

Elaboration de jonctions tunnel magnétiques et de jonctions métal/oxyde/semi-conducteur pour l'étude du transport et de la précession de spin d'électrons chauds

Julien Bernos

▶ **To cite this version:**

Julien Bernos. Elaboration de jonctions tunnel magnétiques et de jonctions métal/oxyde/semi-conducteur pour l'étude du transport et de la précession de spin d'électrons chauds. Autre. Université Henri Poincaré - Nancy 1, 2010. Français. NNT : 2010NAN10080 . tel-01746368

HAL Id: tel-01746368
https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01746368

Submitted on 29 Mar 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4
Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10
http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php
http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm

Nancy-Université

École doctorale EMMA
U.F.R. Sciences et Technologies

Élaboration de jonctions tunnel magnétiques et de jonctions métal/oxyde/semi-conducteur pour l'étude du transport et de la précession du spin d'électrons chauds.

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 20 octobre 2010

pour l'obtention du

Doctorat de l'université Henri Poincaré – Nancy 1

(spécialité Physique)

par

Julien Bernos

Composition du jury

Président :	Michel Piécuch	Professeur, IJL, Université Henri Poincaré - Nancy 1
Rapporteurs :	Aziz Dinia	Professeur, IPCMS, Université de Strasbourg
	Wolfgang Weber	Professeur, IPCMS, Université de Strasbourg
Examinateurs :	Jacques Peretti	CR CNRS, LPMC, École Polytechnique
	Daniel Lacour	CR CNRS, IJL, Université Henri Poincaré - Nancy 1
Directeur de thèse :	Michel Hehn	Professeur, IJL, Université Henri Poincaré - Nancy 1

Institut Jean Lamour – CNRS UMR 7198 – Nancy-Université – UPV-Metz

Mis en page avec la classe thloria.

Table des matières

Partie I Introduction **5**

1 Contexte et enjeux du projet **7**

1.1 Une brève histoire des magnétorésistances 7

1.2 Précession du spin 9

1.2.1 Définition et contexte 9

1.3 Transistors à électrons chauds 13

1.3.1 Qu'est-ce qu'un électron chaud ? 13

1.3.2 Transistors à électrons chauds 13

1.3.3 Dispositifs à électrons chauds polarisés en spin 15

1.4 Magnétorésistance tunnel : modèles théoriques 19

1.4.1 Anatomie d'une jonction tunnel magnétique 19

1.4.2 Effet tunnel 20

1.4.3 Modèle de Jullière 23

1.4.4 Modèle de Slonczewski 24

1.4.5 Modèle de Butler 25

1.5 Organisation de la thèse 30

Partie II Étude de la précession du spin dans des doubles jonctions tunnel magnétiques **33**

2 Doubles jonctions tunnel magnétiques à barrières d'alumine **35**

2.1 Introduction 35

2.1.1 Objectifs et motivations 35

2.1.2 Description théorique de la précession 35

2.2 Élaboration des structures à barrières d'alumine 41
2.2.1 Bilan des résultats antérieurs 41
2.2.2 Premières mesures de transport 44
2.2.3 Structures optimisées à base de Co intermédiaire 46
2.2.4 Premières conclusions 48
2.3 Mesures de magnéto-transport à basse température 48
2.4 Conclusion 50

Partie III Élaboration de multicouches magnétiques pour l'étude du transport et de la précession d'électrons chauds 53

3 Étude du transport tunnel dans des jonctions CoFeB/MgO/CoFeB 55
3.1 Introduction et motivations de l'étude 55
3.2 Jonctions tunnel magnétiques CoFeB/MgO/CoFeB 59
3.2.1 Élaboration et caractéristiques 59
3.2.2 Propriétés de transport à basse température 62
3.3 L'anomalie de conductance à tension nulle (ZBA) 65
3.4 Origines de la ZBA dans nos jonctions tunnel magnétiques 67
3.4.1 Spectres de conductances tunnel (IETS) 68
3.4.2 Défauts dans la barrière, défauts de volume 69
3.4.3 Défauts d'interface 73
3.5 Transition métal-isolant dans les jonctions tunnel 76
3.5.1 Modèle de McMillan 76
3.5.2 Discussion des résultats 78
3.6 Conclusion 80
3.6.1 Bilan et perspectives 80
3.6.2 Quelques mots sur la ZBA dans la configuration anti-parallèle . . . 81

4 Jonctions tunnel à anisotropie magnétique perpendiculaire 83
4.1 Introduction 83
4.2 Propriétés magnétiques des couches minces de Co_xTb_{1-x} 86
4.3 Jonctions tunnel magnétiques à anisotropies perpendiculaires au plan . . . 88
4.3.1 Conditions d'élaboration 88
4.3.2 Propriétés magnétiques des électrodes 90

4.3.3 Propriétés des jonctions tunnel magnétiques 92
4.3.4 Oxydation de la couche de Co_xTb_{1-x} 101
4.4 Jonctions tunnel magnétiques à anisotropies croisées 103
4.4.1 Élaboration et caractéristiques 103
4.4.2 Propriétés de magnéto-transport 105
4.5 Conclusion 106

5 Élaboration de multicouches ferromagnétiques sur une jonction métal / oxyde / semi-conducteur 109

5.1 Introduction 109
5.1.1 Objectifs du chapitre 109
5.1.2 Plan de travail 111
5.2 Propriétés du substrat semi-conducteur 112
5.3 Jonctions MOS à barrière d'Al_2O_3 112
5.3.1 Caractéristiques des échantillons 112
5.3.2 Contrôle de la rugosité d'empilements oxyde/semi-conducteur . . . 114
5.3.3 Propriétés magnétiques 117
5.3.4 Influence de l'insertion d'une couche de tantale 119
5.3.5 Propriétés électriques 124
5.3.6 Bilan 125
5.4 Jonctions MOS à barrière de MgO 126
5.4.1 Caractéristiques et élaboration des échantillons 126
5.4.2 Propriétés magnétiques 130
5.4.3 Propriétés électriques 135
5.5 Transmission d'électrons chauds 136
5.5.1 Dispositif expérimental 136
5.5.2 Mesures sur un filtre à spin 137
5.5.3 Mesures sur une vanne de spin 140
5.6 Conclusion 141

Conclusion et perspectives **143**

Annexes **149**

A Élaboration des échantillons **151**

A.1 Épitaxie par jets moléculaires 152

A.2 Pulvérisation cathodique 152

A.2.1 Principe de fonctionnement 152

A.2.2 Système de pulvérisation utilisé 153

A.2.3 Conditions de dépôt des JTM 154

B Procédé de structuration **155**

Bibliographie **159**

Première partie

Introduction

Chapitre 1

Contexte et enjeux du projet

1.1 Une brève histoire des magnétorésistances

Cette histoire commence par la découverte du spin de l'électron par Otto Stern et Walther Gerlach en 1922 [1]. Dans leur désormais célèbre expérience, ils mirent en évidence que l'électron possède une propriété physique intrinsèque autre que la charge électrique : le *spin*. D'origine purement quantique, on l'assimile à un moment magnétique intrinsèque. En effet, tout se passe comme si chaque électron portait un moment magnétique que l'on peut manipuler en le soumettant, par exemple, à un champ magnétique externe. Cette découverte aura d'importantes conséquences en physique, notamment pour la compréhension du magnétisme et des phénomènes associés.

Du côté des applications pratiques, les décennies qui suivirent furent très prolifiques pour la physique des solides. Le spin fut toutefois quelque peu laissé à l'écart de ce développement, ainsi que de celui de l'électronique dans les années 60 et 70. Il fallut attendre 1988, avec la découverte de la magnétorésistance géante (ou GMR, abréviation de *giant magnetoresistance*) pour que la communauté scientifique prenne conscience des potentialités offertes par le spin de l'électron. On doit ces observations aux équipes d'Albert Fert (Laboratoire Thomson-CSF, France) [2] et de Peter Grünberg (Université de Jülich, en Allemagne) [3], qui ont toutes deux, indépendamment, mis en évidence une très forte dépendance de la résistance électrique en fonction d'un champ magnétique dans un système de multicouches minces Fe/Cr (voir figure 1.1).

Notons que des effets magnétorésistifs avaient été observés dès 1975 par Michel Jullière [4], à température de l'hélium liquide, dans des systèmes où la couche de Cr était remplacée par une couche isolante de GeO. Dans ce type de structure, les électrons passent d'une couche ferromagnétique à l'autre par effet tunnel dépendant du spin au travers de la couche isolante.

Ces travaux sont longtemps restés au stade de recherche fondamentale. C'est tout le contraire de la GMR, qui a d'ailleurs valu à ses découvreurs le prix Nobel de Physique en 2007, dont des applications industrielles en furent tirées au bout de quelques années seulement, particulièrement dans le domaine du stockage magnétique de données. En particulier, les systèmes exhibant des effets magnétorésistifs ont permis la réalisation de capteurs de champ magnétiques

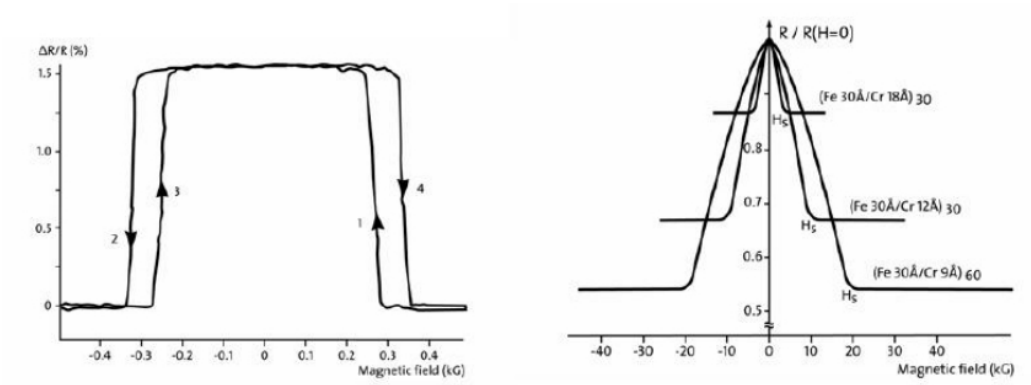


FIG. *1.1 – Premières observations de la magnétorésistance géante. A gauche, courbe de P. Grünberg et collaborateurs ; à droite, courbe obtenue par A. Fert et collaborateurs, montrant la magnétorésistance en fonction du champ magnétique, pour différentes épaisseurs de Cr. Courbes issues de [3] et [2].*

de taille très réduite, qui ont trouvé leur place dans les têtes de lecture des disques durs. Ces découvertes, couplées aux progrès effectués sur les matériaux magnétiques, ont permis une augmentation considérable des capacités de stockage offertes par les disques durs.

Du côté des laboratoires, les travaux ont permis de découvrir de nouveaux effets, voire de perfectionner et de mieux comprendre ceux déjà connus. C'est le cas de la magnétorésistance colossale dans les pérovskites [5], mais aussi et surtout de la magnétorésistance tunnel (TMR). Elle fut observée pour la première fois à température ambiante en 1995 [6], ce qui lui vaudra de connaître à son tour un développement plus dynamique. S'ensuivit une « course à la TMR », qui a permis d'obtenir des performances sans cesse améliorées : la figure 1.2 illustre l'évolution de la magnétorésistance tunnel obtenue, en fonction du temps. On ne peut que constater l'écart de performances entre, d'un côté les JTM de première génération, utilisant des barrières amorphes d'oxyde d'aluminium, et de l'autre les JTM plus récentes, faisant appel à l'oxyde de magnésium polycristallin ou épitaxié.

Les progrès croissants de l'électronique de spin ont fait naître beaucoup d'espoirs autour des mémoires magnétiques à accès aléatoire (MRAM). Ces mémoires, d'un genre nouveau, et basées du fait de leurs avantages (non-volatilité, densité de stockage d'information élevée, faible consommation d'énergie…) [8].

