitaxie de MgO(001) sur le Fe(001). La maille de MgO tourne de 45° pour que son axe [100] se superpose à l'axe [110] du Fe(001). Le désaccord paramétrique est de 3,7 %.

Dépôt de MgO

Expérimentalement, l'oxyde de magnésium est déposé à température ambiante à partir de cristaux placés dans un creuset en molybdène chauffé par bombardement électronique. La vitesse de dépôt est de l'ordre de 0,1 MC/min. Durant le dépôt, la pression est inférieure à 10^{-9} mbar. Les vitesses de dépôt ont été mesurées à l'aide d'une microbalance à quartz. D'après [37], les films de MgO obtenus à partir d'un matériau stoechiométrique évaporé sous ultra-vide peuvent présenter une faible déficience en oxygène. L'effet de la stoechiométrie de MgO sur nos expériences de réflexion d'électrons polarisés en spin par une surface ferromagnétique sera par ailleurs discuté plus loin.

Analyse par spectroscopie Auger

La figure 4.3 montre les résultats de l'analyse par spectroscopie Auger de nos échantillons. En a) et b) sont montrés les spectres acquis sur deux gammes d'énergie, respectivement entre 20 eV et 70 eV et entre 400 eV et 800 eV, pour un film de 5 Å de MgO. Des pics correspondant aux éléments Fe, Mg, et O sont identifiés. A basse énergie on note le pic de Fe à 47 eV et le pic de Mg à 35 eV. Le magnésium massif présente

normalement un pic à 45 eV, mais l'environnement d'oxygène dans MgO provoque un déplacement chimique à 35 eV [38]. Il est donc impossible de mettre en évidence une éventuelle déficience en oxygène, car aucun pic de Mg massif n'est détecté. A plus haute énergie, en b), le spectre fait apparaître un pic d'oxygène à 510 eV et les trois pics caractéristiques du fer à 596 eV, 651 eV et 703 eV. Ces trois derniers pics sont fortement atténués par rapport à l'analyse effectuée avant dépôt, mais sont encore visible du fait du libre parcours moyen des électrons à cette énergie [39]. On note que l'intensité du pic d'O est plus grande que celle des pics de Fe. Le facteur de sensibilité étant relativement grand pour l'oxygène, ceci n'est pas surprenant, mais on peut tout de même conclure qu'il y a un très grand nombre d'atomes d'oxygène en surface.

Considérons maintenant la figure c). Elle correspond à la variation de l'intensité mesurée du pic Auger de Fe à 47 eV en fonction de l'épaisseur de MgO (points noirs). On rappelle que la variation du signal dans la matière suit une loi de type Beer-Lambert, telle que $I(d) \approx I_0 e^{-\frac{d}{l \cos 34^\circ}}$, avec I_0 l'intensité d'une transition Auger du substrat non recouvert, d l'épaisseur du film déposé et l la longueur d'atténuation des électrons dans le film (voir chapitre précédent).

L'ajustement correspondant à la loi exponentielle de l'équation précédente, donne une valeur de 5,5 Å pour la longueur d'atténuation. Comme cette valeur est en accord avec la valeur du libre parcours moyen des électrons à cette énergie, on est amené à dire que la croissance de MgO sur Fe(001) est plutôt de type Franck-Van der Merwe, c'est à dire couche par couche. En effet, une trop forte déviation de la croissance de type couche par couche mènerait à une longueur d'atténuation beaucoup plus grande comparée au libre parcours moyen.

Oscillations RHEED

Nous avons utilisé d'autres techniques pour caractériser la croissance de MgO, notamment le RHEED (Reflection High Energy Electron Diffraction). Cette technique est très souvent utilisée lors de la croissance par épitaxie par jets moléculaires, car elle

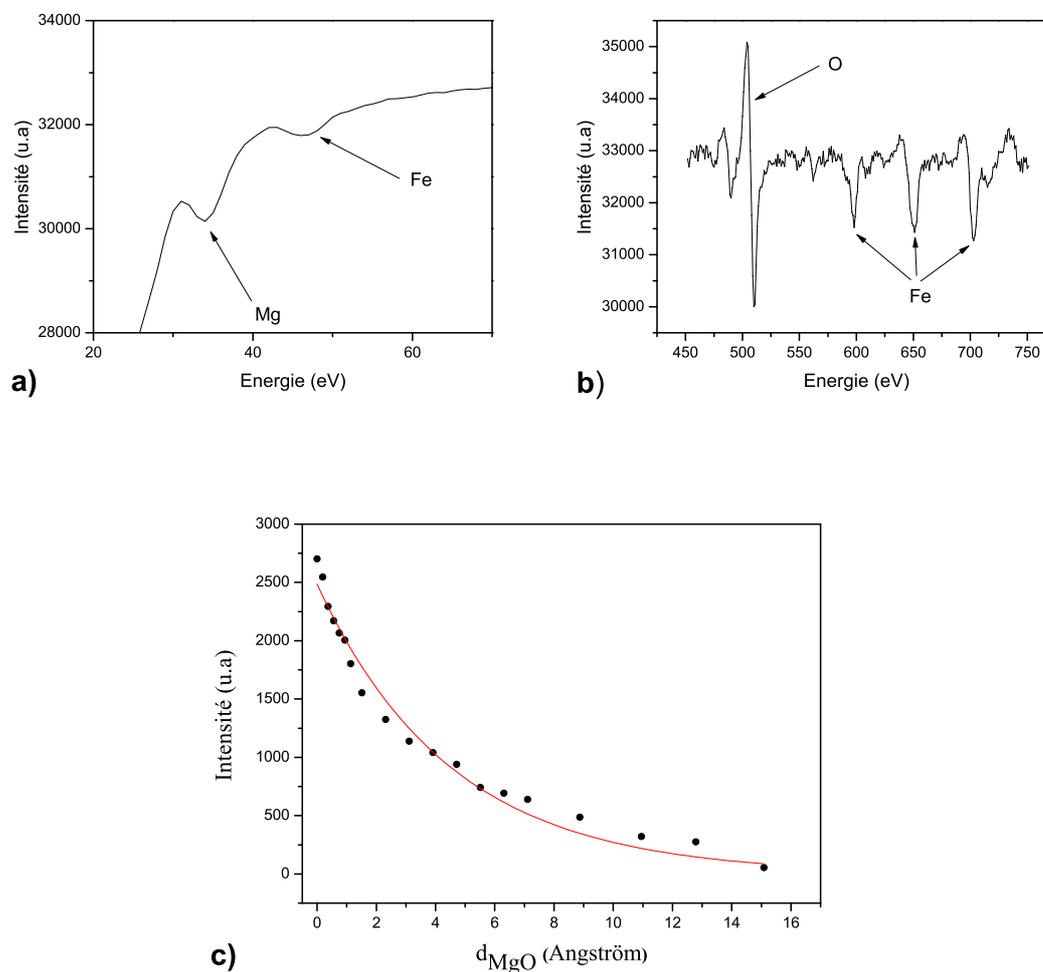


FIGURE 4.3 – Etude Auger de la croissance de MgO/Fe(001). L'épaisseur du film de Fe est de 5 nm. a) Spectre Auger acquis sur une gamme d'énergie de 20 eV à 70 eV. On note la présence de deux pics correspondant à Mg et Fe. b) Spectre Auger acquis sur une gamme d'énergie de 400 eV à 800 eV. On note la présence de quatre pics caractéristiques de O et Fe. c) Ajustement de la décroissance exponentielle de l'intensité du pic de Fe à 47 eV en fonction de l'épaisseur de MgO déposée. La longueur d'atténuation trouvée est de 5,5 Å.

permet de caractériser les films en cours de dépôt. Comme le LEED, dont le principe a été décrit au chapitre 2, il s'agit d'une technique de diffraction d'électrons. Seulement, l'énergie des électrons est bien supérieure (entre 10 et 30 keV) et l'angle d'incidence est de quelques degrés (incidence rasante). En conséquence, le diagramme de diffraction ne présente pas des tâches mais des tiges, dont l'intensité fluctue de manière périodique lors du dépôt du fait de la variation de la couverture du film.

La figure 4.4 montre le comportement oscillatoire de l'intensité spéculaire enregistrée lors d'une expérience de diffraction d'électrons de haute énergie en réflexion en fonction de l'épaisseur de MgO durant le dépôt. Chaque pic représente la formation d'une nouvelle monocouche. En effet, le degré d'ordre est maximum pour une couche complète, et l'intensité des tiges de diffraction présente un extremum car le nombre maximal de centre de diffraction contribuent au faisceau diffracté. Les oscillations proviennent de l'alternance entre couches complètes et couches incomplètes. L'intensité globale du signal diminue, car le faisceau d'électrons est focalisé sur la surface du substrat et devient défocalisé lorsque le nombre de couches en surface augmente. Compte tenu du nombre d'oscillations, nous pouvons conclure sur la base de cette expérience que la croissance de MgO/Fe(001) est de type couche par couche jusqu'à une épaisseur d'au moins 7 MC (équivalente à 15 Å).

