

Influence de la structure des matériaux pour les applications en spintronique et magnonique

Nicolas Biziere

Centre d'Elaboration des Matériaux et d'Etudes Structurales (CEMES) – Toulouse

Journées Thématiques « Capteurs Magnétiques & Électromagnétiques (EM) et Applications »
GDR Ondes CNRS 2451, GT3-Capteurs, Inversion & Imagerie

Plan

I. Rappels sur les applications principales en spintronique et magnonique et enjeux matériaux associés

- I. Rappel sur les applications en spintronique
- II. Concept de la magnonique

II. Exemple de problématique sur un matériau modèle : l'alliage Heusler Co_2MnSi

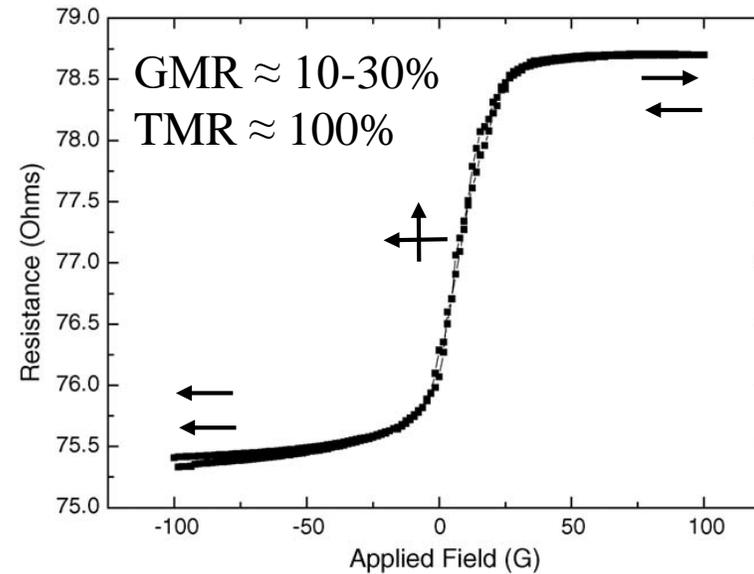
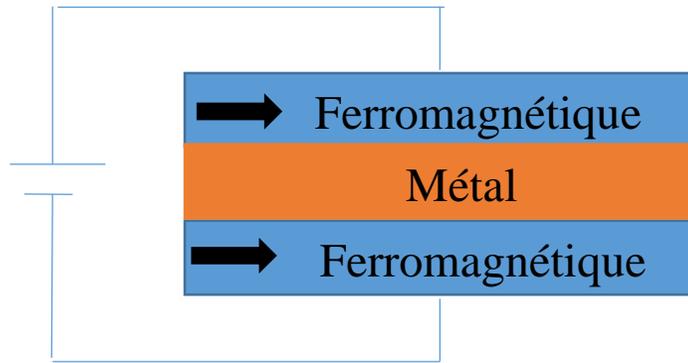
- I. Influence du désordre atomique sur les propriétés magnétiques
- II. Méthode de mesure du désordre
- III. Propriétés magnétiques Vs. désordre

III. Expériences Vs. calculs ab-initio

IV. Conclusion

Quelques rappels sur la spintronique

- **Electronique de spins** (= spintronique): consiste à utiliser le spin de l'électron pour modifier la conductivité électrique d'un dispositif électronique
- **Brique de base** : Magnéto Résistance Géante (GMR) *Nobel 2007 A. Fert et P. Grundberg*

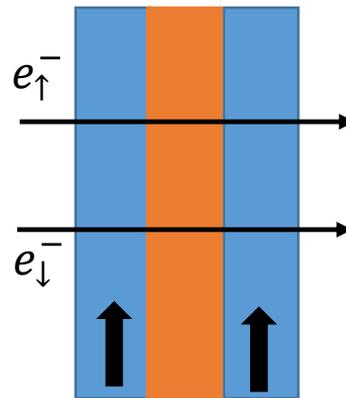
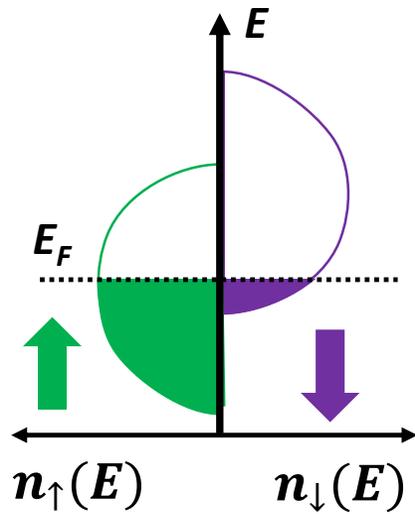


GMR pour tête de lecture dans les disques durs

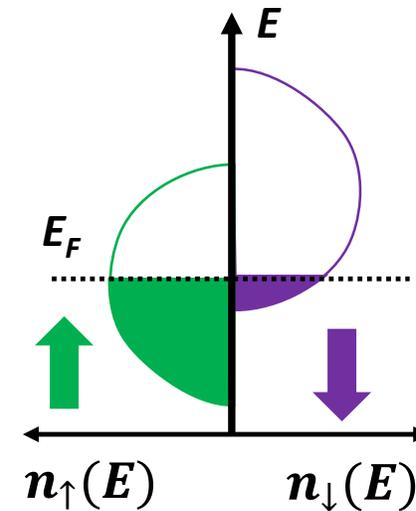
- **Intérêt** : capteurs de champ, pas de flux => miniaturisation des composants
- **Applications principales** : informatique, automobile (ex : capteurs de position), mesure de courant électrique, Contrôle Non Destructif, imagerie médicale etc.....

Augmenter les effets de magnéto-résistance : implication matériau

- Augmenter la polarisation en spin $P = \frac{N_{\uparrow} - N_{\downarrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}}$ pour augmenter la GMR et TMR

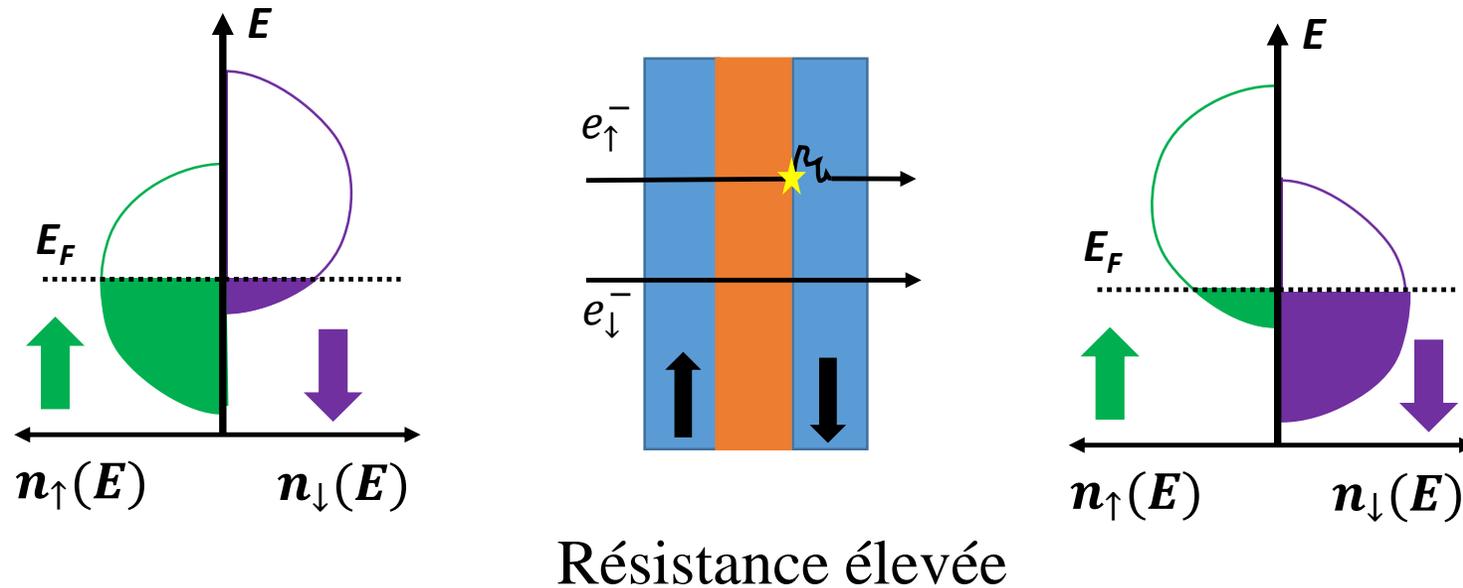


Résistance faible



Augmenter les effets de magnéto-résistance : implication matériau

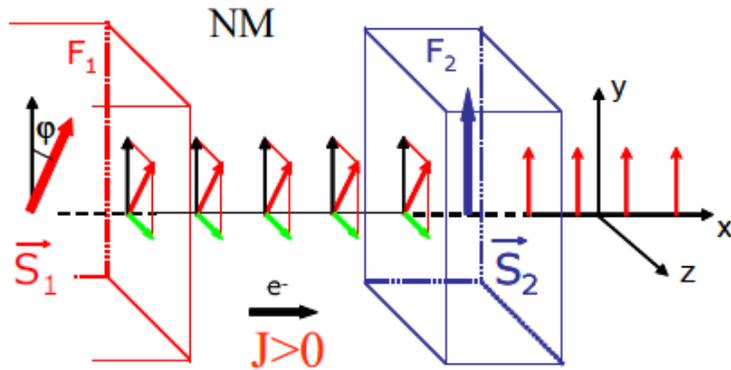
- Augmenter la polarisation en spin $P = \frac{N_{\uparrow} - N_{\downarrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}}$ pour augmenter la GMR et TMR



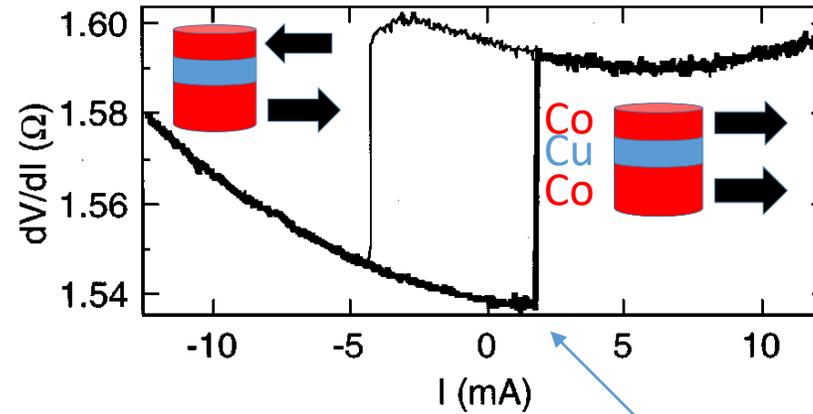
Exemple CoFe $\Rightarrow P = 70\%$

Le transfert de spin : manipuler l'aimantation avec un courant électrique

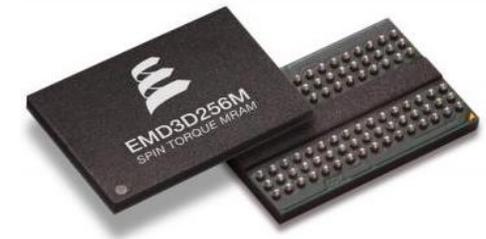
- **Principe** : transfert de moment cinétique entre électrons polarisés et aimantation