Ces mémoires sont constituées d'éléments magnétorésistifs, qui sont généralement des JTM, en raison de leurs valeurs de TMR élevées. L'information est encodée par l'état magnétique de la jonction. Dans les premières générations de MRAM, le processus d'écriture (en l'occurence le retournement de la couche libre de la jonction ou de la vanne de spin) nécessitait l'obtention d'un champ magnétique, généré par une impulsion de courant. Un tel procédé n'était pas sans inconvénients sur le plan technique ; en particulier, il limitait la densité de stockage de l'information offerte par ces mémoires.

La découverte du transfert de spin (*spin transfer switching*) [9], où un courant polarisé en spin traversant une couche magnétique peut induire un retournement de l'aimantation de celle-

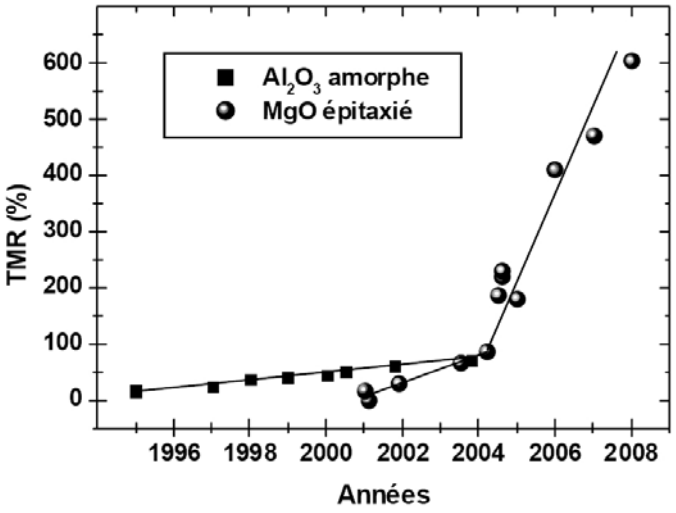


FIG. *1.2 – Evolution, au cours du temps, de la magnétorésistance tunnel rapportée par différents laboratoires de par le monde. Extrait de [7].*

ci, a permis d'envisager une nouvelle génération de MRAM. Ces dernières permettent fonctionnement tout-électrique, ne nécessitant plus de champ magnétique externe. L'état magnétique des jonctions peut ainsi être modifié grâce au transfert de spin, par application d'une impulsion de courant. C'est dans cette voie que s'orientent les recherches contemporaines sur le sujet. Même si, avec le recul, de nombreux analystes doutent aujourd'hui que la MRAM s'impose un jour en tant que mémoire universelle, elle paraît néanmoins promise à un bel avenir pour de nombreux marchés de niche.

Ainsi, plus de 20 ans après les premières découvertes, l'électronique de spin n'a toujours pas perdu de son importance ; au contraire, des recherches se poursuivent sur des sujets exploratoires comme la spintronique moléculaire, le contrôle en courant du moment magnétique d'un objet unique, avec à la clé des applications prometteuses dans le domaine des capteurs, des mémoires informatiques, des oscillateurs haute fréquence ou encore de la biomédecine. Le contrôle du spin des électrons apparaît donc comme un enjeu important.

Dans les sections qui suivent, nous résumerons le contexte dans lequel s'inscrivent ces travaux. Après une présentation du sujet et de l'approche choisie, nous donnerons quelques rappels théoriques sur le transport tunnel polarisé en spin dans les jonctions tunnel magnétiques.

1.2 Précession du spin

1.2.1 Définition et contexte

Pour commencer, on rappelle brièvement ce qu'est la précession. Un mouvement dit de précession est le changement de direction que subit l'axe de rotation d'un objet en mouvement. En mécanique, ce comportement peut être observé sur une toupie ou un gyroscope en rotation.

Dans le cas d'un magnétisme, il existe un phénomène analogue : lorsqu'un moment magnétique, comme le spin d'un électron, est soumis à un champ magnétique B, il va s'exercer sur ce moment un couple, Γ, qui van induire un mouvement de précession. Ce phénomène est dénommé la précession de Larmor. L'expression du couple Γ sur le moment μ, s'exprime de la façon suivante :

$$\Gamma = \mu \times B = \gamma J \times B$$

où $\gamma = -\frac{eg}{2m_0}$ est le facteur gyromagnétique, et J le moment angulaire.

La fréquence à laquelle s'effectue la précession est la fréquence de Larmor ; elle vaut $\omega = -\gamma B$.

Contexte et travaux sur la précession

Le vif développement qu'a connu l'électronique de spin au cours des deux dernières décennies est allé de pair avec des travaux plus fondamentaux. Leur but est d'obtenir une meilleure compréhension des phénomènes fondamentaux qui interviennent dans le transport électronique polarisé en spin. Un intérêt important est porté à la manipulation du spin électronique, en particulier au phénomène de précession.

Les premiers travaux s'intéressant à la précession du spin d'électrons remontent à 1990, avec le transistor à précession de spin de Datta et Das [10]. Ces derniers ont proposé un dispositif analogue aux modulateurs électro-optiques utilisés en optique (voir la figure 1.3). Ce transistor serait constitué de trois éléments : un polariseur, la couche active (dans laquelle a lieu la précession des électrons injectés), et un analyseur (collecte et analyse des électrons).

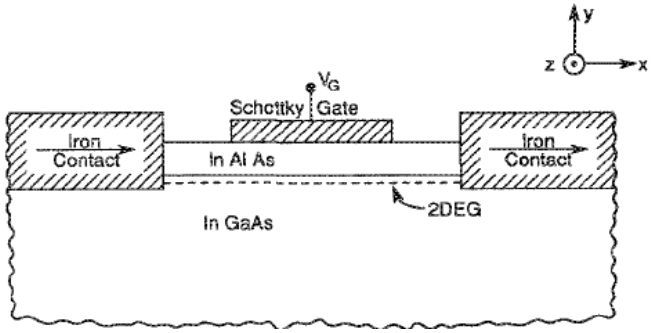


FIG. *1.3 – Schéma de principe du transistor à précession de spin, proposé par Datta et Das. Les deux électrodes ferromagnétiques (contacts en Fe) sont reliées par un canal semi-conducteur InAlAs. Une électrode, dite de grille, permet d'appliquer un champ électrique pour contrôler la précession. Extrait de [10].*

Dans l'implémentation proposée, les électrons sont polarisés par une électrode constituée d'un métal ferromagnétique, puis sont injectés dans un canal semi-conducteur. L'application d'un potentiel de grille (V_G sur la figure) permet d'induire la précession cohérente du spin des

porteurs de charge. Ces électrons sont ensuite collectés dans l'électrode située à l'autre extrémité du canal semi-conducteur. Elle aussi constituée d'un métal ferromagnétique, elle joue le rôle d'analyseur, en permettant d'assurer une sélectivité en spin des électrons collectés.

Parmi les réalisations concrètes, on retiendra surtout les travaux du groupe d'Awschalom, qui s'est intéressé à la précession dans des nanostructures de matériau semi-conducteur [11]. Toujours avec un matériau semi-conducteur, le groupe d'Appelbaum de son côté proposé un dispositif tout solide, permettant de contrôler électriquement la précession d'électrons injectés dans du silicium cristallin [12].

Ces travaux se sont limités à la précession du spin des électrons dans un matériau semi-conducteur. Une autre possibilité est d'utiliser une couche active métallique. C'est par exemple le cas de Jedema, qui s'est intéressé à la précession dans une couche d'aluminium [13]. Il a proposé un dispositif à base de vannes de spin, qui lui permet d'assurer un contrôle tout électrique. Le transport des électrons dans la couche d'aluminium a lieu latéralement, dans le régime diffusif.

Ici, la précession a lieu sous l'action d'un champ magnétique externe, qui est appliqué perpendiculairement à la couche. Les électrons sont polarisés par une première électrode ferromagnétique. La détection se fait au niveau de la seconde électrode magnétique, qui filtre les électrons suivant leur direction de polarisation par rapport à sa direction d'aimantation. La tension mesurée en sortie du dispositif (entre la base métallique et la seconde électrode de cobalt) permet de quantifier l'angle de précession du spin des électrons.

Précession dans une couche mince ferromagnétique

Une approche complémentaire à ces travaux est de s'intéresser à la précession dans une couche mince métallique ferromagnétique. Cela présente plusieurs avantages.

D'une part, on peut utiliser le champ d'échange (ou champ moléculaire) qui règne dans le ferromagnétique pour induire la précession du spin des électrons injectés. Ce champ d'échange possède des valeurs généralement importantes, de l'ordre de plusieurs dizaines de Tesla, valeurs qu'il serait difficile d'atteindre en laboratoire si l'on utilisait un champ extérieur (électroaimant, ...). On disposerait ainsi d'un moyen d'obtenir de grands angles de précession, et ce même avec des couches minces de seulement quelques nanomètres d'épaisseur. Un inconvénient est que l'effet de filtrage (polarisation des électrons suivant l'aimantation du matériau) peut se surajouter à l'effet de précession, ce qui complique sa détection.

D'autre part, ces travaux permettraient une meilleure compréhenion des interactions entre le champ d'échange du matériau et la polarisation du spin des électrons itinérants. Ces études peuvent être mises en regard avec des études contemporaines sur l'effet du transfert de spin (*spin-transfer torque*). Le transfert de spin correspond à une excitation de l'aimantation d'une couche mince magnétique à l'aide d'un courant d'électrons polarisés en spin, par transfert du moment cinétique des électrons vers l'aimantation du matériau. Cette excitation peut, dans certaines conditions, conduire au renversement de l'aimantation sans avoir à appliquer de champ magnétique : c'est le *spin-torque switching*. Comme on l'a évoqué en introduction, cet effet est aujourd'hui intensivement étudié pour les applications de type MRAM. Il permet d'offrir un

moyen tout-électrique de changer l'état magnétique d'une JTM ou d'une vanne de spin (donc de modifier l'état d'une cellule mémoire basée sur ces dispositifs) sans avoir recours à un champ magnétique extérieur.

Pour mieux comprendre ce phénomène, il est nécessaire d'analyser ce transfert du moment angulaire entre les électrons et l'aimantation. La grande majorité des études menées jusqu'ici se sont uniquement intéressées à l'effet d'un fort courant d'électrons polarisés en spin sur l'aimantation de couches magnétiques. Cependant, la conservation du moment cinétique total implique que le couple exercé par les électrons incidents sur les électrons responsables de l'aimantation soit exactement opposé à celui exercé par ces électrons responsables de l'aimantation sur les électrons incidents. L'étude proposée dans cette thèse permettrait peut-être une meilleure compréhension théorique de certains aspects des mécanismes de transfert de spin, grâce à l'étude des interactions entre l'aimantation et les électrons incidents polarisés.

De tels travaux ont été initiés par le groupe de Weber. Les premières études portaient sur l'injection au travers d'une couche magnétique (couche Au / Co / Au auto-suspendue dans une enceinte sous ultra-vide) d'un faisceau d'électrons polarisés, émis par une photocathode de GaAs. Les résultats (voir figure 1.4) ont montré que les électrons qui traversaient la couche avaient subi un mouvement de précession, autour de la direction d'aimantation de la couche magnétique [14] [15].

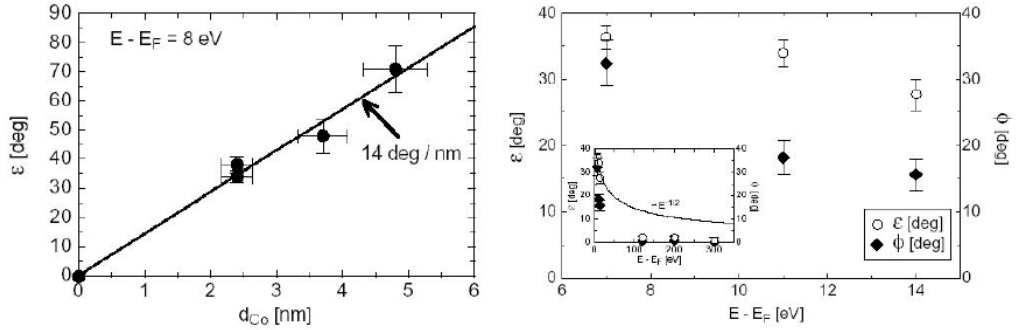


FIG. *1.4 – A gauche : angle de précession en fonction de l'épaisseur de la couche de cobalt. A droite, angles de précession (ϵ) et de filtrage (ϕ) en fonction de l'énergie d'injection par rapport au niveau de Fermi E_F. Documents extraits de [15].*

Ce résultat concerne les électrons transmis. D'autres études se sont, par la suite, intéressées aux électrons réfléchis sur le film. En injectant les électrons avec un certain angle d'incidence, et en plaçant les détecteurs de sorte à collecter les électrons réfléchis, il a pu être montré qu'ils subissent également un mouvement de précession [16].