4.2 Résultats

Dans cette section nous présentons les résultats de l'étude du mouvement du spin en fonction de l'épaisseur du film de Fe et de l'énergie des électrons primaires.

4.2.1 Intensité réfléchie

La figure 4.5 représente la réflectivité intégrée en spin en fonction de l'épaisseur de MgO pour différentes énergies ($E - E_F$) des électrons incidents. On remarque que quelle que soit cette énergie, deux maximums d'intensité sont visibles, respectivement à 1

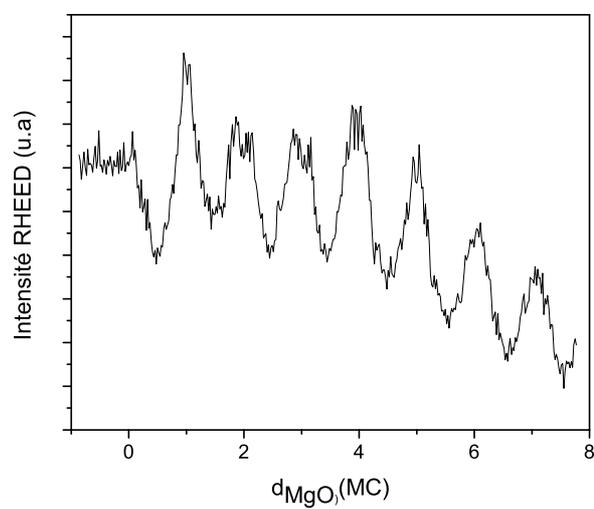


FIGURE 4.4 – Intensité spéculaire des électrons mesurée dans le cadre d’une expérience RHEED en fonction de l’épaisseur de MgO déposée. Les oscillations visibles prouvent que la croissance de MgO se fait couche par couche au moins jusqu’à une épaisseur de 7 MC.

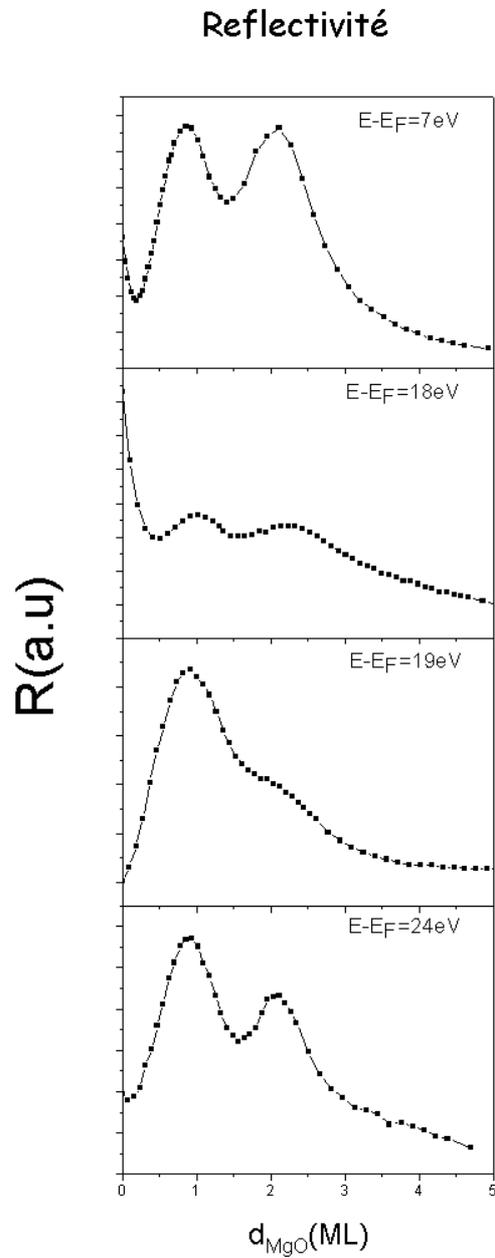


FIGURE 4.5 – Intensité des électrons réfléchis en fonction de l'épaisseur de MgO , pour différentes énergies primaires des électrons incidents. On note, pour toutes les énergies, la présence de deux pics centrés respectivement à 1 MC et 2 MC, traduisant la variation de la morphologie du film de MgO durant la croissance.

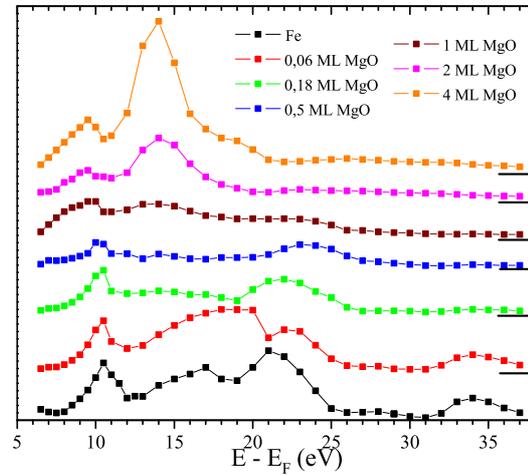


FIGURE 4.6 – Réflectivité intégrée en spin R en fonction de l'énergie des électrons primaires pour différentes épaisseurs de MgO. On observe à 14 eV l'apparition d'un pic à partir d'une épaisseur de MgO de 1 MC.

MC et 2 MC. Ce comportement est associé à la variation périodique de la morphologie du film oscillant entre couche complète et couche incomplète. On remarque également qu'à 7 eV, 19 eV et 24 eV, une structure large semble se superposer aux oscillations de période une monocouche. Son centre de gravité apparaît toujours à la même énergie.

Si l'on regarde la réflectivité électronique R en fonction de l'énergie des électrons incidents pour plusieurs épaisseurs de MgO (figure 4.6), on voit que pour de grandes épaisseurs R est fortement exaltée dans une gamme d'énergie entre 12 et 16 eV. Ceci indique la présence d'un gap dans la structure de bande de MgO à ces énergies. Le fait que l'on puisse identifier ce maximum de réflectivité à la même énergie pour une épaisseur de 1 MC suggère que la structure de bande de MgO dans cette gamme d'énergie approche déjà sa forme volumique pour des épaisseurs de l'ordre de la monocouche.

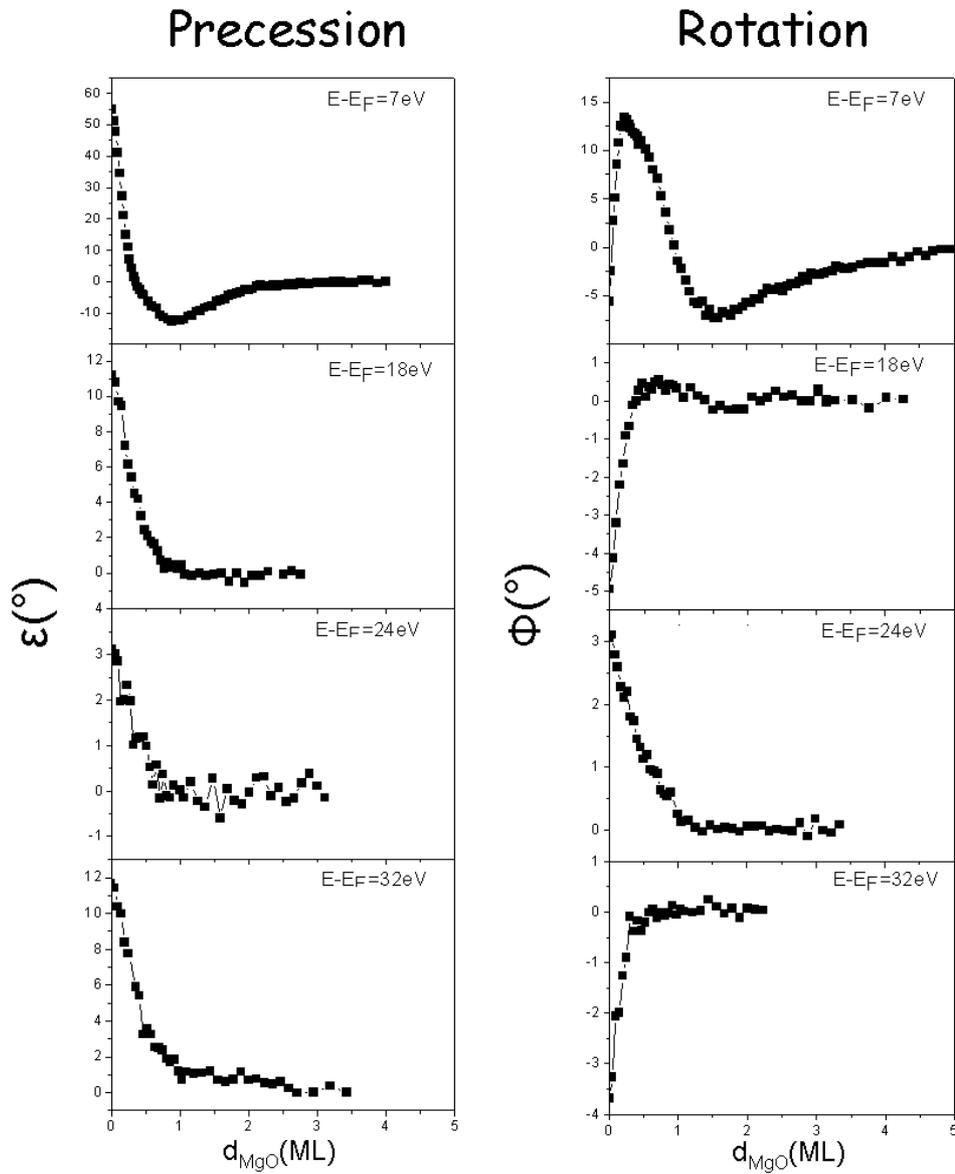


FIGURE 4.7 – Mesure de l’angle de précession ϵ (gauche) et de rotation ϕ (droite) en fonction de l’épaisseur de MgO déposé, pour différentes énergies $E - E_F$ des électrons primaires. On remarque la grande sensibilité des angles ϵ et ϕ aux faibles épaisseurs de MgO, quelle que soit l’énergie considérée.