Appl. Phys. Letters 77, 3809 (2000)



$$\text{densité de courant critique } J_C \propto \frac{\alpha \cdot M_S}{P}$$



mémoire
(ST-MRAM)

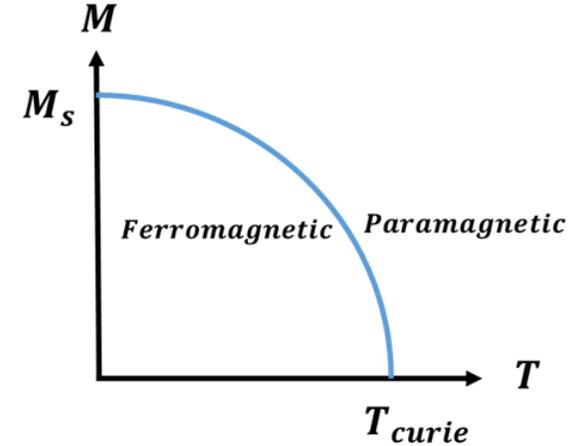
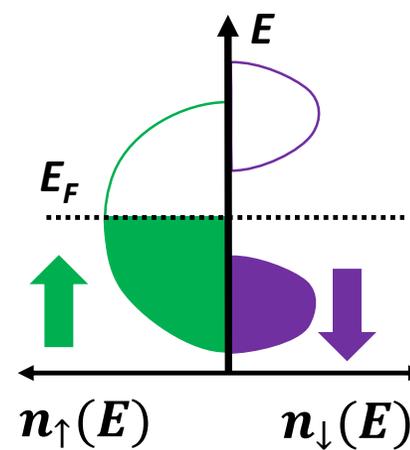
- **Applications principales** : mémoires magnétiques ST-MRAM
- **Objectifs** : diminuer le courant critique J_C
 - ⇒ augmenter la polarisation en spin
 - ⇒ diminuer le facteur de relaxation dynamique α

Forte recherche pour des matériaux demi-métalliques car $P = 100\%$ (théoriquement!)

⇒ Oxydes : LaSrMnO_3 , Fe_3O_4 , CrO_2 etc..

⇒ Alliages d'Heusler du type X_2YZ avec X, Y des métaux de transitions et Z de type sp

⇒ Intérêt particulier pour Heusler à base de Cobalt car haute T_{curie}°

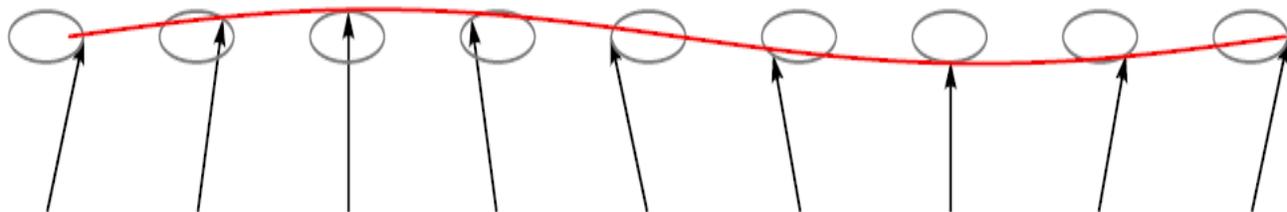


	P en % (à T ambiante)	α	$\mu_0 M_s$	Tc en °	Compatibilité CMOS
CoFe	70 😐	$\approx 5 \cdot 10^{-3}$ 😐	$\approx 1.8 \text{ T}$ 😊	900 😊	OUI 😊
Permalloy	50-60 😐	$\approx 5 \cdot 10^{-3}$ 😐	$\approx 1.1 \text{ T}$ 😐	300 😐	OUI 😊
Fe_3O_4	≈ 30 (80 en surface) 😞	$\approx 3 \cdot 10^{-2}$ 😞	$\approx 0.4 \text{ T}$ 😞	600 😊	difficile 😐
LSMO	> 80 😊	$\approx 2 \cdot 10^{-3}$ 😐	$\approx 0.65 \text{ T}$ 😞	50 😞	NON 😞
CO_2MnSi	> 90 😊	$\approx 8 \cdot 10^{-4}$ 😊	$\approx 1.27 \text{ T}$ 😐	650 😊	Peut être..

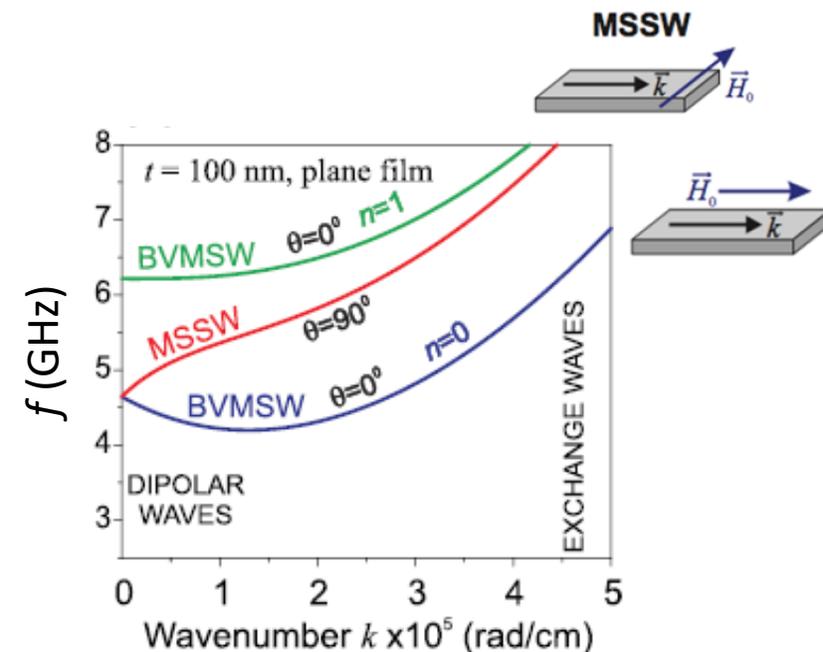
Rappels sur les concepts de la magnonique

- **Principe de base** : utiliser des ondes de spins pour transporter de l'information

⇒ Réduction des pertes par effet joule (pas de courant électrique)



Ondes de spins (= magnons) : oscillations locales de l'aimantation

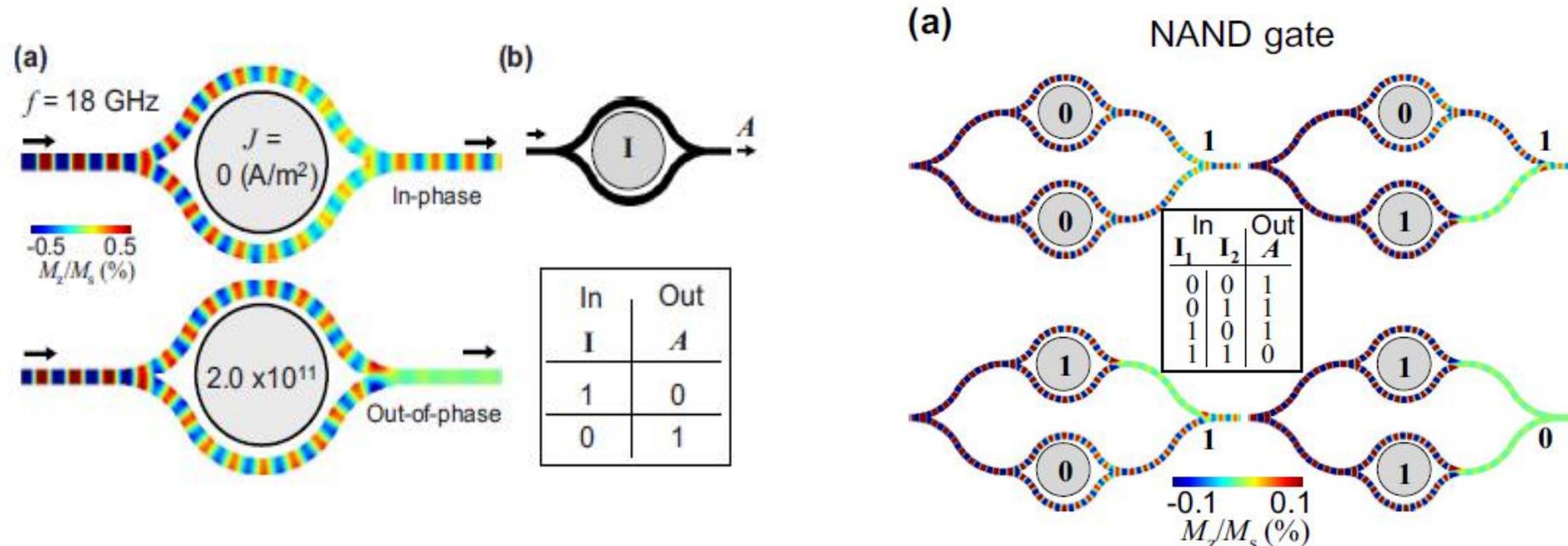


Intérêts principaux :

- Miniaturisation des composants radiofréquences (GHz) car longueurs d'ondes petites
- Composants accordables en fréquence par application d'un champ magnétique
- Physique des ondes (interférométrie, modulation phase/amplitude, etc...)