Une limitation de ces expériences est que l'on n'a pas accès au comportement à basse énergie ($E - E_F$ < 5 eV), à cause du travail de sortie du métal. Un moyen de contourner cette limitation est d'intégrer les étapes d'injection et de collecte des électrons chauds au sein d'un dispositif dit tout solide, sur le modèle des transistors à électrons chauds.

1.3 Transistors à électrons chauds

1.3.1 Qu'est-ce qu'un électron chaud ?

Précisons rapidement ce que l'on entend par électron chaud. Dans un métal, la conduction est principalement assurée par les électrons qui ont une énergie au niveau de Fermi. Il y a cependant des électrons d'énergie bien supérieure au niveau de Fermi qui participent au transport : ce sont les électrons chauds. Ils portent ce nom par analogie avec le fait que l'élévation de la température conduit à une population des niveaux de haute énergie. Dans ce cas, ce sont les collisions au gré de leur parcours dans un conducteur qui sont responsables de leur thermalisation, et donc d'occuper des états d'énergie plus faible que leur énergie initiale. Ce n'est pas le cas des électrons au niveau de Fermi, pour lesquels il n'y a pas d'états disponibles à des énergies plus faibles. Malgré cette différence, on peut modéliser le transport des électrons chauds avec les mêmes équations que pour les électrons de conduction au niveau de Fermi.

1.3.2 Transistors à électrons chauds

Naissance du concept

L'idée d'utiliser le transport d'électrons chauds remonte aux années 1960 avec les travaux pionniers de Mead [17]. Le but est d'étudier le transport d'électrons dans le régime balistique. Pour ce faire, il proposa une structure à trois entrées (triode), qu'il nomma transistor à électrons chauds, du fait de la similarité apparente avec le fonctionnement des transistors bipolaires.

Cette structure est constituée de trois éléments : la base, l'émetteur et le collecteur. La base est la couche métallique intermédiaire, dans laquelle a lieu le transport balistique. Les deux autres électrodes (émetteur et collecteur) servent à injecter les électrons à une énergie donnée et à collecter le courant d'électrons chauds.

L'injection peut être réalisée avec une barrière isolante, que peuvent traverser les électrons par effet tunnel. En polarisant la jonction tunnel avec une tension V, les électrons qui traversent la barrière sont alors injectés dans la seconde électrode avec une énergie moyenne $E_0 = qV + E_F$.

Lors de leur transport dans la base, une partie du courant d'électrons chauds va subir des collisions, et donc se thermaliser. Du courant injecté initialement (et idéalement mono-énergétique, ce qui n'est pas rigoureusement le cas en réalité), il ne restera qu'un courant ayant une forte distribution en énergie. La fraction du courant d'électrons balistiques dépend exponentiellement du libre parcours moyen des électrons dans la base. Pour récupérer cette fraction du courant d'énergie E_0, il est nécessaire d'imposer une sélectivité en énergie du courant au niveau du collecteur. Cela est ici réalisé avec une barrière isolante, dont la hauteur de potentiel dépend du matériau utilisé. Seuls les électrons ayant conservé leur énergie sont en mesure de la franchir.

Premières réalisations expérimentales

Expérimentalement, les premières structures construites ont été des jonctions tunnel métal / isolant / métal / isolant / métal (abbréviées MOMOM dans la littérature), dans lesquelles le

courant est injecté et collecté par effet tunnel. La jonction émettrice (de même que pour le collecteur) étaient des jonctions tunnel à barrière d'oxyde d'aluminium (Al / Al_2O_3 / Al), voire du vide (dans ce cas la source est une photocathode extérieure à l'échantillon).

Les résultats expérimentaux furent peu concluants [17], pour plusieurs raisons. D'abord, la longueur de cohérence des électrons chauds se révéla très courte, plus courte qu'initialement anticipé. Pour éviter que le transport ne soit entièrement en régime diffusif, il aurait fallu fabriquer des couches très fines, de quelques nanomètres d'épaisseur seulement. A cela s'ajoutent de nombreuses défauts de structure dans les couches. A cette époque, les moyens expérimentaux de synthèse et d'élaboration des couches minces n'étaient pas aussi perfectionnés qu'ils le sont de nos jours. Un autre problème est la faible efficacité du collecteur à base de jonctions tunnel, à cause de problèmes de diffusion des électrons dans la couche d'oxyde [18].

Rapidement, des modifications seront apportées à cette structure. Spratt [18] proposa par exemple de remplacer la jonction tunnel du collecteur par une jonction Schottky (jonction métal/semiconducteur). Cela permit de limiter les phénomènes de diffusion dans l'oxyde, et ainsi augmenter le gain en courant. D'autres, comme Rose, Attala et Khang [19] ont proposé un autre moyen d'injecter les électrons. Ils proposèrent d'utiliser, en remplacement de la jonction tunnel émettrice, une jonction Schottky (jonction métal/semi-conducteur). Les électrons sont alors injectés dans la structure par émission thermo-ionique. Même si le taux de collecte est augmenté, il reste très insuffisant pour les applications envisagées.

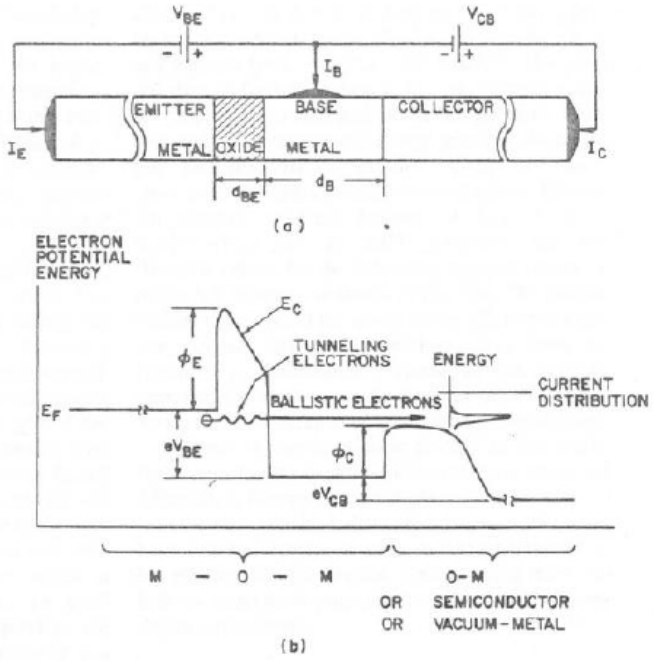


FIG. *1.5 – En haut, schéma de principe de la triode proposée par Heiblum. En bas, profil de potentiel vu par les électrons dans les différentes régions du dispositif. Extrait de [20].*

Le sujet sera remis au goût du jour quelques années plus tard parHeiblum [20]. Ce dernier

proposa une structure de type triode, inspirée des travaux de ses prédécesseurs. La figure **??** présente un schéma de principe de ce dispositif.

1.3.3 Dispositifs à électrons chauds polarisés en spin

A la suite de la découverte des magnétorésistances géante et tunnel, ces travaux sur le transport d'électrons chauds ont été remis au gout du jour, et adaptées pour exploiter la polarisation du spin. Une application potentielle souvent avancée à l'époque était l'injection d'électrons polarisés en spin dans des semi-conducteurs. Cette possibilité étant, dans les études conventionnelles, limitée par des problèmes d'adaptation d'impédance entre le métal et le semi-conducteur. L'idée était de s'affranchir de ces limitations en injectant un courant d'électrons à plus haute énergie, évitant de fait les processus de diffusion responsables de ce problème [21], mais les résultats n'ont pas été à la hauteur des espérances. Aujourd'hui, ces expériences ont une visée fondamentale, à savoir l'étude des propriétés de transport des électrons dans les régimes de transport à haute énergie.

Les dispositifs présentés ici sont directement inspirés des travaux de Mead et d'Heiblum. Ils utilisent les mêmes briques de base : des jonctions tunnel ou des barrières Schottky pour l'injection ou le filtrage en énergie des électrons chauds. La seule différence est qu'ici la polarisation et le filtrage du spin doivent entrer en ligne de compte. Deux approches concurrentes se sont affrontées, proposant d'utiliser soit une vanne de spin, soit une jonction tunnel magnétique. La seconde a toutefois l'avantage de pouvoir jouer sur les deux tableaux, spin et énergie.

Transistors magnétiques à vannes de spin

Le transistor magnétique à vanne de spin a été étudié par Monsma dans sa thèse de doctorat [22]. Il est constitué d'une vanne de spin Si / Pt / Co / Cu / Co / Si intercalée entre deux électrodes semiconductrices n-Si(100) : on retrouve l'architecture à deux barrières Schottky : l'une pour l'injection des électrons chauds dans la vanne de spin, l'autre pour la collecte et la sélection en énergie des électrons. La polarisation en spin, ainsi que la détection, sont assurées par des couches ferromagnétiques, grâce à la magnétorésistance géante. Le courant est injecté suivant une géométrie dite CPP (*current perpendicular to the plane*), perpendiculairement au plan des couches. Un résultat important est l'obtention d'un filtrage en spin des électrons traversant la base par GMR.

Transistor magnétique à effet tunnel

Une autre approche « tout-solide » est basée sur l'utilisation de jonctions tunnel mangétiques : c'est le transistor magnétique à effet tunnel (*magnetic tunnel transistor*, ou MTT). Contrairement à l'exemple à vanne de spin vu ci-dessus, la polarisation en spin est assurée par une jonction tunnel, qui permet également d'injecter les électrons chauds dans la base à une énergie au-dessus du niveau de Fermi. Cette énergie est contrôlable par la différence de potentiel entre la base et l'émetteur (tension V_{E_B}). Les électrons transitent ensuite jusqu'au collecteur, constitué par une barrière Schottky. Celle-ci filtre les électrons qui se sont thermalisés lors du

transport dans la base ; seuls ceux qui ont une énergie supérieure à la barrière de potentiel sont collectés.

Ce système a d'abord été proposé par le groupe de Mizushima [23], puis repris quelques années plus tard par van Dijken et Parkin [24]. La figure 1.6 en schématise le principe de fonctionnement.

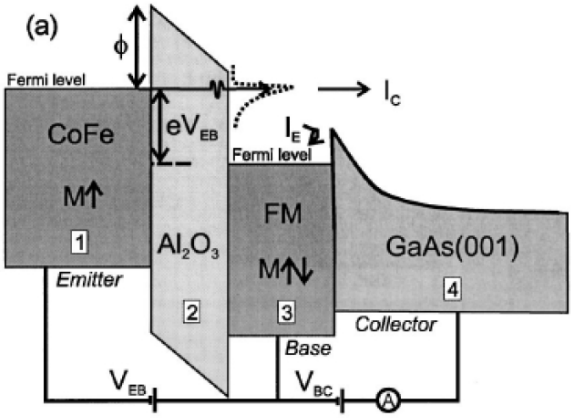


FIG. *1.6 – Schéma de principe et profil de potentiel du dispositif expérimental. L'électrode de CoFe est ici la couche dure ; permet d'injecter les électrons polarisés en spin dans la base ferromagnétique (FM). Lors de leur transport dans celle-ci, les électrons chauds peuvent se thermaliser, et se dépolariser. Ils sont ensuite collectés par la jonction Schottky, qui filtre ceux qui se sont thermalisés pendant le transport.*

Ici, la sélectivité en spin est assurée par la nature ferromagnétique de la base. Les électrons sont filtrés en spin, du fait que les processus de diffusion dans le ferromagnétique dépendent du spin. Il s'ensuit donc une dépendance du courant collecté en fonction de l'orientation de l'aimantation de la seconde électrode magnétique, ce que les auteurs de l'étude observent expérimentalement : ils relèvent une variation significative (64 %) du magnéto-courant collecté selon la configuration magnétique.