4.2.2 Précession et rotation

Voyons maintenant l'effet du dépôt de MgO sur le mouvement du spin de l'électron. La figure 4.7 montre les mesures des angles du mouvement du spin en fonction de l'épaisseur de MgO à différentes énergies $E - E_F$ des électrons incidents. MgO étant un matériau non magnétique, on s'attend à une décroissance exponentielle du signal magnétique telle que la longueur d'atténuation soit : $l = \frac{\lambda}{2} \cos \theta$ avec λ le libre parcours moyen des électrons dans la matière (à cette énergie et pour MgO, 2-3 MC), et θ l'angle d'incidence du faisceau d'électrons (ici 45°). Toutefois, le comportement est différent.

Concernant l'angle de précession ϵ , on observe, pour des épaisseurs de MgO inférieures à la monocouche, une variation très rapide à l'ensemble des énergies mesurées. Ainsi, à 18 eV, 24 eV et 32 eV, il n'y a plus de précession du vecteur polarisation pour un dépôt de 1 MC de MgO. A 7 eV, on observe en plus une structure à 0,9 MC. La variation de l'angle de rotation ϕ est similaire à ϵ . La mesure pour une énergie des électrons incidents de 7 eV est singulière, car encore une fois on observe une structure, à 1,5 MC, avec préalablement un changement de signe de ϕ . A 18 eV, le comportement de l'angle de rotation semble suivre la même tendance, mais atténuée.

Attardons nous sur la mesure à basse énergie (7 eV). La figure 4.8 représente les angles du mouvement du spin ϵ et ϕ en fonction de l'épaisseur de MgO déposée à cette énergie en a), avec la représentation de ce mouvement dans l'espace réel en b). On voit que 0,15 MC de MgO sont suffisantes pour réduire ϵ de moitié et changer le signe de ϕ . Egalement, ϕ tend vers une valeur nulle moins rapidement que ϵ .

La question se pose quant à l'existence d'interférence quantiques, comme cela a déjà été montré par Wu et al. [40]. Leur expérience est dédiée à la mise en évidence d'oscillations de l'asymétrie de spin lors de la réflexion d'électrons en fonction de l'épaisseur de MgO déposée et en fonction de l'énergie des électrons incidents. Notons que leurs mesures ont été effectuées à l'aide de la technique SPLEED (Spin Polarized Low Energy Electron Diffraction), qui ne permet pas d'obtenir d'information sur l'angle de précession ϵ . L. Joly et al. ont également montré l'influence des effets de puits

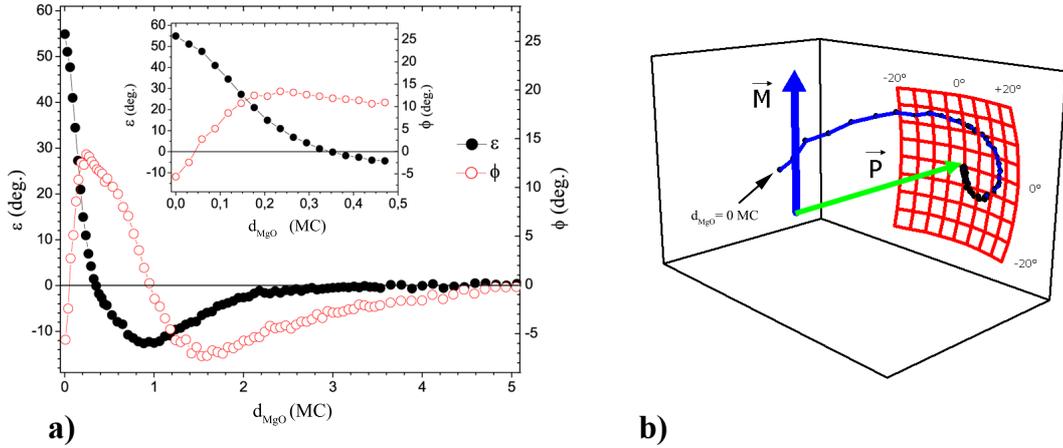


FIGURE 4.8 – a) Mesure de l’angle de précession ϵ (points noirs) et de rotation ϕ (points rouges) pour une énergie des électrons incidents $E - E_F = 7eV$ en fonction de l’épaisseur de MgO déposé. Un dépôt de 0,15 MC est suffisant pour induire une modification drastique des angles du mouvement du spin. b) Représentation dans l’espace réel du mouvement du vecteur polarisation en fonction de l’épaisseur de MgO déposée. L’épaisseur du film de Fe est de 40 MC.

quantiques sur le mouvement du spin pour d’autres systèmes [41, 42]. Il y a apparition d’interférences constructives lorsque l’épaisseur du film satisfait une certaine condition, donnant lieu à des oscillations des angles ϵ et ϕ dont la période est dépendante de l’énergie des électrons incidents, les deux quantités étant déphasées de 90° .

Or, pour des épaisseurs supérieures à 0,5 MC, si l’on observe les structures à 0,9 MC pour ϵ et 1,5 MC pour ϕ , on voit que ϕ a son plus gros changement lorsque ϵ est à son minimum et vice versa. Nous attribuons donc ces structures à l’apparition d’interférences quantiques dans le film de MgO. Pour des épaisseurs supérieures, les valeurs de ϵ et ϕ tendent vers zéro, en accord avec la valeur du libre parcours moyen des électrons dans MgO à cette énergie (2-3 MC). Dans l’espace réel, le vecteur polarisation effectue un mouvement en spirale pour tendre vers sa position initiale (configuration perpendiculaire de l’aimantation et du vecteur polarisation) avec le dépôt de MgO

(figure 4.8 b)).

Nous avons voulu déterminer si cet effet est général à toutes les énergies. Nous avons donc réalisé des mesures des angles ϵ (figure 4.9 a)) et ϕ (figure 4.9 b)) en fonction de l'énergie $E - E_F$ des électrons incidents pour différentes épaisseurs de MgO, en nous concentrant sur les régime inférieur à la monocouche. Pour les faibles épaisseurs, jusqu'à 0,18 MC, on trouve différents comportements suivant la gamme d'énergie. Alors qu'une forte atténuation de l'angle ϵ est observée de 7 eV à 9 eV et de 32 eV à 38 eV, une augmentation relativement importante est trouvée entre 13 eV et 17 eV. Pour toutes les autres énergies, l'influence du dépôt provoque des changements mineurs. Dans le cas de ϕ la situation est assez similaire, sauf entre 27 eV et 31 eV où ϕ est fortement réduit alors que ϵ ne change pas. Pour une épaisseur de 1 MC, les deux angles ont été atténués sur l'ensemble du spectre énergétique analysé et leur valeur absolue est inférieure à 4° quelle que soit l'énergie considérée.

Alors qu'il y a encore une interaction entre l'aimantation et la polarisation des électrons incidents pour une épaisseur de 2 MC (voir figure 4.10), pour des épaisseurs supérieures, les angles du mouvement du spin sont nuls pour toutes les énergies du fait de la longueur de pénétration des électrons incidents dans MgO limitée à 2-3 MC, ce qui ne leur permet plus d'atteindre la couche ferromagnétique.

En conclusion, nous avons montré une très forte sensibilité des angles de précession et de rotation à MgO, à certaines gammes d'énergie.

4.3 Discussion

Il s'agit de déterminer l'origine de la forte variation des angles du mouvement du spin pour des épaisseurs de MgO très faibles (inférieures à la monocouche).