Exemple d'applications : portes logiques

J. Appl. Phys. **104**, 053909 2008



- Longueur d'atténuation de l'onde $L \propto \frac{V_g}{2\alpha f}$

- **Objectifs:**

⇒ diminuer le coefficient de relaxation dynamique α pour augmenter la longueur d'atténuation

Exemple : YIG $\alpha \approx 5 \cdot 10^{-5} \Rightarrow$ longueur d'atténuation de plusieurs centaines de μm

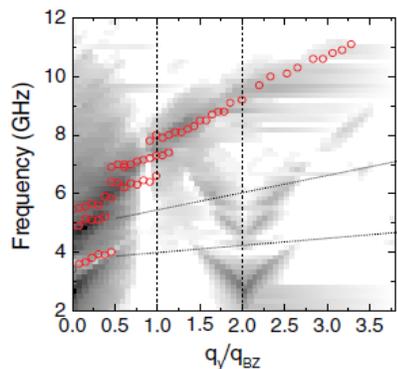
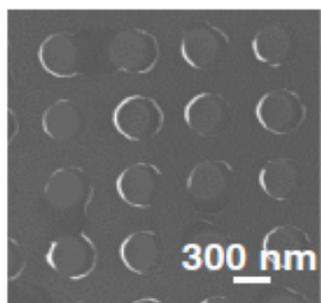
⇒ forte aimantation $\mu_0 M_s$ pour atteindre des fréquences de plusieurs GHz

➔ Intérêt pour les Heulser ($\alpha \leq 10^{-3}$, $\mu_0 M_s \geq 1\text{T}$)

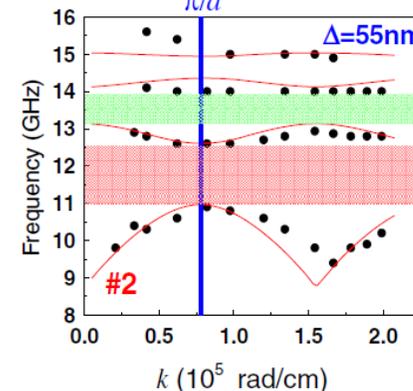
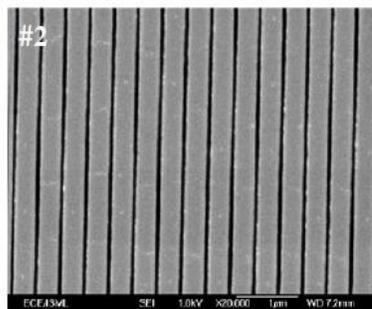
Rappels sur les concepts de la magnonique

- **Cristal magnonique** : matériau avec une modulation périodique de ses propriétés magnétiques
- Positions et largeurs des bandes interdites dépendent des matériaux, du réseau, du champ ...

PRL 109, 137202, 2012

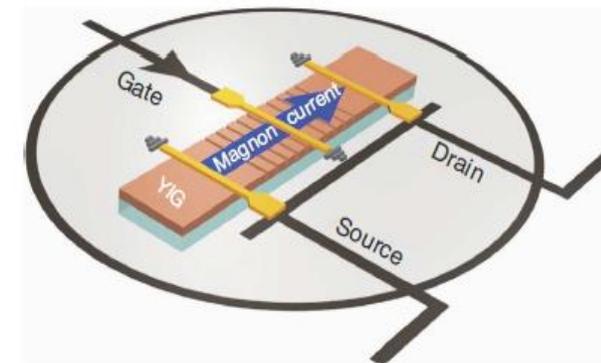


J. Phys. D: Appl. Phys. 43, 264003, 2010.

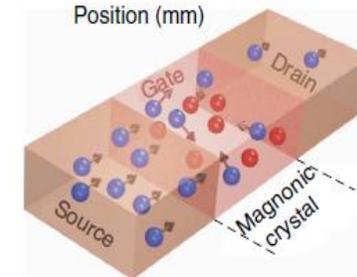


Nature Comm. 5, 4700, 2014

Magnon transistor scheme



Position (mm)



- **Multiple applications** : composants RF à bande passante ajustable, téléphonie, portes logiques, transistor à magnon, cryptage...

Review : Magnonic crystals for data processing, Chumak et al., J. Phys. D: Appl. Phys. 50, 244001, 2017

Recherche en nouveaux matériaux en spintronique et en magnonique

	P en % (T ambiante) GMR/TMR Spin torque	α spin torque et magnonique	$\mu_0 M_s$ magnonique	Tc en ° Spintronique magnonique	Compatibilité CMOS Spintronique magnonique
CoFe	70 😞	$\approx 5 \cdot 10^{-3}$ 😞	≈ 1.8 T 😊	900 😊	OUI 😊
Permalloy	50-60 😞	$\approx 5 \cdot 10^{-3}$ 😞	≈ 1.1 T 😞	300 😞	OUI 😊
Fe ₃ O ₄	≈ 30 (80 en surface) 😞	$\approx 3 \cdot 10^{-2}$ 😞	≈ 0.4 T 😞	600 😊	difficile 😞
LSMO	> 80 😊	$\approx 2 \cdot 10^{-3}$ 😞	≈ 0.65 T 😞	50 😞	NON 😞
YIG	isolant 😞	$\approx 5 \cdot 10^{-5}$ 😊	≈ 0.4 T 😞	200 😞	NON 😞
CO₂MnSi	> 90 😊	$\approx 8 \cdot 10^{-4}$ 😊	≈ 1.27 T 😞	650 😊	Peut etre..

- L'Alliage d'Heusler Co₂MnSi (CMS) présente un profil idéal pour la spintronique et la magnonique

Recherche en nouveaux matériaux en spintronique et en magnonique

	P en % (T ambiante) GMR/TMR Spin torque	α spin torque et magnonique	$\mu_0 M_s$ magnonique	Tc en ° Spintronique magnonique	Compatibilité CMOS Spintronique magnonique
CoFe	70 😞	$\approx 5 \cdot 10^{-3}$ 😞	≈ 1.8 T 😊	900 😊	OUI 😊
Permalloy	50-60 😞	$\approx 5 \cdot 10^{-3}$ 😞	≈ 1.1 T 😞	300 😞	OUI 😊
Fe ₃ O ₄	≈ 30 (80 en surface) 😞	$\approx 3 \cdot 10^{-2}$ 😞	≈ 0.4 T 😞	600 😊	difficile 😞
LSMO	> 80 😊	$\approx 2 \cdot 10^{-3}$ 😞	≈ 0.65 T 😞	50 😞	NON 😞
YIG	isolant 😞	$\approx 5 \cdot 10^{-5}$ 😊	≈ 0.4 T 😞	200 😞	NON 😞
CO₂MnSi	100	$\approx 1 \cdot 10^{-4}$	≈ 1.3 T	650 😊	Peut etre..

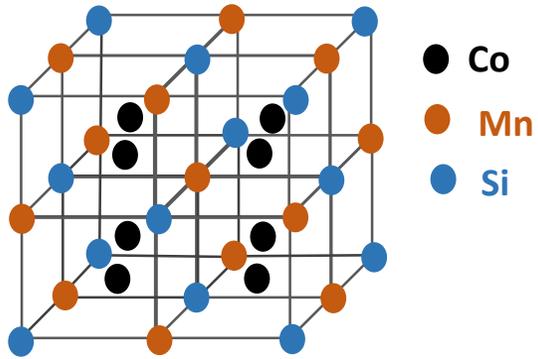
- L'Alliage d'Heusler Co₂MnSi (CMS) présente un profil idéal pour la spintronique et la magnonique

Mais expérimentalement.....

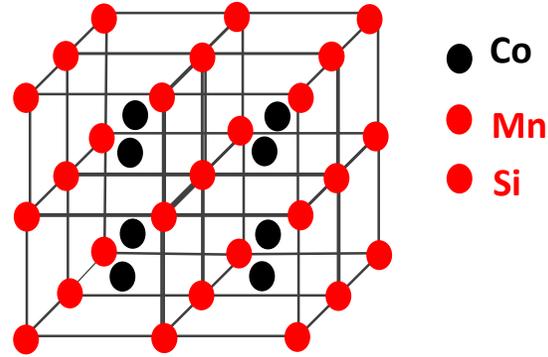
- $P \leq 100\%$ (record 93% *Nature Comm* 5, 3974, 2014)
- moment magnétique $< 5 \mu_B/\text{f.u}$ (ou $\mu_0 M_s < 1.29$ T)
- α presque toujours $\geq 3 \times 10^{-3}$ (record 8×10^{-4} *Phys. Rev. B.* 93, 094417, 2016)

Pourquoi ? Influence du désordre atomique sur les propriétés magnétiques

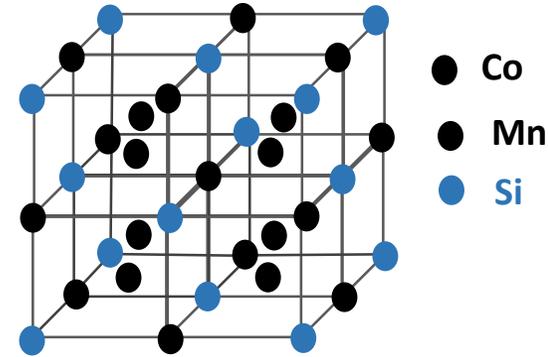
Exemple de relation entre structure et magnétisme : le Co_2MnSi



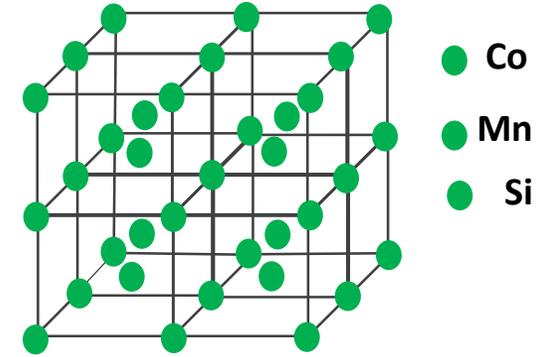
Phase $L2_1$: la + ordonnée



Phase B2 : échange Mn/Si

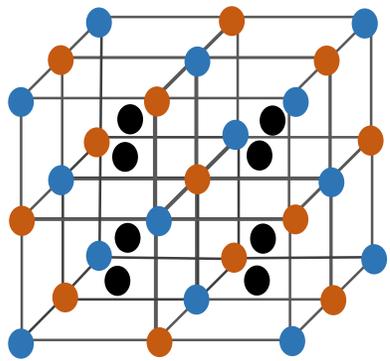


Phase $D0_3$: échange Co/Mn



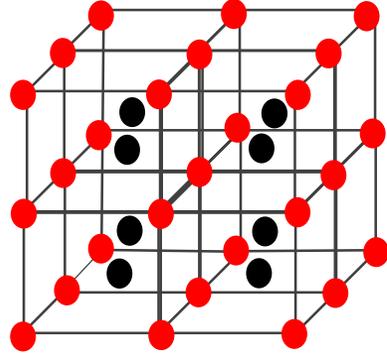
Phase A2 : atomes distribués aléatoirement