Une variante du MTT est le transistor à double jonctions tunnel, introduit par les travaux de thèse de Rodary et de Lacour (figure 1.7). On pourra trouver une bonne description du système, ainsi que les premiers résultats, dans leurs thèses respectives [25] [26].

Enfin, Nagahama et coauteurs [27] ont récemment présenté des résultats sur un MTT entièrement épitaxié, composé d'un émetteur Fe(001)/MgO(001), d'une base Fe(001) et d'un collecteur à base de n-GaAs(001). Ils obtiennent un taux de transfert d'électrons chauds ainsi qu'un magnéto-courant tous deux supérieurs à ceux observés dans les MTT réalisés par pulvérisation cathodique. Ils attribuent ces résultats à la meilleure qualité cristalline de l'empilement, ainsi qu'au transport tunnel cohérent des électrons dans la structure. Ceci confirme que pour conserver un tunnel d'électrons chauds, et donc obtenir de plus grandes longueurs de cohérence, il peut être souhaitable de se tourner vers des empilements épitaxiés.

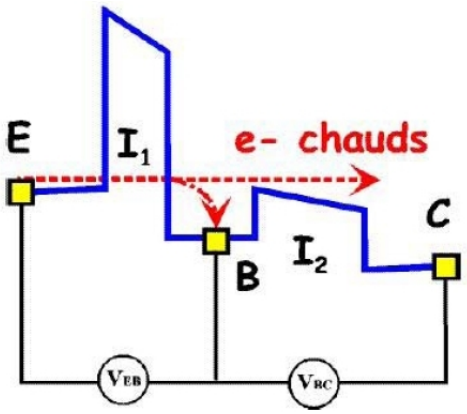


FIG. *1.7 – Schéma de principe du transistor magnétique à électrons chauds à double JTM. Les trois électrodes permettent de contrôler les deux jonctions indépendamment, par le biais des tensions V_{E_B} et V_{B_C}. Le courant d'électrons chauds (flèche rouge) qui a franchi la seconde barrière sans se thermaliser est collecté par la seconde jonction (courant I_2). Extrait de [25].*

Solution originale : le tout-solide

L'objet de cette étude est la précession du spin des électrons injectés dans une couche mince ferromagnétique. L'approche retenue ici consiste à prolonger les travaux initiés par Weber (mentionnés plus haut), en proposant une structure inspirée des transisitors à électrons chauds dont on vient d'avoir un aperçu. Cette approche, basée sur une idée de Hehn [28], permettra de lever les limitations rencontrées par Weber et coauteurs, et d'aller plus loin dans l'étude de la précession.

Le travail consiste donc en premier lieu à élaborer une structure solide, qui incorpore les fonctions nécessaire à l'observation de la précession :

- la couche active, constituée d'une couche mince de métal ferromagnétique, dans laquelle aura lieu la précession,
- un moyen d'injecter des électrons polarisés en spin dans la couche active,
- un moyen de collecter les électrons après leur passage dans la couche active, et de mesurer l'angle duquel ils ont précessé.

La précession doit être induite et contrôlée uniquement à partir de l'aimantation des couches ferromagnétique, sans avoir recours à un champ extérieur. Pour cela, nous proposons de synthétiser des dispositifs dont les anisotropies magnétiques des couches magnétiques (leur direction d'aimantation rémanente) ne sont pas colinéaires. Cette approche était originale lorsque ce travail a débuté, car, à quelques exceptions près, la plupart des recherches menées jusqu'alors (tant dans le domaine de la GMR que de la TMR) portaient sur des dispositifs à anisotropies coplanaires (c'est-à-dire que les anisotropies des deux couches sont toutes deux alignées soit dans le plan, soit hors du plan de l'échantillon). Entre temps, des travaux, comme ceux de [29], se sont intéressés à des dispositifs à anisotropies croisées. Nous avons donc décidé de restreindre nos efforts sur l'étude de la précession du spin des électrons chauds.

Le schéma de la figure 1.8 décrit ce qui se passe lorsqu'un faisceau d'électrons polarisés

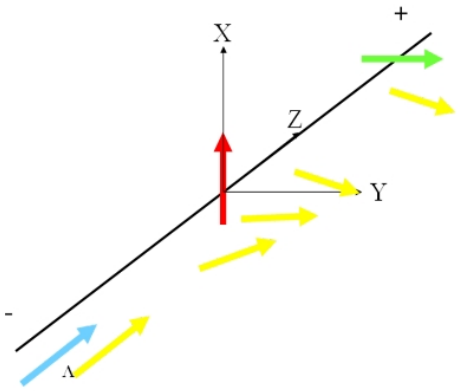


FIG. *1.8 – Schéma de principe illustrant le concept de précession du spin des électrons traversant une couche mince ferromagnétique, sous l'effet du champ d'échange. Le schéma illustre la précession subie par les électrons dans la couche magnétique intermédiaire (aimantation rouge)*

en spin (flèche bleue) est envoyé sur un film magnétique (flèche rouge) avec une polarisation perpendiculaire à l'aimantation de ce dernier. Il se produit :

- un phénomène de filtrage, qui ramèner la polarisation électronique le long de l'aimantation du film ferromagnétique,
- un phénomène de précession, qui a pour effet de faire tourner la polarisation électronique autour de l'aimantation du film ferromagnétique. C'est celui-ci que l'on cherchera à étudier.

Si l'on considère un effet de filtrage nul, la polarisation des électrons a tourné d'un angle (l'angle de précession) après que ceux-ci aient traversé la base ferromagnétique (en rouge sur la figure 1.8). Cet angle de précession peut être quantifié grâce à la couche ferromagnétique du collecteur, grâce à la mesure d'un effet magnétorésistif.

Pour réaliser expérimentalement un tel dispositif, nous avons suivi deux approches. La première consiste à réaliser directement une structure tout-solide, à base de jonctions tunnel magnétiques. Ces dernières permettent d'injecter les électrons par effet tunnel.

La seconde consiste à travailler séparément sur l'une des briques de base du dispositif, en l'occurence le collecteur. Nous étudierons la possibilité de remplacer la jonction tunnel par un empilement plus complexe, constitué d'une multicouche métal/oxyde/semi-conducteur. Une telle structure permettrait un meilleur filtrage en énergie des électrons collectés, afin d'éliminer ceux qui se sont thermalisés lors du parcours. Ce choix est justifié par le retour d'expérience des travaux menés sur les transistors à électrons chauds.

1.4 Magnétorésistance tunnel : modèles théoriques

Cette section est consacrée à une description des jonctions tunnel magnétiques, qui sont à la base du dispositif étudié. On présentera notamment, suivant une approche historique, les modèles théoriques de l'effet tunnel polarisé en spin, qui est à la base de la magnéto-résistance tunnel.

1.4.1 Anatomie d'une jonction tunnel magnétique

Dans le cadre de cette thèse, nous nous sommes intéressés principalement au cas de la magnéto-résistance tunnel ; nous allons donc brièvement décrire les structures qui permettent d'observer cet effet.

Une jonction tunnel magnétique est un structure composée d'une fine couche isolante de quelques nanomètres d'épaisseur, prise en sandwich entre deux couches métalliques magnétiques. Lorsque l'on applique une différence de potentiel aux bornes d'un tel dipôle, il apparaît un courant d'électrons, qui va s'écouler perpendiculairement au plan des couches. En effet, les électrons ont, en vertu des lois de la mécanique quantique, une probabilité non nulle de traverser la barrière isolante : c'est l'effet tunnel. Cette probabilité dépend de l'orientation relative des aimantations des électrodes magnétiques, pour des raisons que l'on verra par la suite.



FIG. *1.9 – Schéma de principe d'une jonction tunnel magnétique. Les flèches schématisent la direction et le sens de l'aimantation des électrodes magnétiques. Définition des configurations parallèle (P) et antiparallèle (AP)*

Il s'ensuit une variation de la résistance électrique du dipôle en fonction de l'orientation relative de l'aimantation de ces couches ferromagnétiques. Dans le cas général de deux aimantations coplanaires, séparées par un angle θ, la résistance s'exprime comme

$$R(\theta) \approx \left(\frac{R_P - R_{AP}}{2}\right)\cos\theta + \left(\frac{R_P + R_{AP}}{2}\right)$$

où R_P et R_{AP} sont les résistances dans les cas extrêmes où les aimantations sont parallèles et antiparallèles. Ainsi, la magnétorésistance tunnel est définie comme le contraste entre la résistance parallèle et la résistance antiparallèle, via la formule suivante :

$$\text{TMR} = \frac{R_{AP} - R_P}{R_P}$$

Les configurations magnétiques des électrodes sont contrôlées par un champ magnétique externe. Les matériaux constituant les électrodes sont judicieusement choisis, de sorte à ce qu'ils

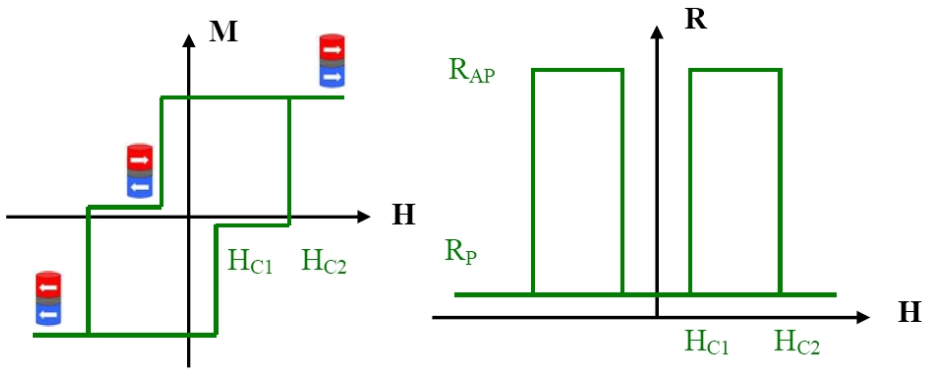


FIG. *1.10 – A gauche, un exemple de cycle d'hystérésis d'une jonction tunnel ; H_{C_1} et H_{C_2} sont les valeurs des champs coercitifs des deux couches, ici non complètement découplées. On distingue les plateaux d'aimantations parallèle et antiparallèle. A droite, courbe de résistance en fonction du champ appliqué, mettant en évidence l'effet magnéto résistif. L'augmentation de résistance correspond au changement de configuration magnétique.*

possèdent des champs coercitifs différents. On a ainsi une couche dite dure (de champ coercitif élevé, noté H_{C_2}), et d'une couche dite douce (de champ coercitif plus petit, noté H_{C_1}). La figure 2-2 illustre les retournements des aimantations des deux couches. En partant d'un état magnétique saturé en champ négatif, quand H augmente de 0 à H_{C_1}, on assiste à un basculement de l'aimantation de la couche douce, puis quand $H > H_{C_2}$, c'est au tour de la couche dure de se retourner. On suppose ici que le retournement de l'aimantation se fait de manière homogène, ce qui n'est pas toujours le cas en pratique.

Les moyens et procédés utilisés pour l'élaboration et la structuration des jonctions tunnel magnétiques sont détaillés dans l'annexe A.

1.4.2 Effet tunnel

Effet tunnel : considérations de base

D'après la mécanique quantique, un faisceau d'électrons (dont on ne se préoccupe pour l'instant pas du spin) a une probabilité non nulle de traverser une barrière de potentiel avec une énergie inférieure à la hauteur de la barrière, situation interdite dans la description classique. La résolution mathématique de ce problème est bien connue en modélisant le problème comme schématisé sur la figure 1.11 : à une dimension, une barrière de potentiel rectangulaire de largeur d selon la direction z et de hauteur U_0 est placée sur le parcours des électrons de masse m_0, d'énergie E inférieure à U_0 arrivant depuis l'infini.