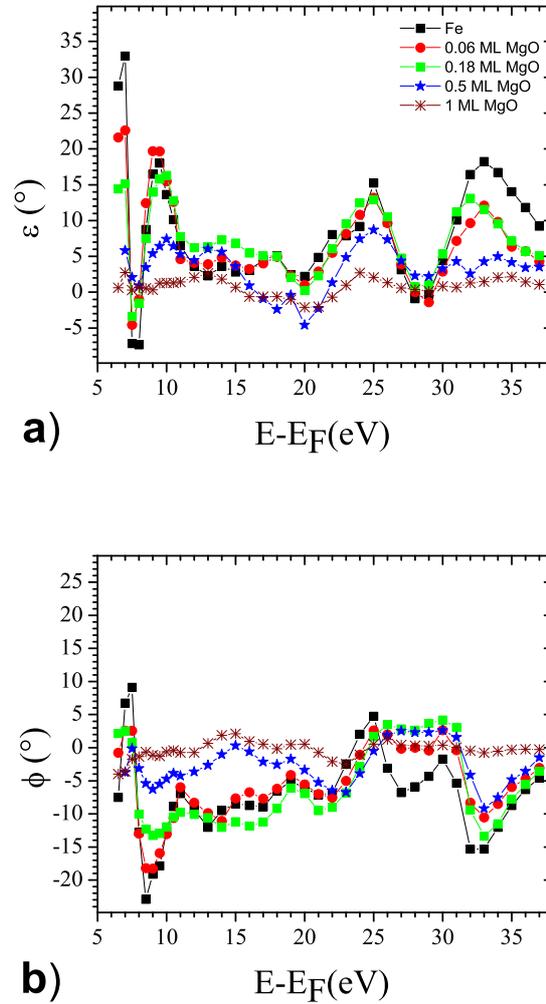


FIGURE 4.9 – Mesure de l’angle de précession ϵ (gauche) et de rotation ϕ (droite) en fonction de l’énergie primaire des électrons incidents $E - E_F$, sur une gamme allant de 6,5 eV à 37 eV, pour différentes épaisseurs de MgO jusqu’à 1 MC. Le film de fer est de 20 MC. On remarque une atténuation très rapide du signal sur l’ensemble du spectre.

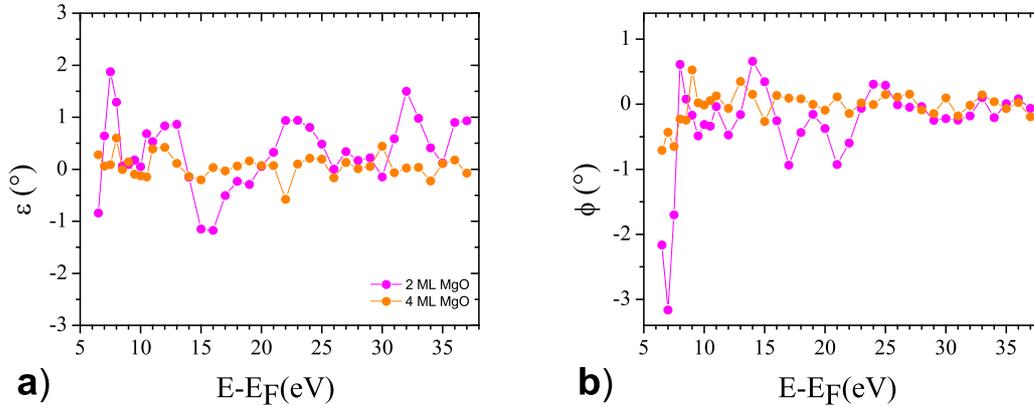


FIGURE 4.10 – Mesure de l'angle de précession ϵ (haut) et de rotation ϕ (bas) en fonction de l'énergie primaire des électrons incidents $E - E_F$, sur une gamme allant de 6,5 eV à 37 eV, pour des épaisseurs de MgO de 2 MC et 4 MC. A 4 MC les angles du mouvement du spin sont nuls, à 2 MC il y a encore du signal .

4.3.1 Modification des propriétés magnétiques de Fe(001) induite par MgO

Nous avons pensé à une modification de l'aimantation des couches de Fe en surface induite par le dépôt de MgO. De nombreuses études concernant des films minces ferromagnétiques de NiFe, CoFe, Fe... [43, 44] montrent l'existence de couches dont le moment magnétique est nul ou atténué par rapport au matériau volumique. Lorsque l'aimantation est nulle, on parle de couches dites "magnétiquement mortes". Elles se trouvent à l'interface et leur existence est généralement due à la formation d'un alliage ou à la présence d'adsorbats modifiant les propriétés électroniques et magnétiques.

Afin de vérifier si le dépôt de MgO favorise un changement de l'aimantation du substrat à l'interface nouvellement créée et aboutit à la création de couches magnétiquement mortes, nous avons besoin d'une technique d'analyse sensible à l'aimantation en surface. Nous avons procédé à une étude par effet Kerr magnéto-optique.

Effet Kerr magnéto-optique

Faraday fut le premier à observer la rotation du plan de polarisation d'une lumière polarisée linéairement lors de son passage dans un matériau transparent en présence d'un champ magnétique (effet Faraday, 1846). Kerr découvrit plus tard, en 1877, un effet similaire lorsque la lumière se réfléchit sur un matériau en présence d'un champ électrique. L'effet Kerr magnéto-optique désigne un changement d'état de la polarisation de la lumière lorsqu'elle est réfléchi sur la surface d'un matériau magnétique.

Une onde se propage dans un matériau aimanté avec une vitesse différente selon qu'elle est polarisée circulaire droite ou gauche. On définit une onde de polarisation linéaire comme la combinaison linéaire de deux ondes de polarisation circulaires droite et gauche. Après réflexion sur le matériau magnétique, le retard entre les deux composantes de polarisation de l'onde incidente est à l'origine de l'effet Kerr. Ainsi, on passe d'une polarisation initiale linéaire à une polarisation elliptique [45] (figure 4.11).

Il existe plusieurs configurations suivant la direction de l'aimantation par rapport à la surface réfléchissante et au plan d'incidence. Nos mesures ont été faites en configuration longitudinale : l'aimantation est dans le plan de l'échantillon, perpendiculairement au plan d'incidence. La direction de l'aimantation est dans le plan de l'échantillon. Le dispositif expérimental est composé d'un laser émettant dans le visible ($\lambda \approx 650 \text{ nm}$), d'un polariseur, de l'échantillon ferromagnétique entouré de bobines de Helmholtz permettant de délivrer un champ magnétique, d'un polariseur orienté à 45° par rapport au polariseur et d'un photo-diode. Ce dispositif nous permet d'enregistrer la variation de l'intensité lumineuse en fonction du champ magnétique appliqué à l'échantillon. Le résultat obtenu se présente sous la forme d'un cycle d'hystéresis, nous permettant de déterminer l'aimantation à saturation et le champ coercitif.

La figure 4.12 montre les résultats de l'étude par effet Kerr magnéto-optique en fonction de l'épaisseur de MgO déposée. L'épaisseur de la couche de Fe a été réduite par rapport aux échantillons utilisés pour les expériences de réflexion d'électrons polarisés en spin. Elle ne fait que 1 nm. La longueur de pénétration du faisceau laser rouge dans

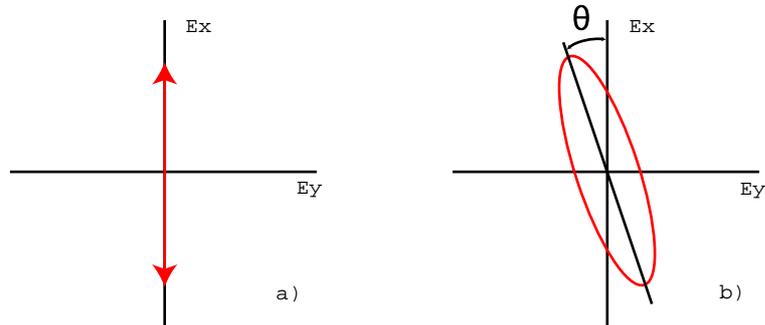


FIGURE 4.11 – Effet Kerr magnéto-optique. a) polarisation rectiligne de l'onde incidente. b) polarisation elliptique de l'onde réfléchie après interaction avec le matériau ferromagnétique.

les métaux étant d'environ 30 nm, on a de cette manière une plus grande sensibilité à la surface et il sera plus facile de mettre en évidence une modification de l'aimantation à l'interface MgO/Fe.

En comparant les cycles d'hystéresis obtenus juste après dépôt de 1 nm de Fe, en a), et après dépôt subséquent de 2 MC de MgO, en b), on n'observe aucune différence significative. Il n'y a pas de diminution sensible de l'aimantation à saturation ni d'augmentation du champ coercitif. La figure c), représentant l'aimantation à saturation M_S en fonction de l'épaisseur de MgO déposée, confirme l'observation précédente. Sur la gamme d'épaisseurs mesurées, on voit que M_S diminue légèrement, de manière apparemment linéaire. Cette décroissance correspond à l'atténuation due au libre parcours moyen de la lumière dans la couche de MgO. Il ne s'agit pas d'une ou plusieurs couches magnétiquement mortes, car on remarquerait une diminution beaucoup plus brutale du signal, en particulier pour des épaisseurs de MgO inférieures à la monocouche.