Exemple de relation entre structure et magnétisme : le Co_2MnSi



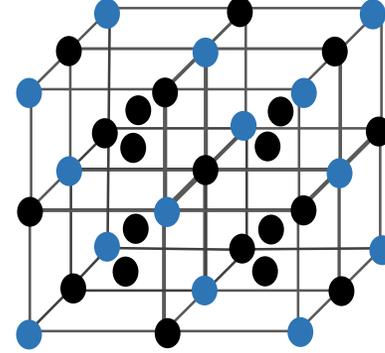
● Co
● Mn
● Si

Phase $L2_1$: la + ordonnée



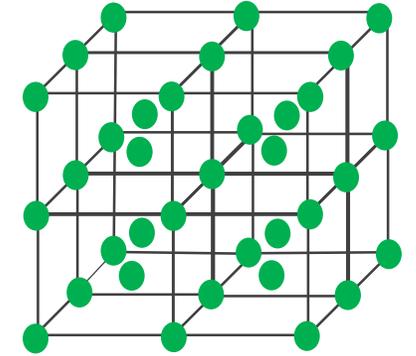
● Co
● Mn
● Si

Phase B2 : échange Mn/Si



● Co
● Mn
● Si

Phase $D0_3$: échange Co/Mn



● Co
● Mn
● Si

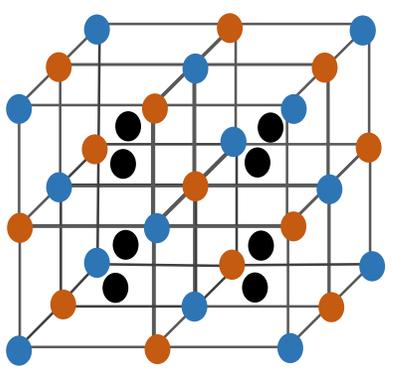
Phase A2 : atomes distribués aléatoirement

- Aimantation maximum $5\mu_B/\text{f.u}$ ($\mu_0 M_s \approx 1.29 \text{ T}$)
- Polarisation en spins 100 %
- Meilleure valeur de α value théorique $\sim 1 \times 10^{-4}$
- Anisotropie cristalline cubique



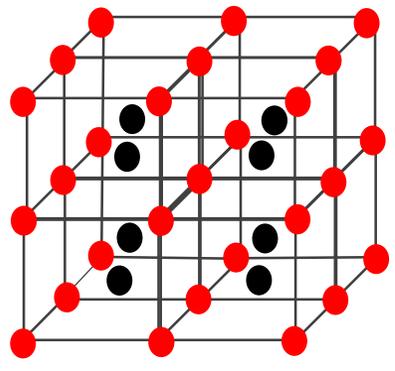
expériences \neq théorie !

Exemple de relation entre structure et magnétisme : le Co_2MnSi



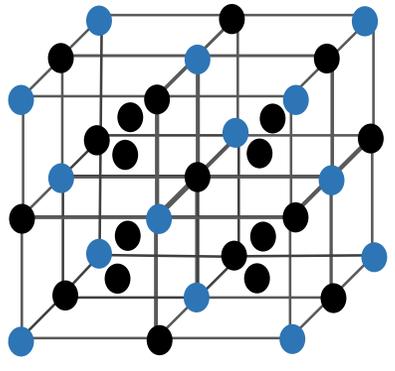
● Co
● Mn
● Si

Phase $L2_1$: la + ordonnée



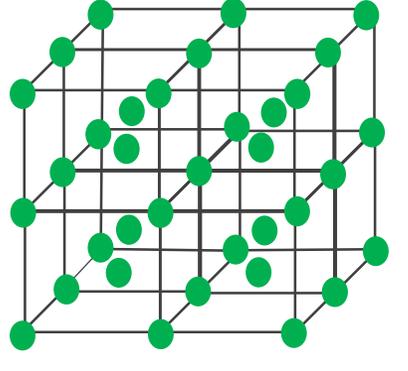
● Co
● Mn
● Si

Phase B2 : échange Mn/Si



● Co
● Mn
● Si

Phase $D0_3$: échange Co/Mn



● Co
● Mn
● Si

Phase A2 : atomes distribués aléatoirement

- Aimantation maximum $5\mu_B/\text{f.u}$ ($\mu_0 M_s \approx 1.29 \text{ T}$)
- Polarisation en spins 100 %
- Meilleure valeur de α value théorique $\sim 1 \times 10^{-4}$
- Anisotropie cristalline cubique



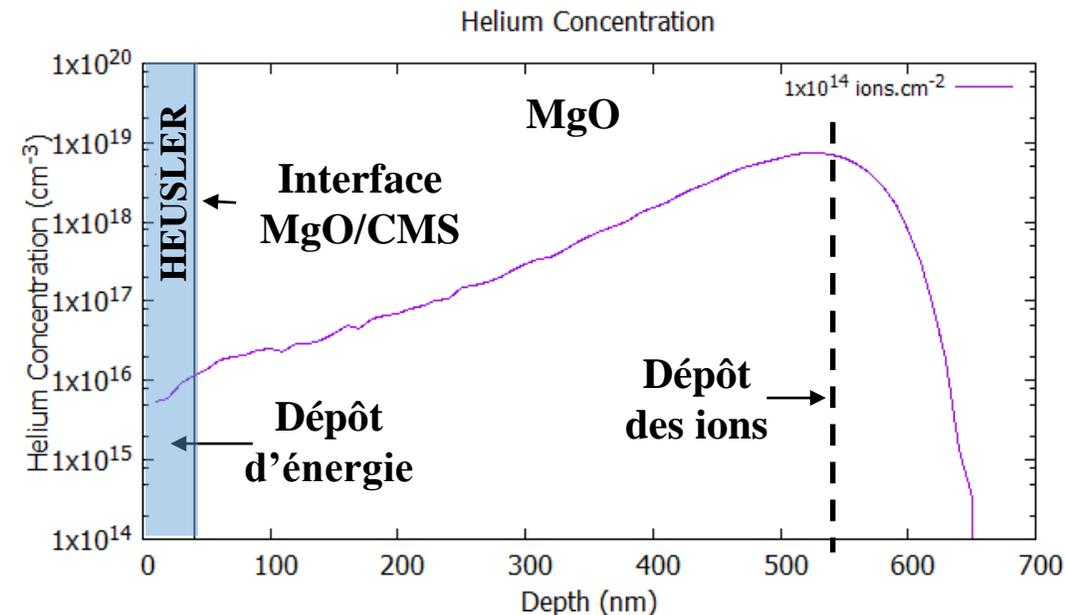
expériences \neq théorie !

- Rarement discuté dans la littérature
- **Polarisation $\approx -30\%$**
- **Aimantation plus faible $3.35 \mu_B/\text{f.u}$** ($\mu_0 M_s \approx 0.9 \text{ T}$)
- Effet sur anisotropie et α ?

- Pas d'info

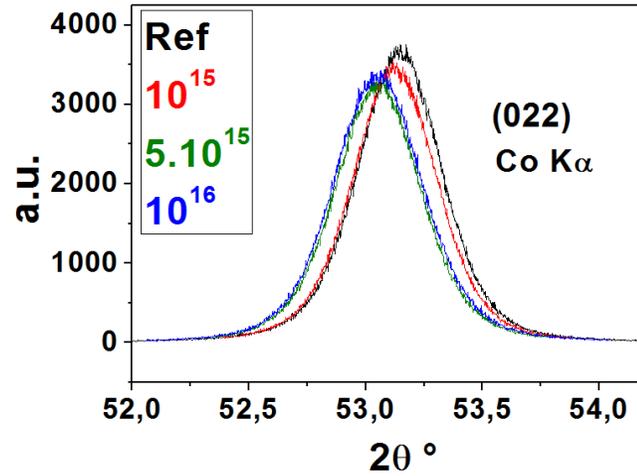
- **Objectif** : faire de l'ingénierie des différents désordres atomiques dans le CMS pour comprendre leurs effets respectifs sur les propriétés magnétiques
- **Préparation échantillon** :
 - Croissance de films de 40 nm de CO_2MnSi par pulvérisation cathodique sur substrat MgO (001)
 - $T^\circ_{\text{dep}} = 600^\circ \text{C}$, $T^\circ_{\text{recuit}} = 750^\circ \text{C}$ pendant 4 H
 ⇒ Echantillons coupés en 4 morceaux : 1 référence et 3 irradiés à des fluences de 10^{15} , 5×10^{15} et 10^{16} ions/cm².

- **Outil pour modifier l'ordre chimique : irradiation ionique aux ions He^+ à 150 KeV**
 - Vision simplifiée : transfert d'énergie cinétique entre ions incidents et atomes du réseau
 - Choix des ions He^+ car chimiquement inertes
 - Grande énergie cinétique pour éviter l'implantation d'He dans le CMS

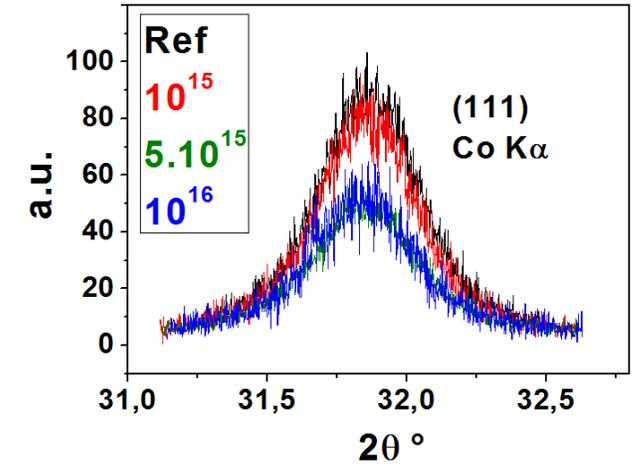
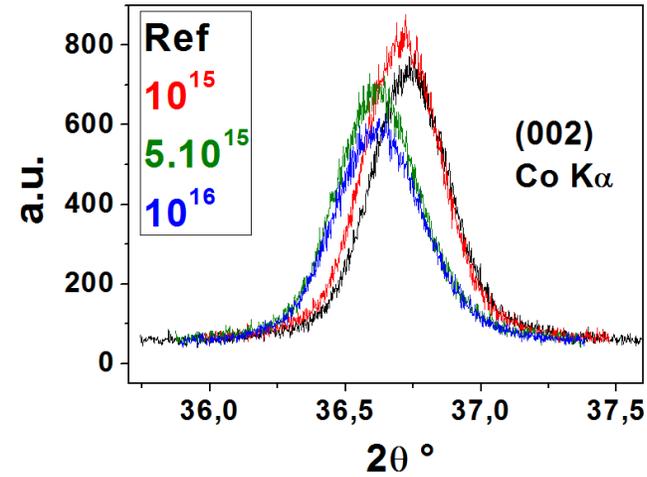


Caractérisation structurale: diffraction X

pic fondamental



Pics de sur-structure : *information sur l'ordre cristallin*



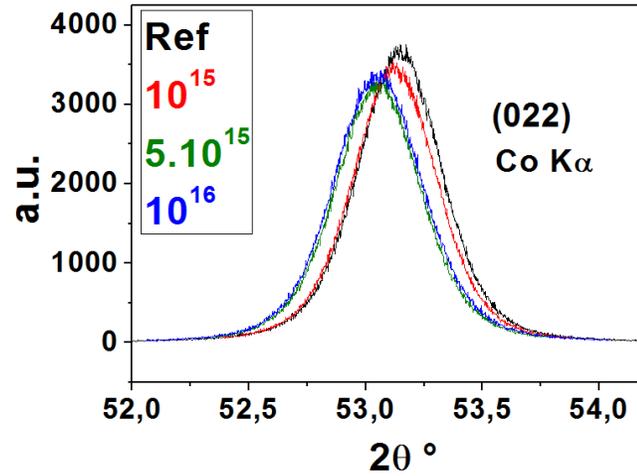
fluence	a (Å)	c (Å)
Ref	5.63	5.67
10^{15}	5.63	5.68
5×10^{15}	5.63	5.69
10^{16}	5.63	5.69

Pic (111) =
Ordre L2₁... et/ou DO₃!!!!