Des considérations sur la forme du potentiel (indépendant de x et y) permettent de simplifier le traitement du problème, et de découpler la résolution du problème selon la direction z, la direction de propagation des électrons ; l'équation se décompose en un produit : $\psi(x, y, z) = e^{i(k_x x + k_y y)}\psi(z)$, et se ramène alors à une équation de Schrödinger à une dimension dans la

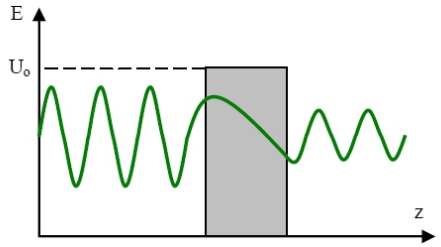


FIG. *1.11 – Représentation schématique de l'effet tunnel : barrière de potentiel et fonctions d'onde électroniques incidente et transmise.*

barrière :

$$-\frac{\hbar^2}{2m_0}\frac{\partial\phi(z)}{\partial z^2} + U_0\phi(z) = E_z\phi(z)$$

Les niveaux d'énergie peuvent alors s'écrire sous la forme

$$E = E_x + E_y + E_z = \frac{\hbar^2(k_x^2 + k_y^2)}{2m_0} + E_z$$

Et la résolution de l'équation de Schrödinger à une dimension permet de calculer, en fonction des paramètres du problème, le coefficient de transmission des électrons au travers de la barrière :

$$T = \frac{kk'}{(k^2+k'^2)^2}e^{-2dk'} = 16\frac{E(U_0-E)}{U_0^2}e^{-2d\frac{\sqrt{2m_0(U_0-E)}}{\hbar}}$$

On retiendra surtout sa décroissance exponentielle avec l'épaisseur d de la barrière, mais aussi avec la différence d'énergie $U_0 - E$.

Effet tunnel : modèles plus complets

L'essor de la physique des solides a permis à l'effet tunnel de trouver un certain nombre d'applications, parmi lesquelles on peut citer les diodes résonantes tunnel, l'effet Josephson, le microscope à effet tunnel, la mesure de polarisation en spin de matériaux…

Un important effort a été réalisé afin d'améliorer sa modélisation dans des cas de figure plus complexes. Parmi ces travaux, on peut par exemple citer ceux de Fowler-Nordheim pour la modélisation de barrières non plus rectangulaires mais trapézoïdales, ou triangulaires. Le lecteur intéressé par ces détails pourra consulter avec profit la synthèse réalisée par Wolf [30].

Un pas en avant dans la description fut réalisé avec l'approche de Bardeen [31], sur laquelle se baseront ensuite les autres modèles. Ce dernier reprend l'approche suivie par Oppenheimer dans ses calculs sur l'atome d'hydrogène ; suivant un traitement analogue à la règle d'or de Fermi, il décrit l'effet tunnel d'un électron comme une perturbation entre deux électrodes indépendantes (nommées ici 1 et 2)

$$j(E,V) \approx |M_{1\to2}|^2 \rho_1(E-eV)\rho_2(E)\left(f(E_eV) - f(E)\right)$$

où ρ_1 et ρ_2 sont les densités d'états des électrodes 1 et 2 ; $f(E)$ est la distribution de Fermi-Dirac gouvernant la distribution en énergie des électrons dans chacune de ces électrodes. $M_{1\to2}$ est la matrice de transition. En intégrant et en se plaçant à température nulle, on trouve une conductance directement proportionnelle à la densité d'états au niveau de Fermi des deux électrodes : $G(E) \propto |M_{1\to2}|^2 \rho_1(E_F)\rho_2(E_F)$.

Ce formalisme n'étant valable qu'à température nulle, des corrections seront proposées pour considérer des cas plus réalistes à température T quelconque. On retiendra par exemple l'approche de Stratton [32], qui, supposant que la conduction résulte du seul effet tunnel direct, intègre l'influence de la température au travers du peuplement des états d'énergie situés à k_BT au dessus du niveau de Fermi, suivant une statistique de Fermi-Dirac. Il trouve une correction à la densité de courant tunnel :

$$J(T,V) = J_{T=0}(V)\left[1 + \frac{(\pi k_B p(V) T)^2}{6}\right]^2$$

où p(V) est un polynôme du second ordre en V, et k_B est la constante de Boltzmann. Cette correction permet d'estimer un écart de la conductance de quelques pourcents dans des jonctions $Al/Al_2O_3/Al$ lors du passage de 0 K à température ambiante, ce qui correspond aux variations mesurées expérimentalement.

Plus tard, Brinkman et collaborateurs [33] ont, au prix de quelques approximations sur la description de la barrière, obtenu une expression analytique de la conductance tunnel en fonction de la tension de polarisation, à température nulle :

$$G(V) = G_0\left[1 - eV\frac{A_0\Delta\psi}{16\psi^{3/2}} + (eV)^2\frac{9A_0^2}{128\psi}\right]$$

où ψ, $\Delta\psi$ et d sont respectivement la hauteur moyenne, l'asymétrie et l'épaisseur de la barrière isolante, $A_0 = \frac{4d\sqrt{2m_0}}{3\hbar}$ un paramètre et $G_0 = \frac{e^2}{h^2 d}\sqrt{2m_0\psi}e^{-4\pi\frac{d}{h}\sqrt{2m_0\psi}}$ la conductance à tension nulle. Cette formule fût très prisée des expérimentateurs, car elle permet, entre autres, de retrouver les paramètres de la barrière à partir de la seule mesure de la caractéristique courant-tension I(V) de la jonction.

Bien que ces modèles ne tiennent pas compte du spin de l'électron, ils sont tout de même d'un intérêt certain, car ils ont par la suite été adaptés afin de permettre une meilleure description des effets de magnéto-résistance tunnel.

Effet tunnel magnétique

Les premières expériences mettant en évidence un effet tunnel dépendant du spin remontent au début des années 1970, avec les travaux de Tedrow et Meservey [34]. Ces derniers étudient des jonctions ferromagnétique/isolant/supraconducteur. Ici, le supraconducteur sert de sonde de la densité d'états de l'électrode ferromagnétique, laquelle émet les électrons, qui ensuite traversent l'isolant par effet tunnel. Grâce à l'effet Zeeman, l'application d'un champ magnétique va décaler les densités d'états du supraconducteur, permettant ainsi une sélectivité en spin.

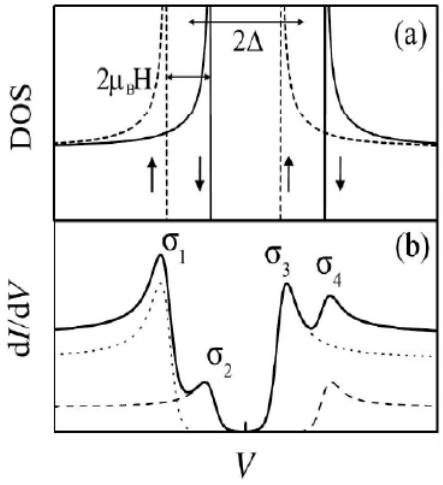


FIG. *1.12 – Expérience de Tedrow et Meservey. En haut, densité d'états dans le supraconducteur, dans les deux configurations magnétiques, en fonction de la tension appliquée. En bas, conductance dynamique en fonction de la tension appliquée. Document extrait de l'article [35]*

Concrètement, ils observent des pics correspondant au « passage » au niveau de Fermi des pics de la densité d'états des électrons de spin « up » et « down » (figure 1.12). Ces mesures permettent de quantifier la polarisation en spin du métal ferromagnétique, que les auteurs définissent, en fonction des populations des porteurs de spin « up » ($N_\uparrow$) et « down » ($N_\downarrow$) au niveau de Fermi E_F, de la manière suivante :

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

Ils parvinrent ainsi à mesurer la polarisation de plusieurs matériaux ferromagnétiques, comme le Fe (44 %), le Co (34 %) ou encore le Gd (4,3 %) [36].

1.4.3 Modèle de Jullière

En 1975, Jullière [4] observe, à basse température, et pour de très faibles tensions, un signal de magnétorésistance tunnel de 14 % dans une jonction métal/isolant/fétal en Fe/Ge/Co. Contrairement aux travaux cités plus haut, ici les deux électrodes sont de nature ferromagnétique. C'est alors la première observation expérimentale de ce qu'il baptisera « magnétorésistance tunnel » (TMR). Pour rendre compte de ce phénomène, Jullière va reprendre le modèle de ses prédécesseurs, en y ajoutant deux hypothèses :

- d'une part, qu'il y a conservation du spin des électrons traversant la barrière par effet tunnel ; on a donc deux canaux de conduction indépendants, on parle de modèle « à deux courants », dans la description de l'effet tunnel dans les métaux.
- d'autre part, que la conductance dépend, pour chaque configuration magnétique, directement de la densité d'états électroniques des électrodes.

La conductance totale s'écrit donc : $G = G_\uparrow + G_\downarrow \propto \rho_1^\uparrow \rho_2^\uparrow + \rho_1^\downarrow \rho_2^\downarrow$

En reprenant la définition de la polarisation P_i des électrodes métalliques, il calcule la TMR :

$$\text{TMR} = \frac{R_{AP} - R_P}{R_P} = \frac{G_P - G_{AP}}{G_{AP}} = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2}$$

A partir des valeurs de polarisation déterminées par Tedrow et Meservey (voir plus haut), Jullière calcule une valeur de TMR de 26 %, ce qui est proche de la valeur mesurée, compte tenu des limitations expérimentales de l'époque (qualité des mesures de polarisation, des échantillons élaborés). Cependant, ce modèle présente des limitations importantes, notamment par le fait qu'il ignore tout de la barrière (sa hauteur, son épaisseur, sa nature...), ainsi que de la structure électronique des électrodes.

1.4.4 Modèle de Slonczewski

En 1989, John Slonczewski [37] développe un modèle analytique plus complet, basé sur l'approximation des bandes rigides paraboliques. Il modélise la jonction dans son intégralité, comme un objet unique, subdivisé en trois régions (les deux électrodes ferromagnétiques, identiques, séparées par une barrière prise ici comme rectangulaire, d'épaisseur d, et de hauteur constante U_0). Il suppose que seuls les électrons d'énergie proche du niveau de Fermi et de vecteur d'onde normal aux interfaces ($k_{//} = 0$) participent au processus tunnel.

La résolution de l'équation de Schrödinger (en tenant compte des habituelles conditions de continuité entre les régions) conduit à l'expression des coefficients de transmission :

$$T_{s=\uparrow,\downarrow} = 16 \frac{\kappa^2 k_1^s k_2^s}{\left(\kappa^2 \left(k_1^s + k_2^s\right)\right)^2 + \left(\kappa^2 \left(k_1^s - k_2^s\right)\right)^2} e^{-2d\kappa}$$

où $k_i^\uparrow$, $k_i^\downarrow$ sont les vecteurs d'onde des électrons tunnel de spin up et down pour l'électrode i, et est le vecteur d'onde imaginaire évanescent dans la barrière. En sommant sur tous les canaux de transmission, on obtient la conductance pour chaque configuration :

$$G_P \propto \frac{\kappa}{d} \left(T_{\uparrow\uparrow} + T\downarrow\downarrow\right) \text{ et } G_{AP} \propto \frac{\kappa}{d} \left(T_{\uparrow\downarrow} + T\downarrow\uparrow\right)$$

En reprenant la définition de la TMR, on aboutit alors à :

$$\text{TMR} = \frac{G_P - G_{AP}}{G_{AP}} = \frac{2P_1^{\text{eff}} P_2^{\text{eff}}}{1 - P_1^{\text{eff}} P_2^{\text{eff}}} \text{ , où } P_i^{\text{eff}} = \frac{k_i^\uparrow - k_i^\downarrow}{k_i^\uparrow + k_i^\downarrow} \frac{\kappa^2 - k_i^\uparrow k_i^\downarrow}{\kappa^2 + k_i^\uparrow k_i^\downarrow}$$

On remarquera que le résultat obtenu est fort analogue à celui de Jullière, à la différence près que la polarisation est remplacée par la polarisation effective ; cette dernière dépend de la polarisation du ferromagnétique, mais aussi de la nature de la barrière (au travers du terme κ). D'ailleurs, dans le cas particulier d'une barrière haute (κ très grand devant $k_\uparrow$, $k_\downarrow$), on tend vers le résultat de Jullière. Même si bien des caractéristiques de la barrière restent encore ignorées comme notamment son épaisseur, ce modèle innove dans la mesure où il souligne l'importance

qu'a le choix du couple métal-barrière sur la TMR. Tout cela sera vérifié expérimentalement, notamment par les travaux de Moodera [6] (le premier à observer de manière reproductible de la TMR à température ambiante), et ceux de De Teresa [38].