4.3.2 Mode de croissance de MgO/Fe(001)

Il a été montré que la variation des angles du mouvement du spin pour les faibles épaisseurs de MgO ne peut être attribuée à l'atténuation des électrons dans la couche

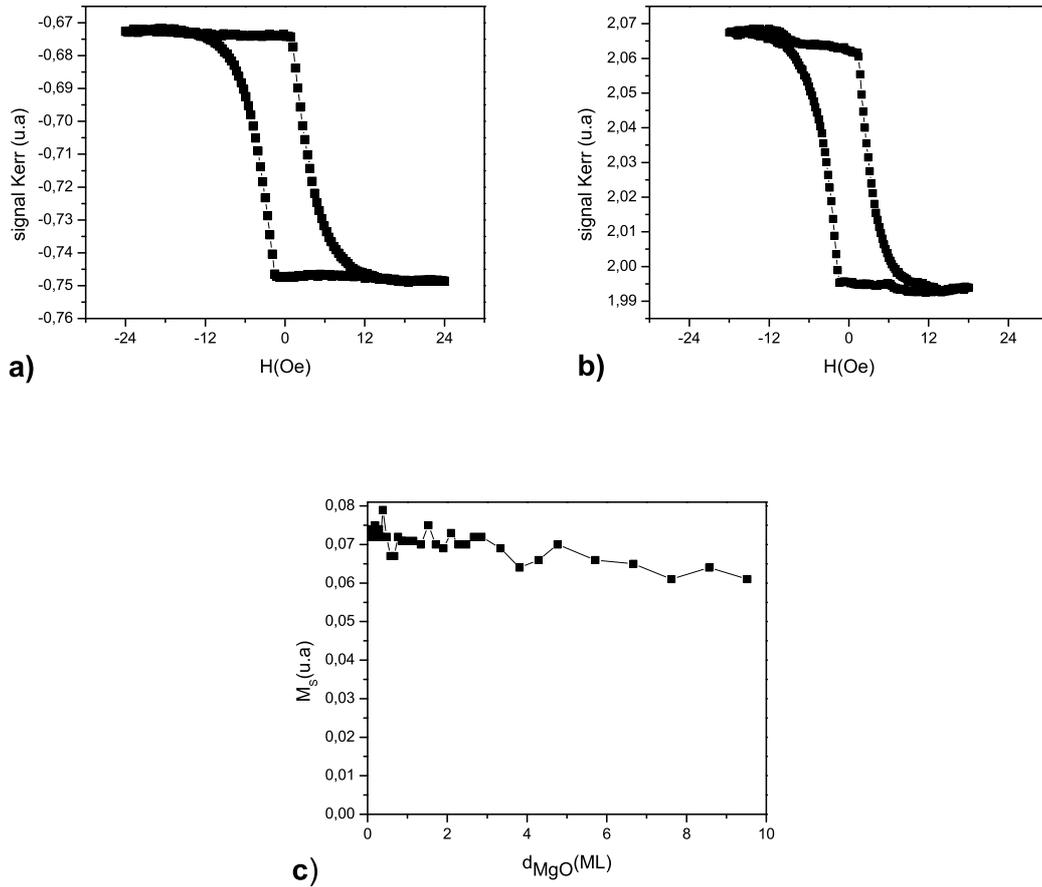


FIGURE 4.12 – Etude par effet Kerr magnéto-optique. a) Signal Kerr après dépôt d' 1 nm de Fe/Ag(001) b) Signal Kerr après dépôt de 2 MC de MgO sur 1 nm de Fe. Le cycle d'hysteresis est similaire à celui obtenu en a). c) Représentation de l'aimantation à saturation M_S en fonction de l'épaisseur de MgO déposée sur 1 nm de Fe. Ici la diminution de M_S n'est due qu'à l'atténuation de la lumière dans le matériau.

de MgO (figure 4.7), car cette décroissance est trop rapide. Mais que se passerait-il dans le cas d'une croissance de MgO/Fe(001) de type tri-dimensionnelle ? Les électrons réfléchis par les régions du film de Fe non couvertes ou couvertes par une plus faible épaisseur de MgO contribueraient plus au signal total, ainsi l'intensité des électrons et donc des angles ϵ et ϕ montreraient une décroissance exponentielle donc la longueur d'atténuation serait plus grande que dans le cas d'une croissance couche par couche. De plus, nous avons également procédé à une étude LEED. Conformément à d'autres études, les diagrammes de diffraction obtenus présentent des tâches nettes et non-diffuses correspondant au réseau cristallographique bcc de Fe(001) pour des épaisseurs de MgO inférieures à 6 MC. Il est bien connu que la rugosité de surface provoque un élargissement ou un dédoublement du faisceau d'électrons diffractés, et ainsi augmente l'intensité diffuse. Un tel phénomène apparaît pour des épaisseurs de MgO supérieures à 6 MC. Au delà de telles épaisseurs, il est même possible de mettre en évidence quatre spots additionnels [36] autour de chaque spot principal de MgO, liés à une relaxation du réseau et à des dislocations qui se forment. L'étude LEED ne permet pas de remettre en cause le mode de croissance de MgO/Fe(001). Aucune reconstruction de surface n'a pu être mise en évidence. La croissance couche par couche jusqu'à 6 MC est validée. Considérant les résultats de l'expérience de réflexion d'électrons polarisés en spin, l'hypothèse d'une croissance tridimensionnelle était de toute manière peu pertinente.

4.3.3 Composition de la couche de MgO

Il semble possible que Mg et O ne soient pas en proportions stoechiométriques dans la couche de MgO. Quel effet aurait l'excès ou le déficit d'un élément sur le mouvement du spin ?

Deficit d'oxygène dans la couche de MgO

Des expériences de spectrométrie photoélectronique établissent qu'un déficit d'oxygène dans des films de MgO sur Fe(001) affecte la structure électronique à l'interface

MgO/Fe [46]. Afin de mettre en évidence le rôle de la composition de la couche de MgO, nous avons réalisé des expériences de réflexion d'électrons polarisés en spin pour le système Mg/Fe(001). Mg a été déposé par épitaxie par jets moléculaires, dans les mêmes conditions expérimentales que MgO. Cependant, en comparant avec les résultats obtenus pour le système MgO/Fe(001), on n'observe aucune différence notable. Une analyse Auger des échantillons de Mg/Fe(001) montre une présence significative d'oxygène. Il semble que l'élément Mg, très réactif, tend à s'associer à l'oxygène ambiant pour former MgO. La présence d'un pic correspondant à Mg massif indique toutefois une proportion non stoechiométrique de Mg et O. Nous concluons donc qu'un déficit d'oxygène dans la couche de MgO n'est pas critique pour l'étude du mouvement du spin par réflexion d'électrons polarisés et n'altère pas les propriétés magnétiques à l'interface.

Effet de O sur Fe(001)

Après avoir tenté de caractériser l'effet de Mg, voyons maintenant l'effet de O. La figure 4.13 présente une mesure des angles du mouvement du spin en fonction de l'épaisseur d'oxygène déposée. Entre chaque point de mesure, l'échantillon était exposé à une pression d'oxygène de 10^{-7} mbar. Les données de Sakisaka et al. [47], ont été utilisées pour convertir l'exposition en épaisseur d'oxygène déposé. On voit que 0,1 MC d'oxygène est suffisant pour réduire de moitié ϵ et ϕ . Les résultats sont en tout point similaires à ceux obtenus pour MgO. On note que pour des épaisseurs d'oxygène aussi faibles, l'aimantation du film de Fe(001) n'est pas influencée [48]. De premier abord, cette expérience suggère naïvement que l'effet de MgO sur le mouvement du spin, à savoir cette atténuation brutale pour des épaisseurs inférieures à la monocouche, est due aux atomes d'oxygène. Dans un second temps, en s'intéressant à l'effet des atomes d'oxygène sur la couche de Fe(001), on constate que la liaison Fe-O provoque une relaxation hors-plan de la couche de Fe en surface [49].

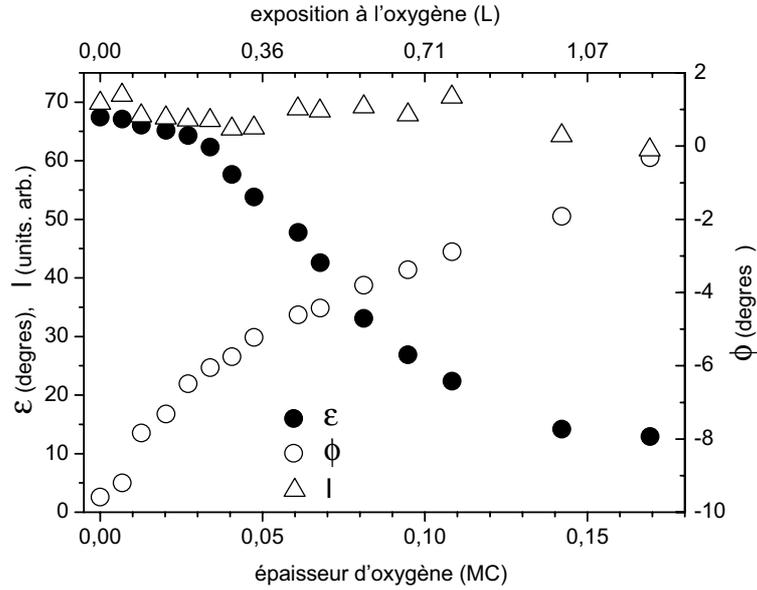


FIGURE 4.13 – Mesure de l’angle de précession ϵ et de rotation ϕ en fonction de l’épaisseur d’oxygène (échelle inférieure) et l’exposition en Langmuir (L; $1 \text{ L} \hat{=} 10^{-6} \text{ Torr} \cdot \text{s}$) (échelle supérieure). L’énergie des électrons primaires est $E - E_F = 7 \text{ eV}$. Le comportement est similaire à une mesure en fonction de l’épaisseur de MgO.