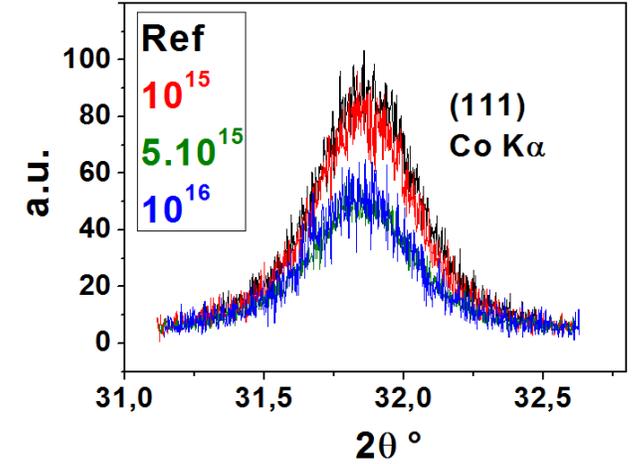
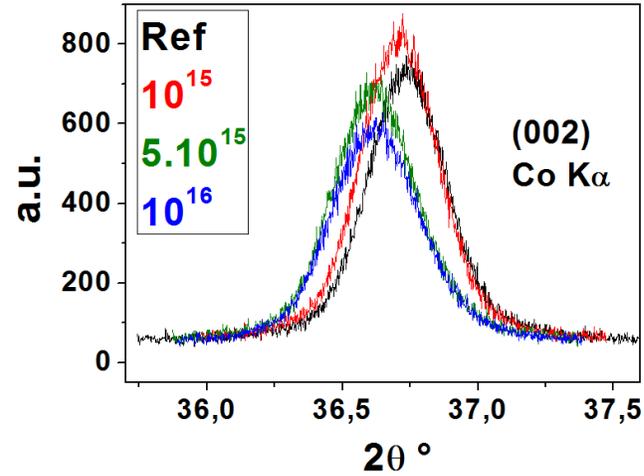
Valeur théorique a=c= 5.65 Å : légère déformation tétragonale qui augmente avec la fluence

Caractérisation structurale: diffraction X

pic fondamental



Pics de sur-structure : information sur l'ordre cristallin



3 paramètres d'ordre

α : Mn/Si
 β : Co/Si
 γ : Co/Mn



Facteur de structure avec les \neq désordres

$$F_{111} \propto (1 - 2\alpha - \beta)(f_{\text{Mn}} - f_{\text{Si}}) + (\gamma - \beta)(f_{\text{Co}} - f_{\text{Mn}})$$

$$F_{002} \propto (1 - 2\beta)(f_{\text{Co}} - f_{\text{Si}}) + (1 - 2\gamma)(f_{\text{Co}} - f_{\text{Mn}})$$

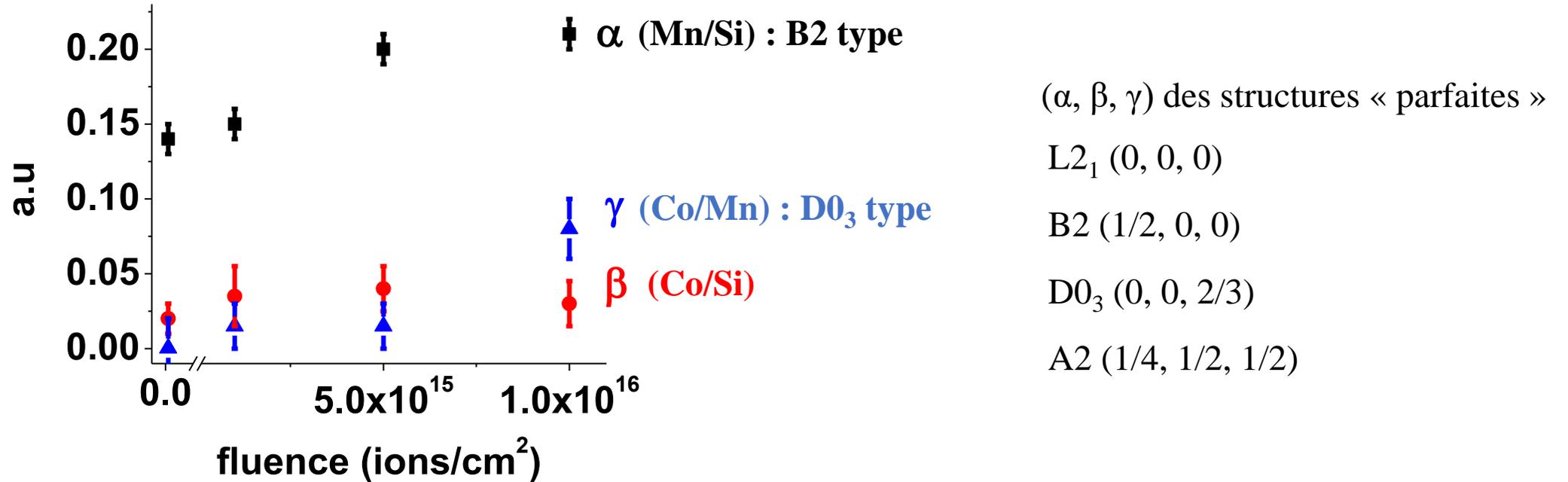
$$F_{022} = F_{004} \propto 2f_{\text{Co}} + f_{\text{Mn}} + f_{\text{Si}}$$



Compare exp. and th. I_{hkl}/I_{022}
 ratios

$$I_{hkl} \approx L_{hkl}(\theta) P_{hkl}(\theta) |F_{hkl}|^2 \frac{1}{\sin \theta_{hkl}}$$

Caractérisation structurale: diffraction X



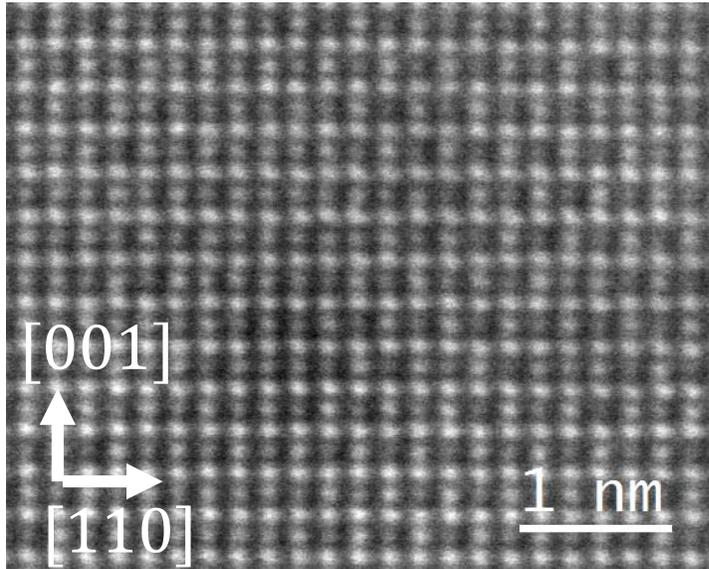
- Echantillon de référence : $\approx 75\%$ d'ordre L2₁ et $\approx 25\%$ d'ordre B2.
- Effet de l'irradiation:
 - Augmentation de l'ordre B2 (désordre de type Mn/Si)
 - Augmentation de l'ordre D0₃ (désordre de type Co/Mn)
 - Le désordre de type Co/Si est à peu près constant.

Mais quelle est l'organisation du désordre au niveau atomique ?

STEM – HAADF (Coll. Cesar Magén @TALEM à Zaragosse)

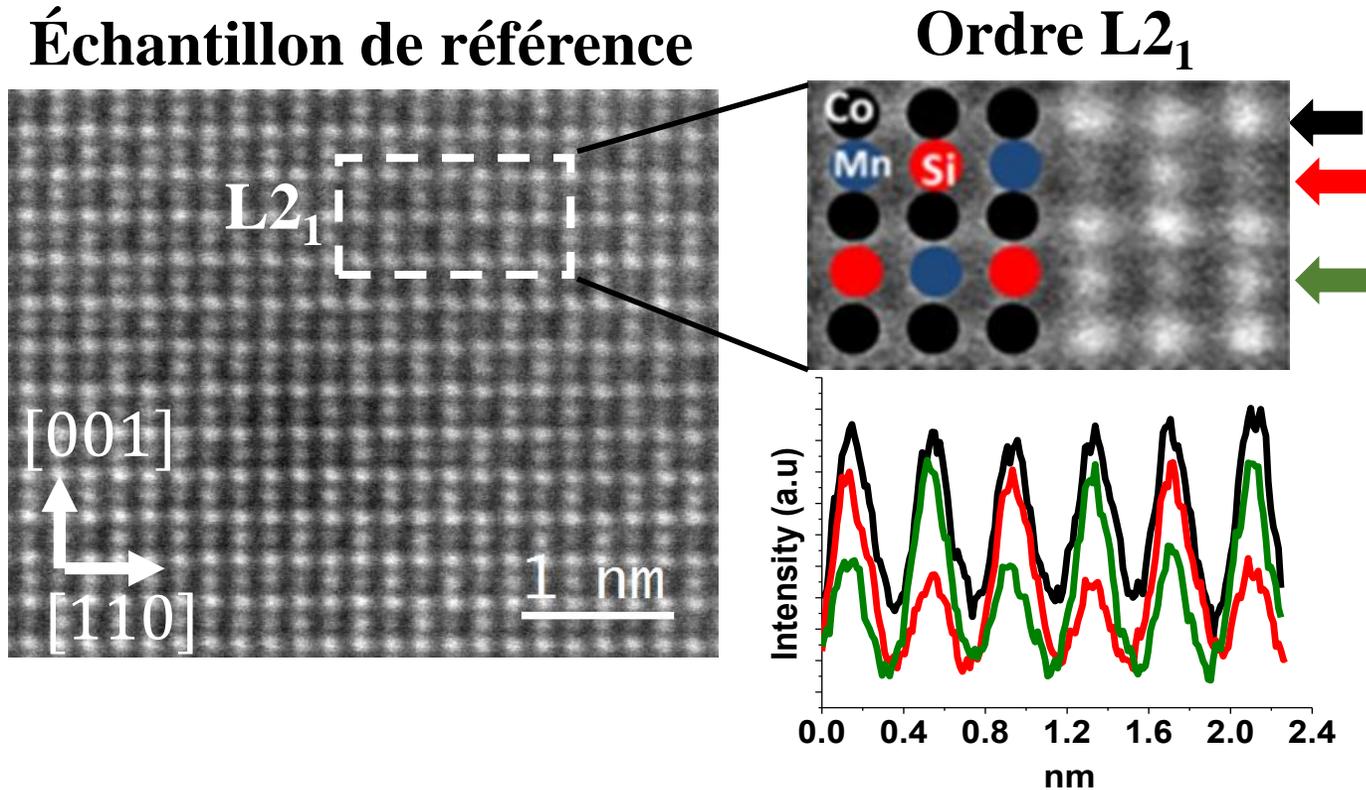
- Technique d'imagerie par microscopie électronique
- Intensité proportionnelle à $Z \Rightarrow$ difficile de distinguer entre atomes de Co ($Z=27$) et Mn ($Z=25$)