Divers travaux ont été réalisés pour étendre ce modèle, de manière à mieux rendre compte des phénomènes observés (dépendance de la température, comportement en fonction de la tension électrique appliquée, influence de l'épaisseur...). On peut retenir plusieurs articles allant dans ce sens : [39], [40]. Souvent, ces modèles ne sont plus analytiques. En tout cas, ils suffisent à rendre compte du comportement des jonctions tunnel magnétiques à barrière polycristalline, comme celles d'alumine (Al_2O_3), matériau avec lequel nous avions commencé à travailler (travaux exposés dans le chapitre 2).

Malgré tout, ces modèles ne parviennent pas à s'affranchir des limitations du modèle des électrons libres, en particulier le fait que ce dernier ne prend pas explicitement en compte la structure électronique précise des électrodes. Ces modèles peinent aussi à expliquer certaines constatations expérimentales sur l'importance des propriétés des interfaces métal/isolant [41], dont dépend de manière cruciale la polarisation du spin, et donc la TMR. Les théoriciens se sont donc attachés à considérer une approche théorique alternative.

1.4.5 Modèle de Butler

Parmi ces travaux, on retiendra ceux sur le système Fe/MgO/Fe, menés indépendamment par Butler [42] et Mathon et Umerski [43]. Tous deux sont basés sur des modèles et calculs ab-initio (suivant une approche légèrement différente), et prédisent des TMR allant jusqu'à 1000 % à température ambiante.

Le point commun à tous ces résultats est le rôle crucial joué par la qualité cristalline des couches qui constituent les jonctions. Plus précisément, il s'agit de jonctions tunnel épitaxiées, c'est-à-dire préparées par un procédé permettant de faire croître des cristaux, où les atomes s'empilent de manière ordonnée. La qualité cristalline des couches est généralement très bonne, ce qui fait que l'on doit prendre en compte la périodicité du réseau sur les propriétés de transport des électrons. Les électrons ne sont plus considérés comme libres, mais sont soumis au potentiel périodique résultant de l'ordonnancement régulier et périodique des atomes du matériau, agencement qui possède une certaine symétrie. Il faut donc avoir recours au formalisme des ondes de Bloch. Leur fonction d'onde se décompose comme suit : $\Psi(k,r) = u(k,r)e^{ik\dot{r}}$, où $u(k,r)$ est une fonction qui possède la périodicité du réseau, c'est à dire qu'elle a la propriété suivante : $u(k,r) = u(k,r+R)$, R étant la périodicité du potentiel.

Nous allons décrire dans les grandes lignes ce qui se passe dans le cas du système Fe / MgO / Fe. On ne s'appesantira pas ici sur le détail des méthodes de calcul. Le problème est traité de manière *ab initio* : aucune donnée empirique n'entre en ligne de compte ; seule la position des atomes dans la maille cristalline est considérée dans les calculs. Ces derniers sont réalisés avec des codes de calcul spécifiques. Pour une description plus détaillée de ces travaux, ainsi que de la physique sous-jacente, on pourra consulter (par exemple) les thèses de Jérôme Faure-Vincent [44] et de Pierre-Jean Zermatten [45].

Le modèle dit de Butler consiste à considérer un modèle de transport à plusieurs canaux de conduction indépendants. Chacun d'entre eux est associé à un état de Bloch de symétrie particulière, et on suppose que seuls les électrons $k_{//} = 0$ participent à la conduction. Les taux d'atténuation dans la barrière sont différents pour chacune des symétries, ce qui conduit à une conduction privilégiée pour certaines d'entre-elles. Les états assurant la conduction ne sont pas les mêmes pour les porteurs de spin majoritaire et minoritaire, ce qui conduit à un contraste important de la conduction totale en fonction de la configuration magnétique relative des deux électrodes magnétiques.

Système Fe/MgO/Fe(100)

Pour de fortes épaisseurs de MgO, le transport tunnel est principalement assuré par les électrons de vecteur d'onde $k_{//} = 0$, c'est à dire ceux de direction perpendiculaire au plan (100) du Fe, qui possède une structure cristalline de type *bcc* (*body centered cubic*, cubique centré en français). Dans l'espace réciproque, cela correspond au segment Γ-H dans la zone de Brillouin à 3 dimensions, et au point $\overline{\Gamma}$ dans la zone de Brillouin à 2 dimensions. On va donc s'intéresser à la structure électronique dans cette direction, notée par convention Δ.

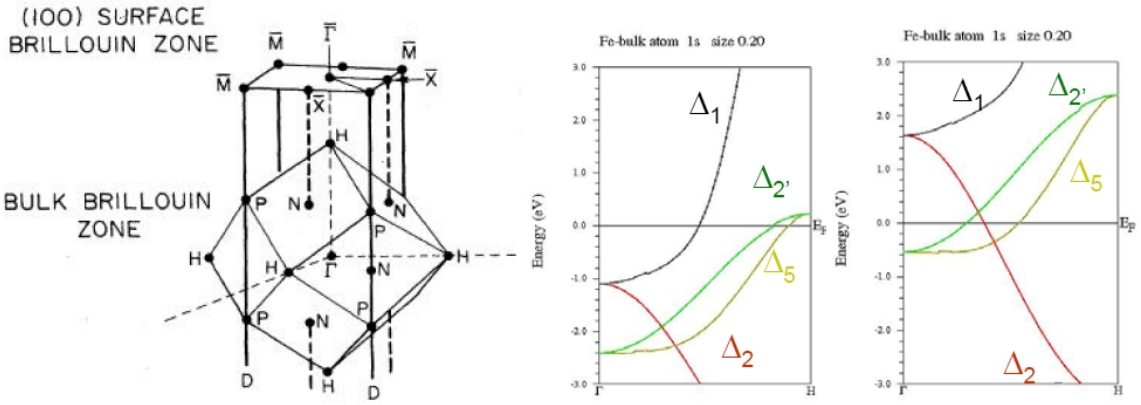


FIG. *1.13 – A gauche, zones de Brillouin de volume, et de surface (100) pour le Fer. La direction Δ est celle du segment Γ-H. Illustration tirée de [46], cité dans [44]. A droite : bandes calculées, pour les états de spin majoritaire et minoritaire, dans le Fe(001) suivant la direction Γ-H. L'énergie est indiquée en eV au-dessus du niveau de Fermi.*

Les états de Bloch sont notés Δ_i, en référence à leur représentation irréductible correspondante. La théorie des groupes permet d'indexer ces états en fonction des propriétés de symétrie des orbitales électroniques associées. En l'occurrence, ici, les orbitales correspondantes aux états Δ_i sont laissées invariantes par toute transformation de symétrie Δ. Le tableau 1.1 indique les correspondances entre états et orbitales. Par la suite, on parlera de « symétrie Δ_i », ou « d'électrons de symétrie Δ_i » pour désigner les états de Bloch associés à la représentation irréductible Δ_i.

Le calcul des structures de bandes du fer (figures 1.13 et **??**) montre qu'au niveau de Fermi, les états présents sont Δ_1, Δ_5, $\Delta_{2'}$ pour les électrons de spin majoritaire, et Δ_5, Δ_2, $\Delta_{2'}$ pour

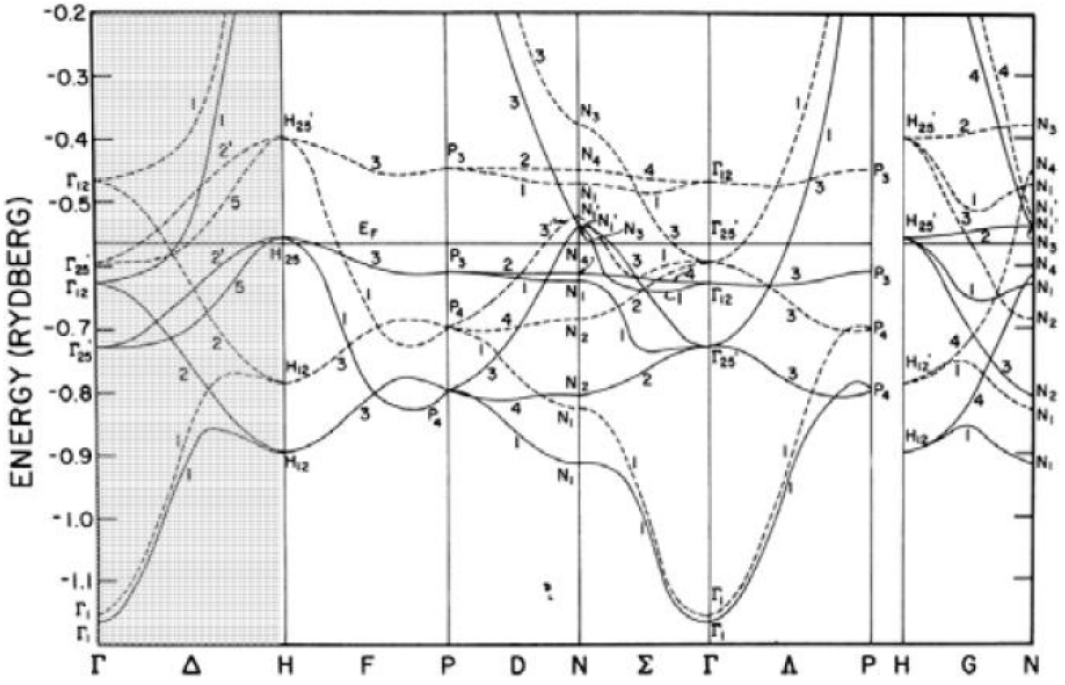


FIG. *1.14 – Représentation de la structure de bandes électroniques des deux populations de porteurs, pour le fer* bcc. *La zone en surbrillance correspond à la direction* Δ. *Les bandes correspondant aux porteurs majoritaires sont tracées en trait plein, celle pour les porteurs minoritaires sont tracées en pointillés. Image extraite de [47], cité dans [7]*

ceux de spin minoritaire. Ce résultat est important dans la compréhension des propriétés de magnétorésistance tunnel. En effet, il ne peut y avoir tunnel pour un canal de symétrie donnée que s'il y a un état disponible dans la seconde électrode, de même symétrie. Dans le cas présent, on voit qu'en configuration antiparallèle, un électron de symétrie Δ_1 ne peut pas traverser la barrière par effet tunnel faute d'état disponible dans l'électrode réceptrice (en supposant que l'électron ne subisse pas de processus de diffusion susceptible de modifier sa symétrie).

Filtrage des symétries par la barrière

Le MgO, quant à lui, est un isolant à gap direct (ce gap mesure environ 8 eV). Il cristallise dans une structure de type NaCl (maille cubique), avec un paramètre de maille $a = 0.421$ nm pour le MgO massif.

En considérant des barrières tunnel MgO épaisses, le transport tunnel a lieu surtout dans la direction perpendiculaire au plan du Fe(001), ce qui nous autorise à ne considérer, dans un premier temps, que les électrons de symétries Δ (pour lesquels $k_{//} = 0$).