4.3.4 Relaxation hors-plan en surface de Fe(001) induite par MgO

L’origine de la forte sensibilité des angles du mouvement de spin à la couverture de MgO pourrait être une relaxation hors-plan de la couche de fer en surface induite par MgO. En l’absence de dépôt, il y a une compression hors-plan de la couche de fer en surface, de l’ordre de 1 %, mais une relaxation plus importante entraînerait une modification de la structure électronique du fer et donc des propriétés de réflexion dépendantes en spin. Dans un modèle simple de barrière de potentiel, cela correspondrait à un changement de la hauteur de barrière dépendante en spin.

recouvert par MgO, dont on a fait varier le paramètre de maille hors-plan de la couche de fer en surface.

On note que le moment magnétique de la surface de fer non-recouverte est de $2,98 \mu_B$. La relaxation a pour effet d'exalter le moment magnétique qui devient $3,13 \mu_B$. On remarque que le moment magnétique du fer volumique est de $2,2 \mu_B$. Ainsi, l'augmentation du moment magnétique en surface est due principalement à l'environnement des atomes de surface qui ont moins de voisins que dans le volume. En comparaison, la contribution de la relaxation est petite.

Nos investigations se sont concentrées sur la structure spectroscopique la plus explicite, dans une gamme d'énergie de 7 eV à 9 eV. Il n'est de toute manière pas possible de faire une comparaison avec les résultats expérimentaux pour des énergies supérieures, du fait de la méthode de calcul utilisée. En effet, la détermination de la structure énergétique à haute énergie avec la méthode LMTO (Linear Muffin-Tin Orbital) [52] n'est pas fiable. Nous avons utilisé cette méthode pour obtenir les potentiels auto-consistants de la couche de fer relaxée en surface. La précision du résultat a été comparée à celle obtenue en utilisant FLAPW (Full-Potential Linear Augmented Plane Wave). Les potentiels obtenus sont ensuite utilisés pour calculer le mouvement du spin en géométrie de réflexion par la méthode KKR (Korringa-Kohn-Rostocker) [53].

Resultats

Pour comparer les simulations avec les résultats expérimentaux nous devons convertir les valeurs de la relaxation hors-plan en épaisseur de MgO déposé. Nous avons utilisé les données de Meyerheim et al [50], qui donnent une correspondance entre les deux quantités. La figure 4.15 présente ainsi le degré de relaxation de la couche de fer à l'interface en fonction de l'épaisseur de MgO déposée. On remarque qu'un dépôt de 0,35 MC de MgO est suffisant pour induire une relaxation de 10 % du paramètre de maille hors-plan de la première couche de Fe. Egalement, la relaxation sature pour des épaisseurs supérieures à la monocouche, autour d'une valeur de 15 %.

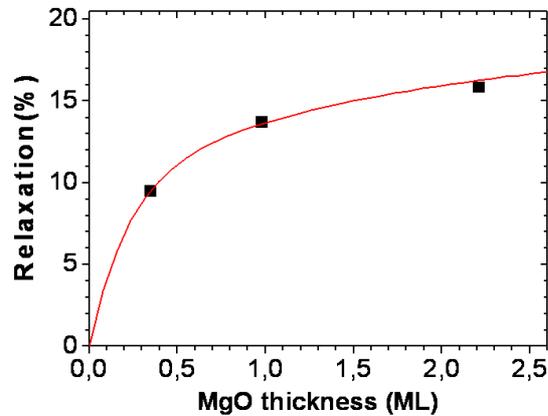


FIGURE 4.15 – Degré de relaxation de la couche de fer à l'interface en fonction de l'épaisseur de MgO. Les points noirs correspondent aux données expérimentales de Meyerheim et al. [50], la ligne pleine à un ajustement exponentiel de ces données. La relaxation est quasiment saturée pour des épaisseurs supérieures à 1 MC.

La figure 4.16 montre les angles du mouvement du spin calculés en fonction de l'épaisseur de MgO déposée. L'angle de précession subit une très forte variation et diminue pour des valeurs de MgO très faibles. Sa valeur devient nulle autour de 0,35 MC. En comparant avec les résultats expérimentaux (figure 4.8), on a un accord qualitatif. De même pour l'angle ϕ , la simulation montre la même tendance que l'expérience, avec une augmentation dès les premiers stades de la croissance de MgO suivie d'une diminution.

La figure 4.17 montre les angles du mouvement du spin simulés en fonction de l'énergie des électrons incidents pour plusieurs épaisseurs de MgO. On observe autour de 7 eV une structure "plus-moins" similaire aux résultats expérimentaux. L'angle epsilon passe ainsi brutalement d'une valeur positive, 41° , à une valeur négative, -25° . Avec l'augmentation de l'épaisseur de MgO, l'amplitude de cette structure diminue, ainsi pour 1 MC de MgO on passe de 3° à -9° . Toutes les simulations montrent un accord qualitatif avec l'expérience, ce qui nous amène à la conclusion que la variation

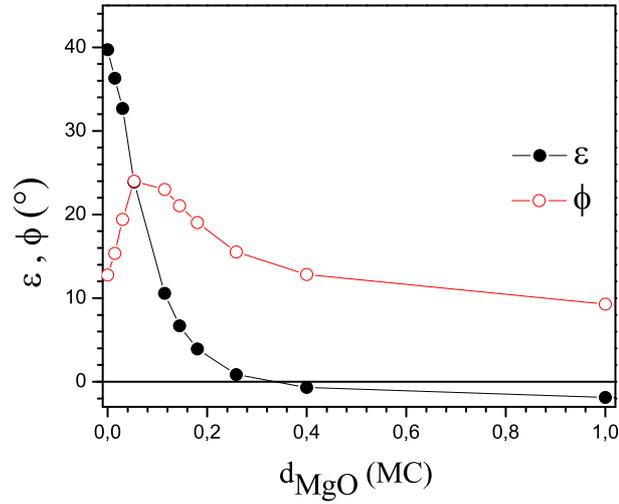


FIGURE 4.16 – Calcul des angles de précession ϵ et de rotation ϕ en fonction de l'épaisseur de MgO pour une énergie des électrons incidents $E - E_F = 7 \text{ eV}$. Par rapport aux résultats expérimentaux, on retrouve la même sensibilité des angles du mouvement du spin pour de faibles épaisseurs de MgO.

de la distance interplan de la couche de Fe en surface est responsable du comportement des angles du mouvement du spin en géométrie de réflexion.

On observe bien sûr quelques différences quantitatives. Ainsi, pour des épaisseurs de 2 MC et 4 MC (figure 4.18), on observe que les angles du mouvement du spin ne sont pas nuls, contrairement aux résultats expérimentaux. Ces différences peuvent être expliquées par la manière dont les calculs ont été réalisés. On rappelle que le procédé de calcul ne prend pas en compte la diffusion des électrons incidents dans la couche de MgO. L'effet de MgO n'est pris en compte qu'à travers la relaxation de la couche de Fe en surface. C'est pourquoi les effets de puits quantiques et du libre parcours moyen des électrons dans la matière ne sont pas visibles dans les simulations.

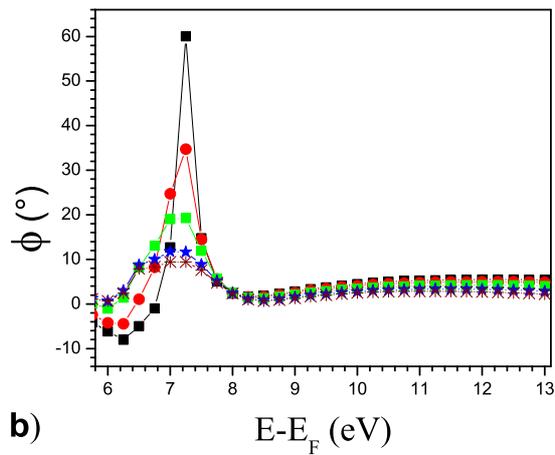
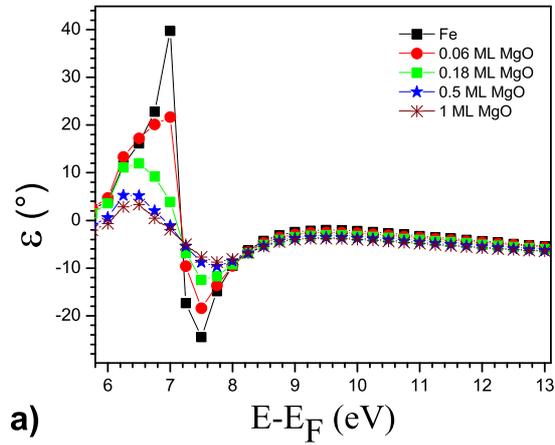


FIGURE 4.17 – Calcul des angles de précession ϵ et de rotation ϕ en fonction de l'énergie des électrons incidents $E - E_F$ pour des épaisseurs de MgO inférieures à 1 MC. L'étude est concentrée sur la structure entre 7 eV et 9 eV du fait de la méthode de calcul utilisée.