Échantillon de référence



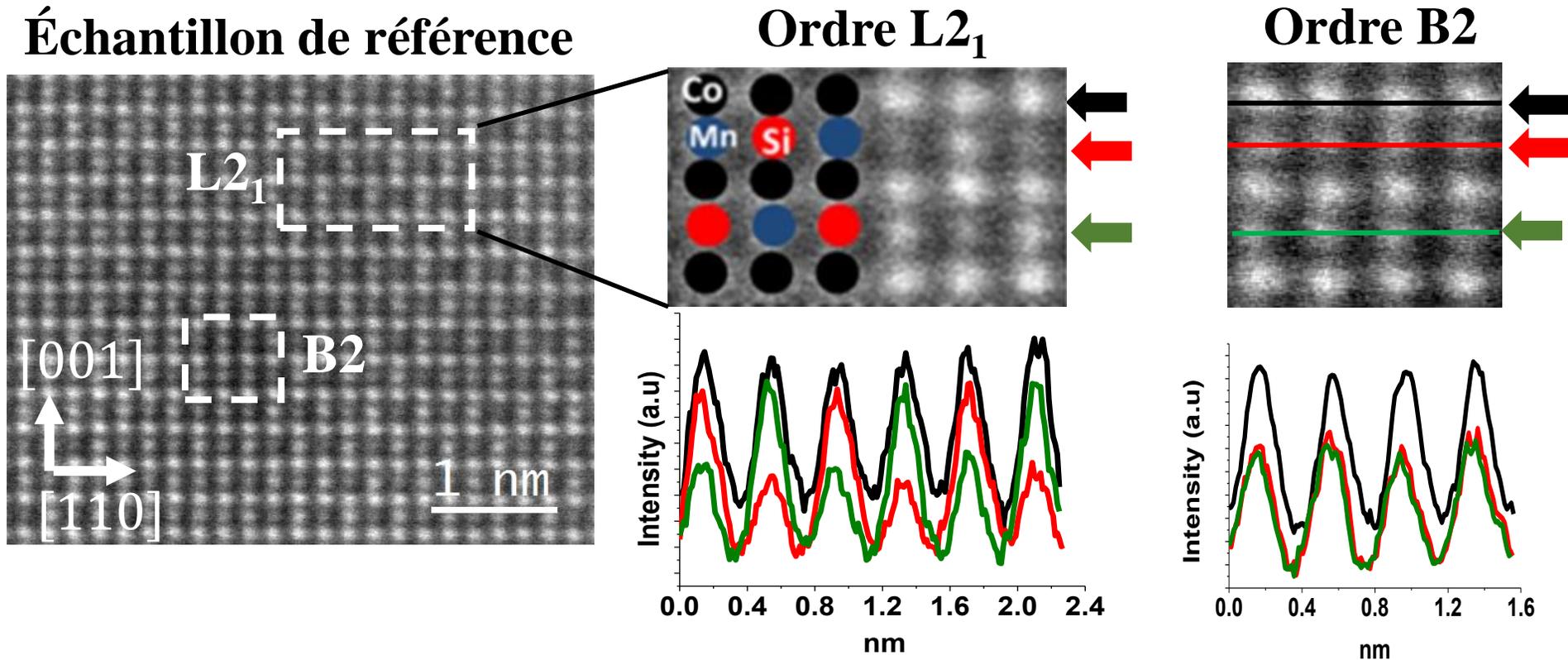
STEM – HAADF (Coll. Cesar Magén @TALEM à Zaragosse)

- Technique d'imagerie par microscopie électronique
- Intensité proportionnelle à $Z \Rightarrow$ difficile de distinguer entre atomes de Co ($Z=27$) et Mn ($Z=25$)



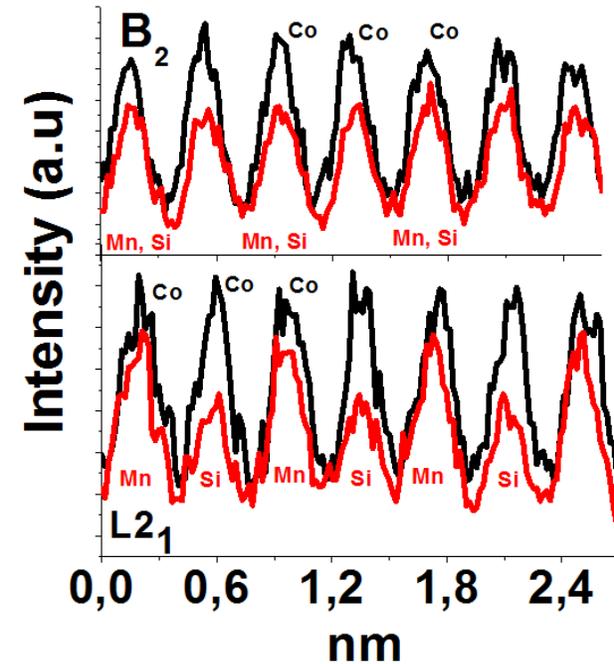
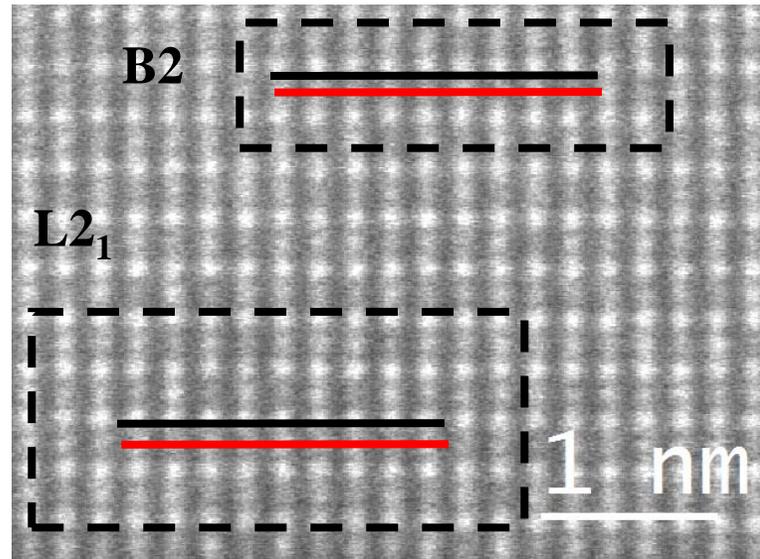
STEM – HAADF (Coll. Cesar Magén @TALEM à Zaragosse)

- Technique d'imagerie par microscopie électronique
- Intensité proportionnelle à $Z \Rightarrow$ difficile de distinguer entre atomes de Co ($Z=27$) et Mn ($Z=25$)



Le désordre de type α (Mn/Si) correspond à de petites régions cristallisées dans l'ordre B2 à l'intérieur de la matrice $L2_1$.

Echantillon irradié à 10^{16} ions/cm²



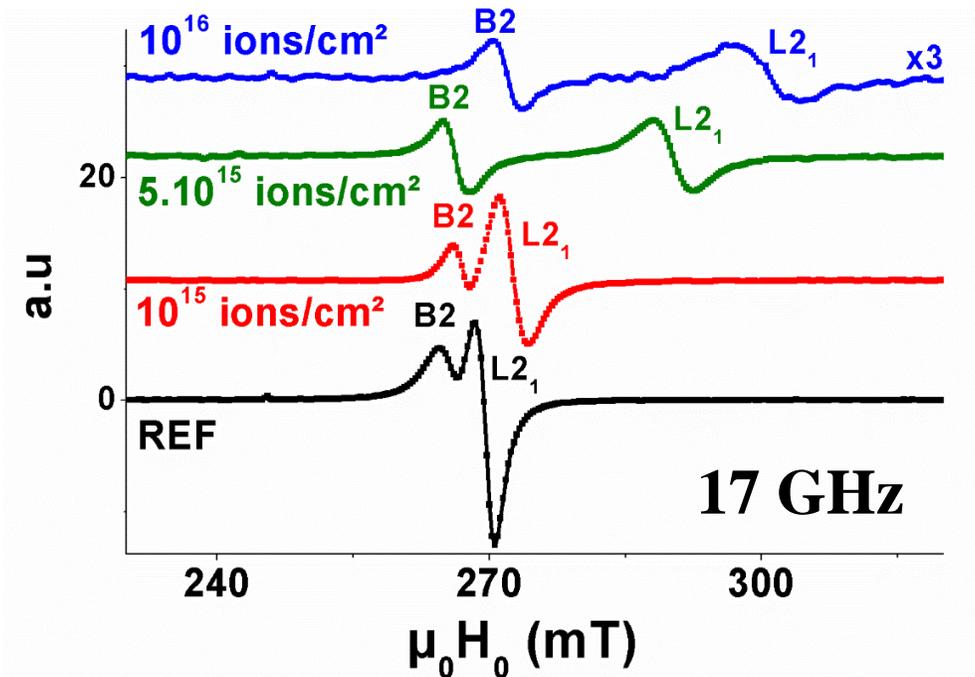
Abdallah et al.,
Material Research Express, 3, 046101, 2016.

Effet de l'irradiation aux ions He⁺ :

- Augmentation de la taille des régions de type B2 (désordre de type Mn/Si)
 - Problème: le désordre de type Co/Mn est difficile à observer :
- ⇒ Est ce que l'on a des régions cristallisées dans l'ordre D0₃ ?