Les considérations précédentes sur la structure électronique des électrodes permettent d'aboutir au calcul des densités d'états des électrons qui participent au processus de conduction par effet tunnel (*tunnel density of states*, ou TDOS) [42]. Cette quantité peut être interprétée comme la probabilité que les électrons d'une symétrie donnée ont de traverser la jonction. Les résultats de ces calculs sont reproduits sur la figure 1.15. La densité d'états des électrons tunnel est

Etat de Bloch	Orbitales électroniques
Δ_1	s, p_z, $3d_{z^2}$
Δ_2	$3d_{x^2-y^2}$
$\Delta_{2'}$	$3d_{xy}$
Δ_5	p_x, p_y, $3d_{xy}$, $3d_{yz}$

TAB. *1.1 – Récapitulatif des états de Bloch et de leurs orbitales électroniques correspondantes, pour le Fe bcc.*

calculée en fonction de l'épaisseur de MgO dans la structure Fe/MgO/Fe, et ce pour les différents porteurs, de spin majoritaire et minoritaire. Ces calculs sont effectués pour des électrons de vecteur d'onde $k_{//} = 0$.

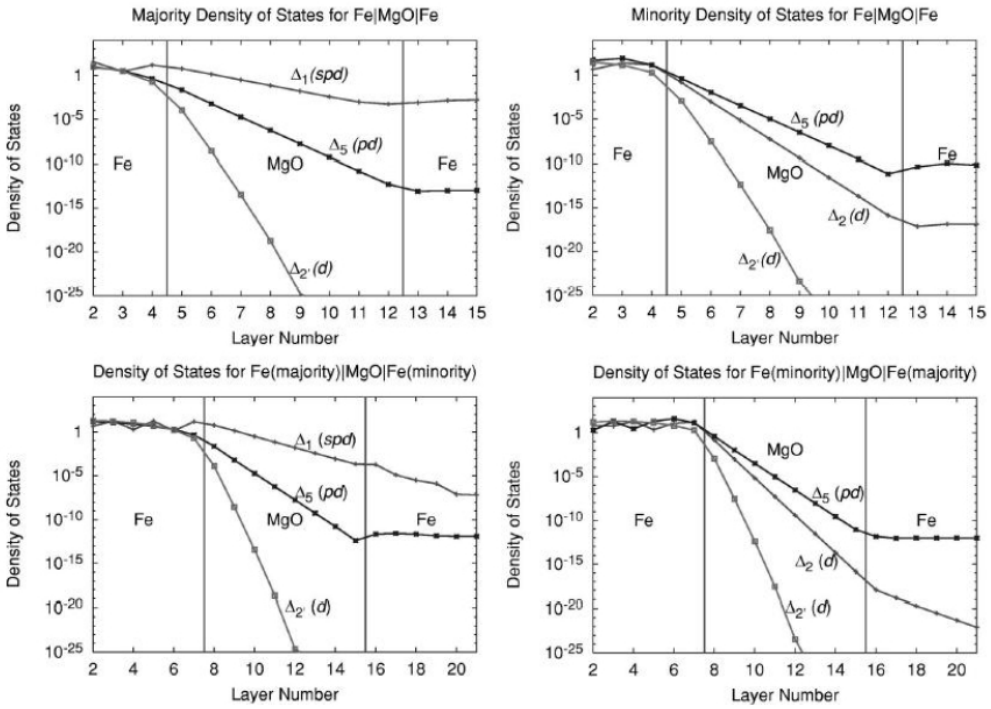


FIG. *1.15 – Calculs de la densité d'états des électrons participant au processus de conduction tunnel, pour les symétries Δ_i. En haut : densités d'états pour les porteurs de spin majoritaire (droite) et minoritaire (gauche). En bas, densités d'états pour la configuration parallèle (gauche) et anti-parallèle (droite). Document extrait de l'article [42]*

On voit clairement les taux d'atténuation différents dans la barrière pour les différentes symétries. Au niveau de Fermi prédominent les électrons Δ_1, Δ_5, $\Delta_{2'}$ pour les porteurs de spin majoritaires, Δ_5, Δ_2 et $\Delta_{2'}$ pour les porteurs de spin minoritaires. Le filtrage à proprement parler a donc lieu dans la barrière : les Δ_1 qui conservent leur symétrie après avoir passé l'interface subissent une atténuation relativement faible, alors que les autres ont une atténuation bien plus prononcée. Il en résulte que les états Δ_1 dominent la conduction pour l'état parallèle.

Pourquoi les états de symétrie sont ils atténués de manière différente dans la barrière ? Il y a deux explications à considérer :

- Il y a une première sélection des états de Bloch dans l'électrode émettrice, du fait des propriétés cristallines de la couche de fer. La symétrie dans le plan (x,y) des électrodes impose des oscillations de la fonction de Bloch (et, plus précisément, de sa composante $\Psi(x, y)$ dans le plan). Cela se traduit par une modulation périodique de $k_{//}$ (et donc de dans la barrière), qui est fonction du nombre de nœuds de $\Psi(x, y)$. Par exemple, pour les orbitales s, la fonction $\Psi(x, y)$ ne s'annule pas dans le plan, au contraire des orbitales p et d. Pour ces dernières, il y aura une augmentation du taux de décroissance dans le plan. Ainsi s'explique le taux d'atténuation pour les symétries : faible atténuation pour κ_{Δ_1} (pas de nœuds dans le plan (001)), puis, dans l'ordre, plus élevée pour Δ_2 et κ_{Δ_5} (orbitales en x et en y), puis $\Delta_{2'}$ (orbitales en xy). On trouvera une description plus complète de ce phénomène dans [48].
- L'autre explication est l'existence des MIGS (*metal induced gap states*) dans la barrière [49]. Dans un isolant, il n'y a normalement pas d'états électroniques au niveau de Fermi, à la différence d'un métal où la bande de conduction se trouve au niveau de E_F. Grâce à l'effet tunnel, ces états électroniques du métal peuvent cependant pénétrer dans l'isolant. Il y a donc des états évanescents du métal qui se propagent dans la barrière, avant de s'atténuer après une certaine distance (de l'ordre de quelques monocouches). Ils sont décrits par des bandes complexes dans le MgO. C'est la structure de ces bandes complexes (calculée dans l'article, pour $k_{//} = 0$) qui fait apparaître les différences des taux d'atténuation pour les différentes symétries. Dans l'ordre, on a $\kappa_{\Delta_1} < \kappa_{\Delta_5} < \kappa_{\Delta_{2'}}$.

Au final, sous l'influence conjuguée de ces deux effets, les états Δ_1 ont, dans la barrière, un vecteur d'onde évanescente plus petit que celui des autres états, d'où une atténuation moindre. Il y a donc un filtrage des états selon leur symétrie, et ce filtrage est plus favorable aux états Δ_1. A noter que ces explications ne sont valables que pour les barrières de MgO, et ne peuvent pas être, en l'état, généralisables à tous les systèmes. Avec d'autres barrières (dont la structure de bandes complexes est différente de celle du MgO), les résultats peuvent être différents.

Observation expérimentale

Ces effets ont été observés expérimentalement dans des jonctions Fe/MgO/Fe [50] épitaxiées, où ils sont responsables des TMR élevées mesurées à température ambiante (180 %). Ces effets de filtrage également pu être observés dans des jonctions tunnel avec électrodes des électrodes de Co, ou de CoFe et de CoFe(B) [51]. Dans cette étude, Parkin et coauteurs ont élaboré des jonctions par pulvérisation cathodique magnétron. La barrière de MgO est alors polycristalline, mais fortement texturée selon l'orientation (100). Bien que ce procédé de dépôt ne permette pas de déposer des couches avec la même qualité structurale que celle obtenue par épitaxie, des TMR approchant 220 % ont été mesurées à température ambiante. L'essentiel consiste en effet à obtenir une jonction cristalline ; on peut y parvenir en utilisant des électrodes de CoFeB à l'état amorphe. Ainsi, le MgO déposé au-dessus de l'électrode inférieure de CoFeB va pouvoir croître naturellement avec une texture (100). Un recuit à haute température va ensuite favoriser la diffusion du bore (B), conduisant ainsi à la cristallisation du CoFe dans la

structure *bcc* (100) au niveau des interfaces avec la barrière. Ce procédé, après de nombreux travaux d'optimisation, a permis d'atteindre la valeur record de 604% de TMR à température ambiante [52].

Paradoxalement, on mesure donc des TMR supérieures à celle du système Fe/MgO/Fe épitaxié. A l'heure actuelle, ces performances s'expliquent par deux effets. Le premier est dû à la structure de bandes du CoFe, qui ne comporte pas de bande Δ_5. La conductance totale en configuration antiparallèle est donc inférieure à celle dans le cas du Fe/MgO/Fe, ce qui conduit à une TMR plus élevée.

Le second provient d'un état de contrainte différent de la barrière de MgO. Pour le système CoFeB/MgO, avec le procédé de dépôt évoqué plus haut (et sur lequel on reviendra dans le chapitre 3), c'est le CoFeB qui adapte son paramètre de maille au MgO lors de la cristallisation. Au contraire, dans le cas des jonctions Fe/MgO/Fe épitaxiés, c'est le MgO, déposé sur le Fe, qui adapte son paramètre de maille (le désaccord paramétrique entre les mailles de Fe et MgO est d'environ 3.7 %). Cela engendre dans la barrière un certain nombre de dislocations [53], qui sont susceptibles de jouer un rôle sur le transport tunnel polarisé en spin.

1.5 Organisation de la thèse

Ce travail de thèse a donc pour objectif de contrôler et d'étudier les effets de précession du spin dans une couche mince ferromagnétique. L'approche retenue est d'utiliser des multicouches magnétiques couplées à des jonctions tunnel magnétiques ou à des jonctions métal / oxyde / semi-conducteur. L'essentiel du travail a porté sur le développement ces structures, prélude nécessaire à des travaux sur la précession.

La présente partie visait à situer le contexte et les enjeux du sujet de thèse, et à fournir quelques repères tant historiques que théoriques, permettant de mieux appréhender le travail réalisé.

La partie II du manuscrit est constituée d'un unique chapitre, qui décrit les premiers travaux menés lors des tous premiers mois de la thèse.

Chapitre 2 : Doubles jonctions tunnel magnétiques à barrières d'alumine Ce chapitre approfondit la description du fonctionnement de la structure de double jonction tunnel proposée. Le comportement et l'observation de la précession sont prédits à l'aide d'un modèle théorique simple. Les travaux expérimentaux décrivent l'assemblage de la structure à partir des briques de base que sont les JTM à barrière d'alumine développées au laboratoire. Nous verrons que, si le dispositif présentait sur le papier tous les atouts requis, sa réalisation expérimentale a été plus délicate. En particulier, les mesures de transport n'ont pas permis de mettre clairement en évidence des effets de précession. Il est apparu nécessaire d'interrompre ces travaux et de réorienter le travail vers le développement de briques de base plus performantes.

La partie III est la plus fournie du manuscrit, et consititue l'essentiel des travaux menés dans cette thèse. Elle porte sur le développement des briques de base qui permettront de construire la tri-couche magnétique avec la configuration d'anisotropies désirée. Elle est constituée des trois chapitres suivants :

Chapitre 3 : Étude du transport tunnel dans des jonctions CoFeB/MgO/CoFeB Ce chapitre est consacré à l'élaboration des jonctions tunnel magnétiques CoFeB / MgO / CoFeB par pulvérisation cathodique. Notre motivation est de parvenir à mettre au point, au laboratoire, des jonctions présentant une de TMR élevée. Nous nous intéresserons également aux propriétés de transport de ces jonctions. On s'intéressera surtout à l'influence sur le transport tunnel du désordre cristallin dans des électrodes de CoFeB mal cristallisées.

Chapitre 4 : Jonctions tunnel à anisotropie magnétique perpendiculaire Ce chapitre concerne la mise au point de jonctions tunnel magnétique à anisotropie perpendiculaire au plan de croissance des couches. Pour cela, nous avons utilisé un alliage de CoTb. Nous sommes parvenus à stabilisation de l'aimantation hors du plan de l'échantillon, et à une TMR élevée, malgré quelques difficultés. Nous avons également élaboré des jonctions tunnel à aimantations croisées, en vue de la construction de jonctions tunnel doubles dont les aimantations des trois couches magnétiques sont perpendiculaires entre elles.