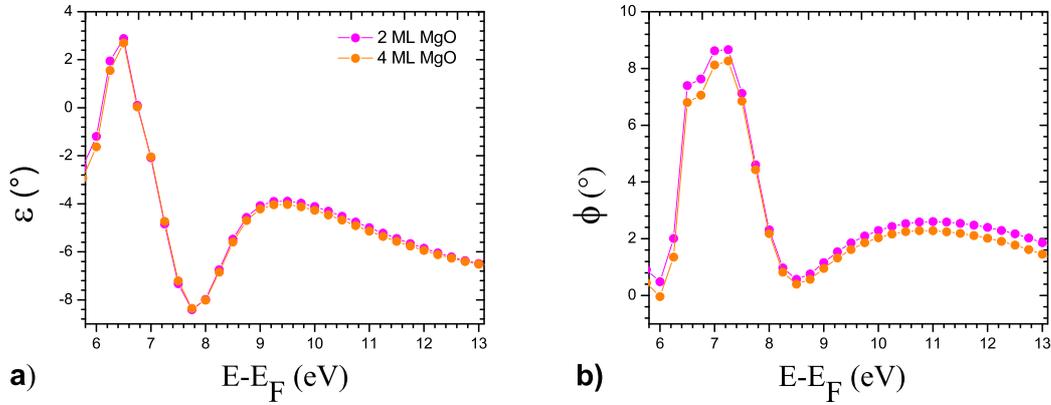


FIGURE 4.18 – Calcul des angles de précession ϵ et de rotation ϕ en fonction de l'énergie des électrons incidents $E - E_F$ pour des épaisseurs de MgO de 2 ML et 4 ML.

Discussion

Les simulations présentées précédemment supposent la formation d'une couche de Fe-O à l'interface MgO/Fe(001). Cependant, la réalité d'une telle assumption est sujette à controverse. Ainsi, dans le cas de jonctions tunnel magnétiques Fe/MgO/Fe, les valeurs de magnétorésistance tunnel (MRT) obtenues expérimentalement ne sont pas en accord avec les prédictions théoriques. Alors que pour les jonctions idéales considérées dans les modèles on s'attend à une MRT de plus de 1000 % [28], à température ambiante la valeur optimale mesurée est de 180 % [27]. En conséquence, des efforts importants sont fournis pour comprendre l'origine de cette limite. Les défauts structuraux sont suspectés de réduire l'efficacité du filtrage mais on attribue ce phénomène plus particulièrement à la présence d'une couche de FeO_x à l'interface [54]. La formation de cette couche a été démontrée expérimentalement [50, 55], mais de nombreux groupes montrent son absence [56, 57, 32, 58].

La structure de bandes, plus particulièrement la densité d'états des spins up et down a été inspectée en fonction de la relaxation de la couche de Fe. Aucune modification significative pouvant être corrélée aux effets sur le mouvement du spin ne peut être mise

en évidence entre 7 et 9 eV. Toutefois, ce n'est pas surprenant compte tenu du principe de cette expérience, à savoir la réflexion d'électrons polarisés en spin. En effet, l'angle de précession est la différence des phases des spins up et down. Or, ces phases sont générées par la réflexion des électrons incidents et n'apparaissent pas dans la structure de bandes, il n'est donc pas étonnant de n'observer aucun changement.

4.4 Conclusion

En conclusion, le mouvement du spin dans les films de MgO/Fe(001) a été étudié par expériences de réflexion d'électrons polarisés. Une très forte variation des angles de précession ϵ et de rotation ϕ a été montrée pour des épaisseurs très faibles de MgO. Ainsi, à 7 eV, un dépôt de 0,15 MC de MgO est suffisant pour réduire de moitié la valeur de l'angle ϵ . Ce phénomène a été observé sur différentes plages d'énergie. Alors que des expériences par effet Kerr magnéto-optique nous permettent d'exclure une modification de l'aimantation induite par MgO, des calculs *ab initio* suggèrent que la relaxation hors-plan de la couche de Fe en surface est à l'origine de la grande sensibilité des angles du mouvement du spin.

Conclusion

Cette thèse a été consacrée à l'étude du mouvement de spin dans des systèmes ferromagnétiques en utilisant la spectroscopie électronique résolue en spin en géométrie de réflexion. Le mouvement du spin se décompose en deux sous-mouvements correspondant à une précession autour de l'aimantation due à une phase dépendante du spin, et à une rotation vers l'aimantation due à une réflexion dépendante du spin. Deux systèmes ont été étudiés.

La première partie de cette thèse consiste en l'étude de films de Fe déposés sur Ag(001). Des travaux précédents ont mis en évidence des oscillations des angles du mouvement du spin. Deux périodes d'oscillations ont été identifiées, correspondant à un phénomène de puits quantiques et à la variation périodique du paramètre de maille en surface. Nous nous sommes concentrés sur la découverte et l'étude d'une précession de spin géante. Autour de 7,4 eV, l'angle de précession présente une structure "plus/moins". L'amplitude de cette structure peut-être modulée à l'aide d'un recuit et du temps d'attente, jusqu'à atteindre 180°, soit la valeur maximale qu'il est possible de mesurer en géométrie de réflexion. On s'oriente pour expliquer ce phénomène vers la relaxation de la couche de Fe durant la croissance. Nos calculs *ab initio* confirment cette hypothèse. Nous espérons que nos résultats motiveront d'autres travaux expérimentaux et théoriques pour tenter de contrôler l'apparition et la position en énergie de cette structure.

La deuxième partie de ce travail correspond à l'étude du système MgO/Fe(001). Une très forte sensibilité des angles du mouvement du spin ε et ϕ à l'épaisseur de MgO

est observée pour certaines énergies. Ainsi, à 7 eV, 0,15 MC de MgO sont suffisantes pour réduire ε de moitié. Certaines structures ont été attribuées à un confinement électronique. Au delà de 2-3 MC, le mouvement du spin est nul conformément à la valeur du libre parcours moyen des électrons dans MgO. Les expériences par effet Kerr magnéto-optique n'ayant montré aucune modification significative de l'aimantation en surface de la couche de Fe durant le dépôt de MgO, on exclut ainsi qu'un effet de ce type soit à l'origine de la forte variation des angles du mouvement du spin pour de faibles épaisseurs de MgO. Certaines études expérimentales montrent que le dépôt de MgO induit une relaxation hors-plan de la couche de Fe en surface. La relaxation serait de 10% pour une épaisseur de 35 MC et pourrait induire une modification importante de la structure de bandes. Les calculs *ab initio* réalisés sur la base de cette hypothèse présentent un accord qualitatif avec les résultats expérimentaux et confirment l'importance de l'interface du système MgO/Fe(001) pour les propriétés de réflexion dépendantes en spin.

Cette thèse illustre le rôle de la relaxation sur les propriétés de réflexion en spin. En raison de la conservation du moment angulaire, des informations précieuses sur l'extrême sensibilité du transfert de spin à la relaxation du réseau de Fe ont été recueillies.

Bibliographie

- [1] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach et W. Zinn, *Phys. Rev. B* **39**, 4828 (1989).
- [2] M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich et J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988).
- [3] J.C. Slonczewski, *J. Magn. Magn. Mater.* **159**, L1 (1996).
- [4] L. Berger, *Phys. Rev. B* **54**, 9353 (1996).
- [5] E.B. Myers, D.C. Ralph, J.A. Katine, R.N. Louie et R.A. Buhrman, *Science* **286**, 867 (1999).
- [6] Y. Huai, F. Albert, P. Nguyen, M. Pakala et T. Valet, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 3118 (2004).
- [7] S. Datta et D. Das, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 665 (1990).
- [8] Y. Kato, R.C. Myers, A.C. Gossard et D.D. Awschalom, *Nature* **427**, 50 (2004).
- [9] J.M. Kikkawa et D.D. Awschalom, *Nature* **391**, 139 (1999).
- [10] W. Weber, S. Riesen et H.C. Siegmann, *Science* **291**, 1015 (2001).
- [11] W. Weber, S. Riesen, C.H. Back, A. Shorikov, V. Anisimov et H.C. Siegmann, *Phys. Rev. B* **66**, 100405 (2002).
- [12] J.L. Lopes, *Fondements de la physique atomique*, Hermann, 1967.
- [13] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu et F. Laloë, *Mécanique quantique, Tome I et II*, Hermann, 1996.