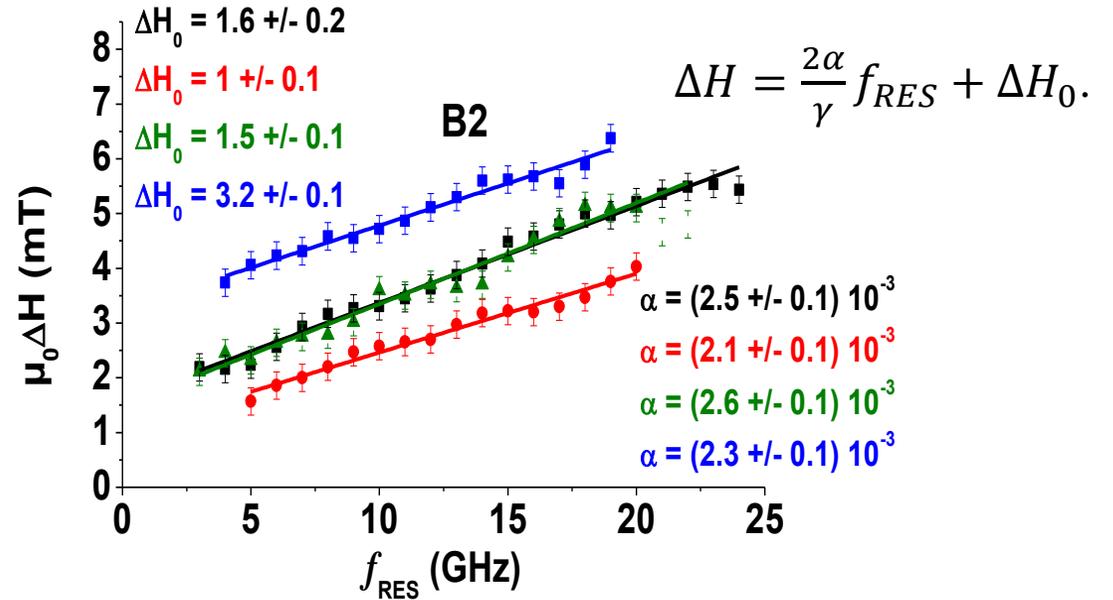
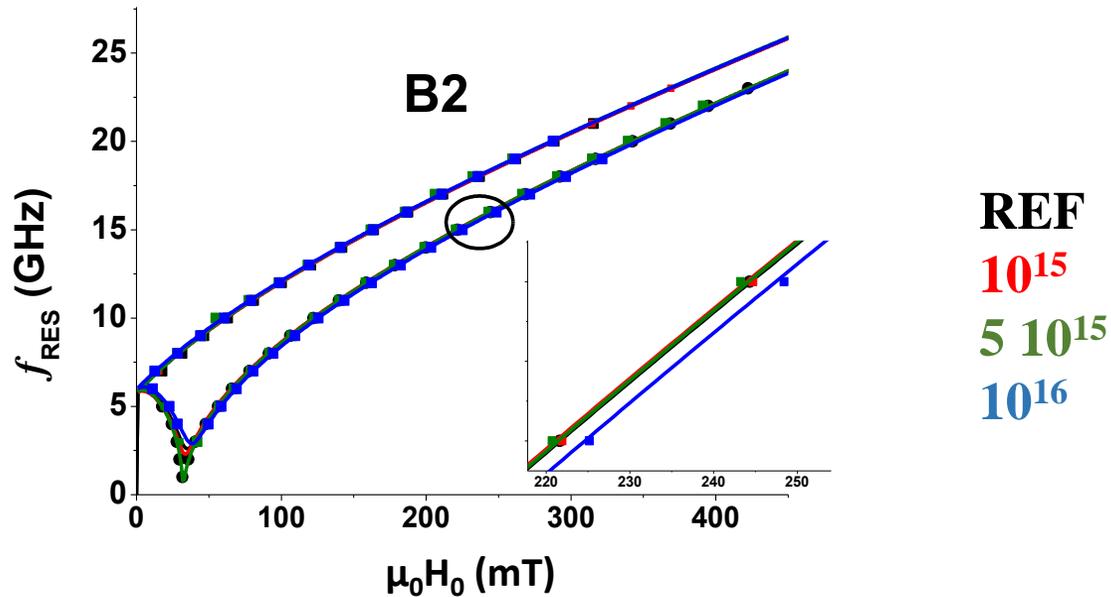
Mesure des paramètres magnétiques statiques et dynamiques

- Résonance ferromagnétique (FMR) en configuration micro-ruban
- Large bande 0.1 à 30 GHz
- Champ magnétique jusqu'à 0.6 T
- Modulation du champ statique => mesure de dP_{RF}/dH



Seulement deux pics FMR à 10^{16} ions/cm²
=> Pas de region D0₃ !

Evolution des propriétés magnétiques de la phase B2 avec la fluence

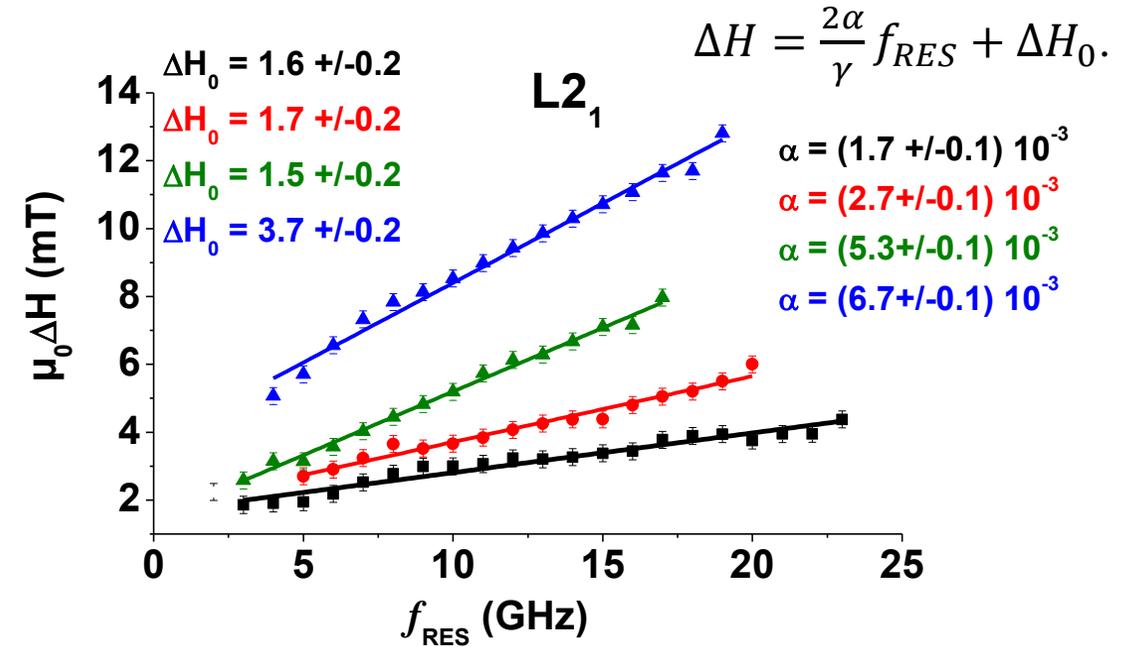
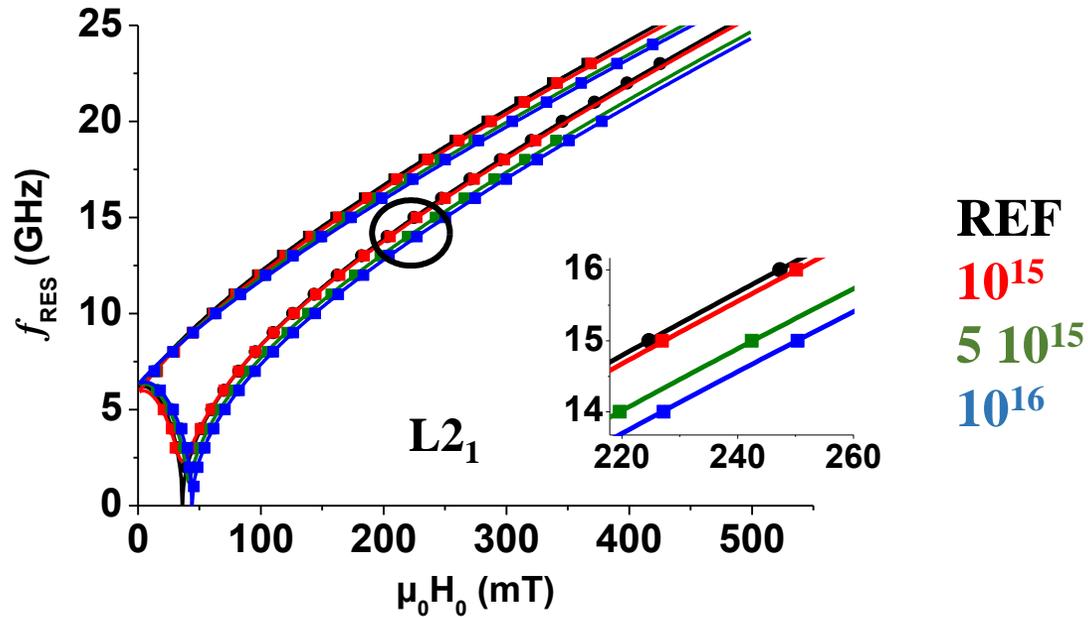


Ions/cm ²	REF	10 ¹⁵	5 x 10 ¹⁵	10 ¹⁶
$\mu_0 M_s$ (T)	1.25 ± 0.02	1.25 ± 0.02	1.25 ± 0.02	1.25 ± 0.02
M_s (μ_B /f.u)	4.85 ± 0.01	4.85 ± 0.01	4.85 ± 0.01	4.85 ± 0.01
$\mu_0 H_k$ (mT)	32 ± 0.5	33 ± 0.5	35 ± 0.5	36 ± 0.5
γ (GHz/T)	28.7 ± 0.1	28.7 ± 0.1	28.7 ± 0.1	28.7 ± 0.1
α (*10 ⁻³)	2.5 ± 0.1	2.1 ± 0.1	2.6 ± 0.1	2.3 ± 0.1

- **Paramètres magnétiques constants**
⇒ Bon accord avec littérature
- **Diminution de ΔH_0 à faible fluence** : amélioration de l'ordre à longue portée? *Gaier et al.* (APL 94, 152508, 2009)
- **Augmentation de ΔH_0 à forte fluence** due à la création de défauts ponctuels

⇒ L'irradiation favorise la phase B2

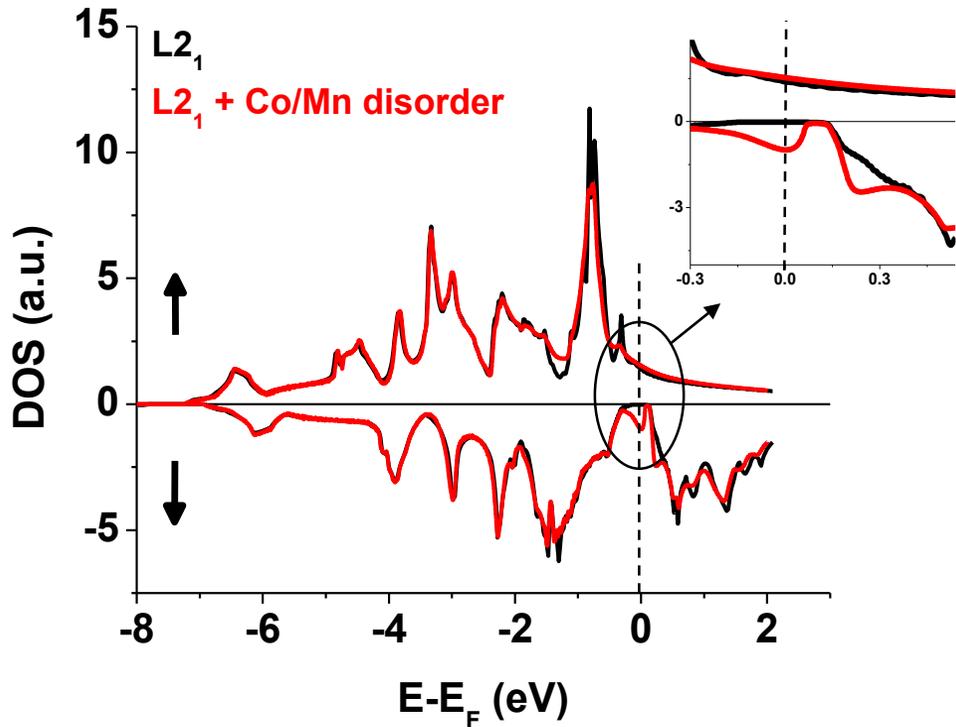
Evolution des propriétés magnétiques de la phase L2₁ avec le désordre Co/Mn



Ions/cm ²	REF	10 ¹⁵	5 x 10 ¹⁵	10 ¹⁶
$\mu_0 M_s$ (T)	1.26 ± 0.02	1.22 ± 0.02	1.14 ± 0.02	1.1 ± 0.02
Ms (μ_B /f.u)	4.86 ± 0.05	4.71 ± 0.05	4.41 ± 0.05	4.25 ± 0.05
$\mu_0 H_k$ (mT)	36 ± 0.5	34 ± 0.5	42 ± 0.5	45 ± 0.5
γ (GHz/T)	28.7 ± 0.1	28.7 ± 0.1	28.8 ± 0.1	28.9 ± 0.1
α (* 10 ⁻³)	1.7 ± 0.1	2.7 ± 0.1	5.3 ± 0.1	6.7 ± 0.1

- Paramètres L2₁ référence très bon / littérature
- Effet des échanges Co/Mn :
 - ⇒ Diminution de l'aimantation
 - ⇒ Augmentation de l'anisotropie H_k, du rapport gyromagnétique γ et du coefficient de relaxation α

Calcul de la densité d'états (DOS) en spin avec SPR-KKR

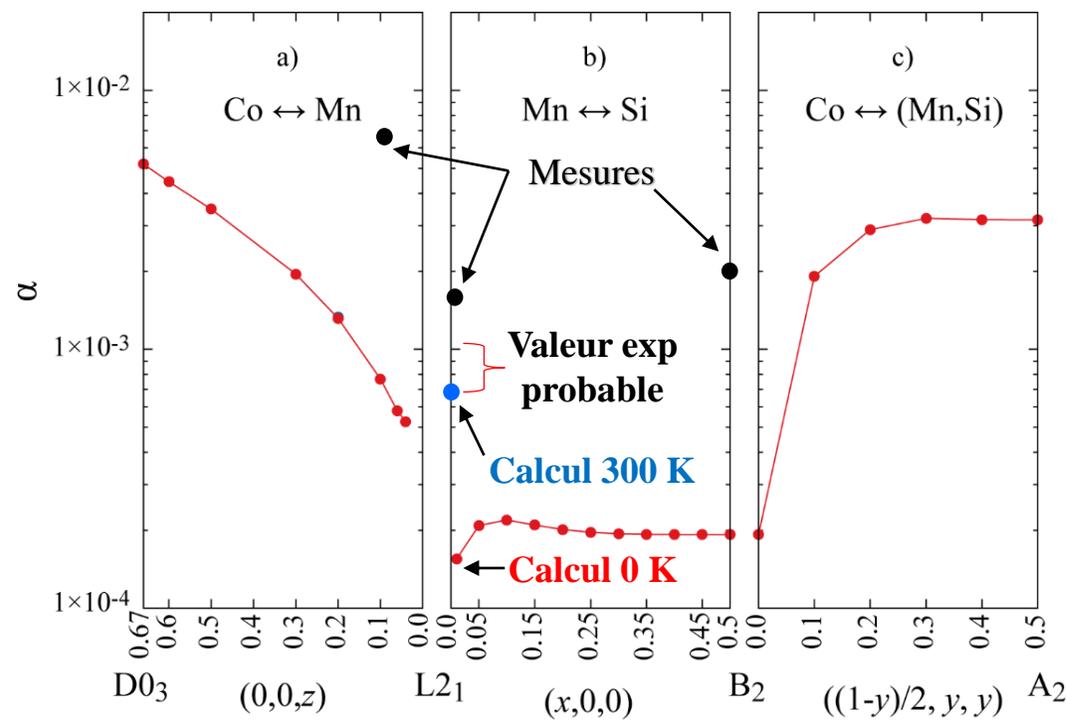
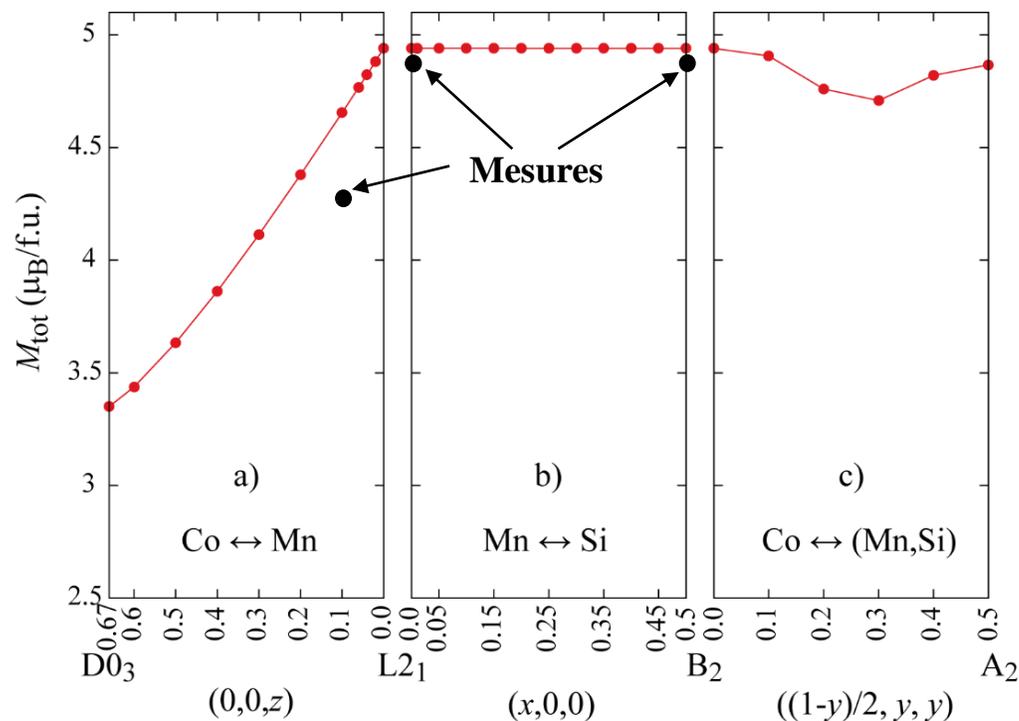


Ions/cm ²	REF	10 ¹⁵	5 x 10 ¹⁵	10 ¹⁶	L2 ₁ calculé	L2 ₁ /D0 ₃ calculé
Ms (μ _B /f.u)	4.86 ± 0.05	4.71 ± 0.05	4.41 ± 0.05	4.25 ± 0.05	4.94	4.65
<i>m</i> _{μ_L} (μ _B /f.u)					0.07	0.08
<i>m</i> _{μ_S} (μ _B /f.u)					4.87	4.57
μ ₀ H _k (mT)	36 ± 0.5	34 ± 0.5	42 ± 0.5	45 ± 0.5		
γ (GHz/T)	28.7 ± 0.1	28.7 ± 0.1	28.8 ± 0.1	28.9 ± 0.1	28.39	28.48
α (* 10 ⁻³)	1.7 ± 0.1	2.7 ± 0.1	5.3 ± 0.1	6.7 ± 0.1	0.19	0.8

Le désordre Co/Mn induit :

- La création d'états de spins minoritaires à E_F
 ⇒ diminution du moment magnétique total
 ⇒ augmentation de α à cause des transitions inter-bandes
- L'augmentation du moment orbital et diminution du moment de spin :
 ⇒ augmentation de γ car $\gamma = \frac{g^*|e|}{2m_e}$ avec $(g - 2) = 2 \frac{\mu_L}{\mu_S}$

Calcul de Ms et α avec SPR-KKR



- α_{L21} et $\alpha_{B2} \approx 10$ fois supérieur aux valeurs théoriques mais :

\Rightarrow surévalués (contribution 2 magnons) : α_{L21} réel plus probablement $< 10^{-4}$ pour échantillon référence

$\Rightarrow \alpha$ calculé à 0 K \Rightarrow valeur à 300 K $\approx 7 \cdot 10^{-4}$ (Phys. Rev. B 93, 214439, 2016) : accord entre expérience et calcul !

- Effet du désordre D0_3 sous estimé pour Ms et α

\Rightarrow analyse imprécise du désordre? influence des défauts ponctuels ?

\Rightarrow Méthode de calcul (potentiel d'interaction atomique) de la DOS et de α à revoir ?

Conclusion

- La compréhension des propriétés magnétiques du Co_2MnSi ne peut s'effectuer sans une analyse précise du désordre chimique (valable pour les autres alliages)
- α dans les phases L21 et B2 probablement en bon accord avec les calculs qui incluent la T°
- Vrai α à 300K plutôt $\approx 7 \cdot 10^{-4}$: *reste très intéressant pour la spintronique et magnonique!*

Enjeu technologique :

- Confirmation expérimentale que le désordre D0_3 modifie de manière drastique les propriétés magnétiques du Co_2MnSi , même à de très faibles concentrations
- Il est très difficile de faire croître du CMS seulement dans sa phase L2_1
 - ⇒ intérêt pour la phase B2
 - ⇒ Croit à $T^\circ < \approx 400^\circ$ et potentiellement sur des substrats de Si
 - ⇒ Peut être “guérie” à l'aide de l'irradiation ionique.

} **compatibilité CMOS!**

MERCI POUR VOTRE ATTENTION !

..... Et à tous ceux qui ont participé à ce projet :

- **CEMES (Toulouse):** Iman Abdallah, Gérard BenAssayag, Béatrice Pécassou, Robin Cours, Nicolas Ratel, Barthélémy Pradines, Lionel Calmels, Etienne Snoeck
- **LAAS (Toulouse):** Alexandre Arnoult
- **TALEM (Saragosse-Espagne):** César Magen