- [14] S.P. Riesen, *Spinpräzession heisser Elektronen in Ferromagneten*, Diss. ETH Nr. 14147, 2001.
- [15] J.L. Dejjardin, *Dynamic Kerr Effect*, World scientific Publishing, 1994.
- [16] H. J. Drouhin et N. Rougemaille, *J. Appl. Phys.* **91**, 9948 (2002).
- [17] D.T. Pierce et F. Meier, Photoemission of spin-polarized electrons from gaas, *Phys. Rev. B* **13**(12), 5484 (1976).
- [18] G. Sauerbrey, *Zeitschrift für Physik* **155**, 206–222 (1959).
- [19] C.J. Davisson, *Franklin Institute Journal* **205**, 597 (1928).
- [20] J.H. Smith, *Introduction à la relativité*, Masson, 1965.
- [21] J. P. Kessler, *Polarized electrons*, Springer, 1985.
- [22] H. A. Tolhoek, *Rev. Mod. Phys.* **28**, 277 (1956).
- [23] N. Sherman, *Phys. Rev.* **103**, 1601 (1956).
- [24] G. Holzwarth et H.J. Meister, *Nucl.* **59**, 56 (1956).
- [25] R. Feder, *Polarized Electrons in surface physics*, World scientific, 1985.
- [26] M. Getzlaff, J. Bansmann, C. Westphal et G. Schönhense, *Rev. Sci. Instrum.* **69**, 3913 (1998).
- [27] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki et K. Ando, *Nature Mater.* **3**, 868 (2004).
- [28] W.H. Butler, X.G. Zhang, T.C. Schulthess et J.L. MacLaren, *Phys. Rev. B* **63**, 054416 (2001).
- [29] H. Kubota, A. Fukushima, K. Yakushiji, T. Nagahama, S. Yuasa, K. Ando, H. Maehara, Y. Nagamine, K. Tsunekawa, D.D. Djayaprawira, N. Watanabe et Y. Suzuki, *Nature Physics* **4**, 37 (2008).
- [30] C. Heiliger et M.D. Stiles, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 186805 (2008).
- [31] M. Müller, F. Matthes et C.M. Schneider, *Europhys. Lett.* **80**, 17007 (2007).

- [32] L. Plucinski, Y. Zhao, B. Sinkovic et E. Vescovo, *Phys. Rev. B* **75**, 214411 (2007).
- [33] G.X. Miao, Y.J. Park, J.S. Moodera, M. Seibt, G. Eilers et M. Münzenberg, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 246803 (2008).
- [34] Y.F. Chiang, J.J.I Wong, X. Tan, Y.Li, K. Pi, W.H. Wang, H.W.K. Tom et R.K. Kawakami, *Phys. Rev. B* **79**, 184410 (2009).
- [35] C. Li et A.J. Freeman, *Physical Review B* **43**, 780 (1991).
- [36] M. Klaua, D. Ullmann, J. Barthel, W. Wulfhekel, J. Kirschner, R. Urban, T.L. Monchesky, A. Enders, J.F. Cochran et B. Heinrich, *Phys. Rev. B* **64**, 134411 (2001).
- [37] J.L. Vassent, A. Marty, B. Gilles et C. Chatillon, *J. Cryst. Growth* **219**, 434 (2000).
- [38] M. Suleman et E.B. Pattinson, Changes in auger spectra of mg and fe due to oxidation, *Surface Science* **35**, 75–81 (1973).
- [39] M.P. Seah et W.A. Dench, *Surf. Interface Anal.* **1**, 2 (1979).
- [40] Y.Z. Wu, A.K. Schmid et Z.Q. Qiu, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 217205 (2006).
- [41] L. Joly, L. Tati-Bismaths, F. Scheurer et W. Weber, *Phys. Rev. B* **76**, 104415 (2007).
- [42] L. Joly, L. Tati-Bismaths et W. Weber, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 187404 (2006).
- [43] W. Schmitt, H. Hopster et G. Güntherodt, *Phys. Rev. B* **31**, 6 (1985).
- [44] K. Oguz, P. Jivrajka, M. Venkatesan, G. Feng et J.M.D. Coey, *J. Appl. Phys.* **103**, 07B526 (2008).
- [45] Z.Q. Qiu et S.D. Bader, *Review of Scientific Instruments* **71**(3) (2000).
- [46] M. Muller, F. Matthes, F. Schneider et M. Claus, *J. Appl. Phys.* **101**, 09G519 (2007).
- [47] Y. Sakisaka, T. Miyano et M. Onchi, *Phys. Rev. B* **30**, 6849 (1984).
- [48] T. Kebe, K. Zakeri, J. Lindner, M. Spasova et M. Farle, *J. Phys. : Condens. Matter* **18**, 8791 (2006).

- [49] K.O. Legg, F. Jona, D.W. Jepsen et P.M. Marcus, *Phys. Rev. B* **16**, 5271 (1977).
- [50] H.L. Meyerheim, R. Popescu, J. Kirschner, N. Jedrecy, M. Sauvage-Simkin, B. Heinrich et R. Pinchaux, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 076102 (2001).
- [51] H. L. Meyerheim, R. Popescu, N. Jedrecy, M. Vedpathak, M. Sauvage-Simkin, R. Pinchaux, B. Heinrich et J. Kirschner, *Phys. Rev. B.* **65**, 144433 (2002).
- [52] O.K. Andersen, *Phys. Rev. B* **12**, 3060 (1975).
- [53] J. Henk, A.M.N. Niklasson et B. Johansson, *Phys. Rev. B* **59**, 13986 (1999).
- [54] W.G. Zhang, W.H. Butler et A. Bandyopadhyay, *Phys. Rev. B* **68**, 092402 (2003).
- [55] S.G. Wang, G. Han, G.H. Yu, Y. Jiang, C. Wang, A. Kohn et R.C.C. Ward, *J. Magn. Magn. Mater.* **310**, 1935 (2007).
- [56] M. Sicot, S. Andrieu, C. Tiusan, F. Montaigne et F. Bertran, *J. Appl. Phys.* **99**, 08D301 (2006).
- [57] K. Miyokawa, S. Saito, T. Katayama, T. Saito, T. Kamino, K. Hanashima, Y. Suzuki, K. Mamiya, T. Koide et S. Yuasa, *Jpn. J. Appl. Phys.* **44**, L9 (2004).
- [58] P. Luches, S. Benedetti, M. Liberati, F. Boscherini, I.I. Pronin et S. Valeri, *Surf. Sci.* **583**, 191 (2005).
- [59] G.C. Smith, H.A. Padmore et C. Norris, *Surf. Sci.* **119**, L287 (1982).
- [60] P. Schurer, Z. Celinski et B. Heinrich, *Phys. Rev. B* **51**, 2506 (1995).
- [61] B. Heinrich et al., *Phys. Rev. B* **26**, 5391 (1988).
- [62] H. Li et al., *Phys. Rev. B* **42**, 9195 (1990).
- [63] S. Tanuma, C.J. Powell et D.R. Penn, *Surf. Interface Anal.* **17**, 927 (1991).
- [64] Y.Z. Wu, C. Won et Z.Q. Qiu, *Phys. Rev. B* **65**, 184419 (2002).
- [65] L. Tati-Bismaths, *Etude du mouvement du spin d'électrons dans les puits quantiques dépendants du spin*, Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur, 2008.
- [66] Q. Qiu, J. Pearson et S.D. Bader, *Phys. Rev. B* **49**, 8797 (1994).

- [67] A. Chambers et D.C. Jackson, *Philos. Mag.* **31**, 1357 (1975).
- [68] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M.B. Brodsky et H. Sowers, *Phys. Rev. Lett.* pages 2442–2445 (1986).
- [69] S.S.P. Parkin, N. More et K.P. Roche, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2304–2307 (1990).
- [70] S. Egger, C.H. Back, J. Krewer et D. Pescia, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2833 (1999).
- [71] J. Fassebender, U. May, B. Schirner, R.M. Jungblut, B. Hillebrands et G. Güntherodt, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4476 (1995).
- [72] A. Scholl, L. Baumgarten et W. Eberhardt, *Phys. Rev. B* **56**, 747 (1997).
- [73] W. Weber, D. Oberli, S. Riesen et H.C. Siegmann, *New J. of Phys.* **1**, 9.1 (1999).
- [74] P. Kielar, *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 5 (1994).
- [75] R. Pittini, J. Schoenes, O. Voget et P. Wachter, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 944 (1996).
- [76] J.J. Barton, Z. Hussain et D.A. Shirley, *Phys. Rev. B* **35**, 933 (1987).
- [77] C. Ramsauer, *Ann. Physik* **4**, 513 (1921).
- [78] J.S. Townsend et V.A. Bailey, *Philos. Mag.* **43**, 593 (1922).