Chapitre 5 : Élaboration de multicouches ferromagnétiques sur une jonction métal / oxyde / semi-conducteur Ce chapitre présente les travaux concernant le développement et les essais de la partie du dispositif final qui assurera le rôle d'analyseur en énergie du courant d'électrons chauds. On détaille l'élaboration des jonctions métal/semi-conducteur, et métal/isolant/semi-conducteur. Sur ces jonctions, nous avons optimisé le dépôt de multicouches magnétiques : un filtre à spin, des vannes de spin à aimantations planaires, et des vannes de spin à aimantations croisées (l'une dans le plan, l'autre perpendiculaire au plan de l'échantillon). Nous présentons les conditions d'élaboration de ces dispositifs, ainsi que le résultat des travaux d'optimisation selon les critères requis. Nous évoquerons également les résultats de mesures de transmission d'électrons chauds à haute énergie sur des échantillons tests de type « filtre à spin », qui valident en partie l'approche retenue.

Deuxième partie

Étude de la précession du spin dans des doubles jonctions tunnel magnétiques

Chapitre 2

Doubles jonctions tunnel magnétiques à barrières d'alumine

2.1 Introduction

2.1.1 Objectifs et motivations

Ce chapitre présente les premières mesures de précession qui ont été tentées, en début de thèse, sur les doubles jonctions à barrières d'oxyde d'aluminium. L'objectif est de mettre en évidence, grâce à des mesures de magnéto-transport, un effet de précession du spin d'électrons chauds de basse énergie sous l'action du champ moléculaire d'une couche ferromagnétique.

Nous commencerons par présenter un modèle théorique simple, permettant de modéliser la précession dans un film ferromagnétique. Nous nous en servirons pour expliquer le fonctionnement du dispositif proposé, et comment la précession peut être quantitativement mise en évidence par des mesures de magnéto-transport.

Nous ferons ensuite une syntèse rapide des travaux antérieurs au début de cette thèse, qui portaient sur le développement des jonctions tunnel magnétiques à barrière amorphe d'alumine. Nous décrirons justement l'élaboration des jonctions tunnel doubles à partir de ces briques de base. Nous présenterons les résultats des mesures de magnéto-transport effectuées à basse température, et essaierons de les interpréter qualitativement sous l'angle du modèle basique évoqué. Ces travaux ont cependant rencontré un certain nombre de limitations, dont nous verrons qu'elles ont amené à une réorientation du sujet.

2.1.2 Description théorique de la précession

Précession dans une couche mince ferromagnétique

Comme point de départ, nous nous appuyons sur le modèle proposé par Weber [54] [28]. Considérons un faisceau d'électrons polarisés en spin (de vecteur de polarisation de spin P_0), que l'on injecte dans une couche ferromagnétique, d'aimantation supposée uniforme M. Le vecteur de polarisation du spin des électrons itinérants va être modifié sous la double influence

du filtrage et de la précession.

Le premier effet est le filtrage des électrons par la couche ferromagnétique. Il a pour effet de ramener la polarisation de leur spin selon la direction de M (rotation d'angle θ).

Le second effet est un mouvement de précession de Larmor du spin, sous l'effet du champ moléculaire qui règne dans le matériau. Cet effet, qui peut être vu comme un analogue à la rotation Faraday [15] (rotation de la polarisation de la lumière sous l'action d'un champ magnétique) a été mis en évidence expérimentalement par les travaux de Wolfgang Weber et coauteurs [14]. C'est la variation de l'angle ϵ de la figure 2.1.

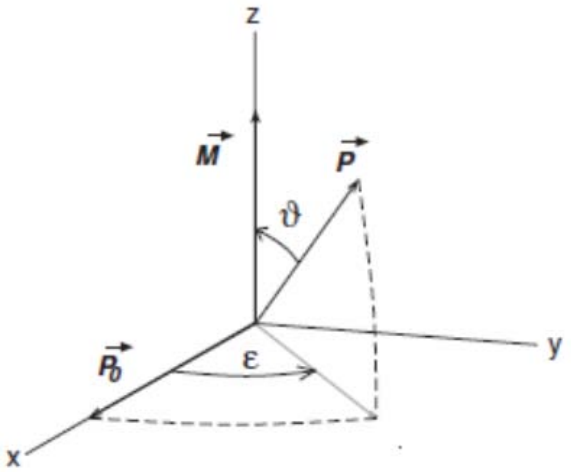


FIG. *2.1 – Schéma [15] illustrant la rotation (θ) et la précession (ϵ) de la polarisation P du spin de l'électron (polarisation initiale P0) autour de l'aimantation de la couche ferromagnétique d'aimantation M.*

Le faisceau incident possède une polarisation P_0, perpendiculaire à M. La fonction d'onde qui le décrit est une superposition d'états de spin *up* et *down*, respectivement parallèle et antiparallèle à M.

$$\psi_{incident} \propto \left(\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \right) e^{i\phi}$$

Du fait de processus de diffusion dépendant du spin dans un métal de transition, la composante de la fonction d'onde associée aux électrons de spin minoritaire va être plus fortement atténuée que celle des électrons de spin majoritaire : c'est la conséquence du filtrage en spin. La fonction d'onde des électrons transmis prend donc la forme suivante :

$$\psi_{transmis} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\sqrt{1+A} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} e^{-i\frac{E_\uparrow}{\hbar}t} + \sqrt{1-A} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} e^{-i\frac{E_\downarrow}{\hbar}t} \right) e^{i\phi}$$

où le coefficient A est défini comme l'asymétrie de spin $A = \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-}$ pour un état de spin pur (P_0 = 1). L'angle de rotation de la polarisation du spin est alors $\tan\theta = \frac{A}{P_0\sqrt{1-A^2}}$.

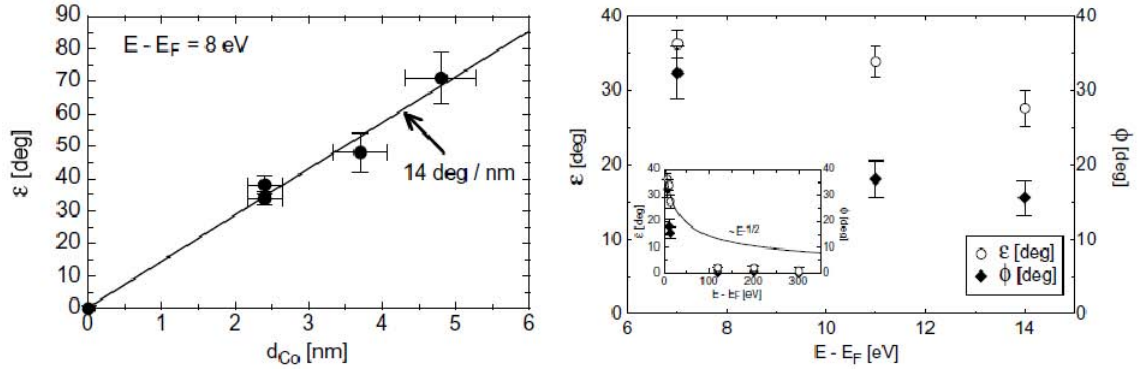


FIG. *2.2 – Á gauche, angle de précession pour une énergie donnée en fonction de l'épaisseur de Co ; à droite, angle de précession en fonction de l'énergie. [15].*

On peut réécrire l'expression de la fonction d'onde transmise comme

$$\psi_{transmis} = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(\sqrt{1+A}\begin{pmatrix}1\\0\end{pmatrix} + \sqrt{1-A}\begin{pmatrix}0\\1\end{pmatrix}e^{-i\frac{E_\uparrow - E_\downarrow}{\hbar}t}\right)e^{i\phi}e^{i\frac{E_\uparrow}{\hbar}t}$$

La précession se manifeste par l'apparition d'un déphasage. L'angle de précession vaut $\epsilon = \frac{\Delta E_{ech}}{\hbar}t$. $\Delta E_{ech} = E_\uparrow - E_\downarrow$ est le décalage d'énergie entre les électrons de spin majoritaire et minoritaire ; c'est le *splitting* d'échange. Le temps t mis par les électrons pour traverser la couche ferromagnétique est égal à $t = d/v$, où d est l'épaisseur du film mince et v la vitesse des électrons. Si on se base dans une description en terme d'électrons libres, leur vitesse de groupe vaut $v = \frac{2E}{m}$, où E est l'énergie des électrons. Le temps mis pour parcourir l'épaisseur de la couche ferromagnétique est alors égal à $t = d/v = d\frac{2E}{m}$. Il vient alors que l'angle de précession vaut $\epsilon(E) = \frac{m}{2\hbar^2}\frac{\Delta E_{ech}}{\sqrt{E}}d$.

Dans leurs expériences (figure 2.2), Weber et collaborateurs ont observé des angles de précession de l'ordre de 7° à 33° par nanomètre parcouru (valeurs pour le Co et le Fe respectivement, extraites de [54]). Gardons toutefois à l'esprit que ces observations ont été faites pour une gamme de plus haute énergie que celle que nous allons étudier.

Précession dans une double jonction tunnel magnétique

Le dispositif reprend le principe des mesures ci-dessus, qui consistent à injecter un faisceau d'électrons polarisés dans une couche mince ferromagnétique. Mais ici, l'injection des électrons, de même que la collecte, sont réalisées grâce à des jonctions tunnel doubles (structure *FM1 / I / FM2 / I / FM3*). La précession a lieu dans la couche ferromagnétique intermédiaire (notée ici FM2) ; le reste du dispositif sert à injecter puis à collecter les électrons. La figure 2.3 schématise le principe de fonctionnement. Pour plus de clarté, on suppose dans cet exemple que l'angle de précession sur le parcours vaut $\pi/2$.

On peut utiliser le dispositif en injectant le courant dans un sens, puis dans l'autre, et en comparant le courant collecté dans les deux cas. La première jonction tunnel est polarisée à une tension V. Les électrons sont polarisés (polarisation P_0) par la première couche ferromagnétique (FM1) et injectés dans la couche intermédiaire (FM2), par effet tunnel, à une énergie eV

au-dessus du niveau de Fermi.

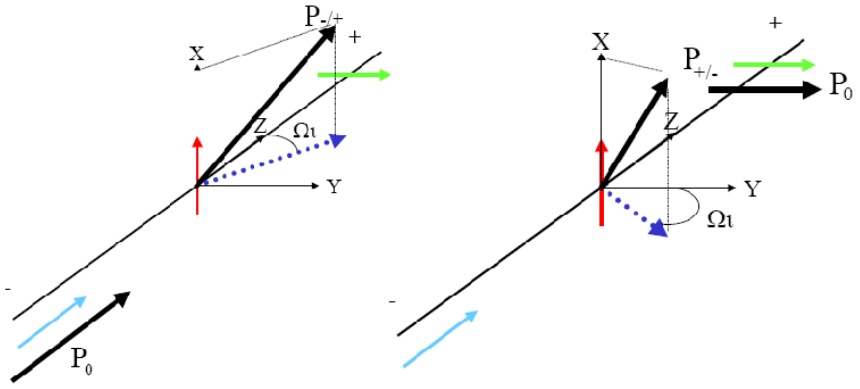


FIG. *2.3 – Principe de l'observation de la précession dans une double jonction tunnel. Les deux schémas correspondent aux deux sens d'injection du courant. Les aimantations des trois couches ferromagnétiques sont représentées par les trois flèches M1, M2 et M3. Le schéma central montre la polarisation P_i d'un électron en train de précesser (angle $\epsilon = \Omega t$) autour de M2, tout en subissant une rotation vers M2. Selon le sens d'injection, les électrons, à leur arrivée dans le collecteur, présentent une polarisation parallèle ou anti-parallèle par rapport à l'aimantation de la troisième couche magnétique.*

Dans le premier cas, où les électrons sont injectés de - vers +, la fraction d'électrons chauds non thermalisés arrive, après précession, sur la seconde jonction tunnel avec une polarisation

$$P_{-/+} = \begin{pmatrix} A \\ P_0\sqrt{1-A^2}\sin\epsilon \\ P_0\sqrt{1-A^2}\cos\epsilon \end{pmatrix}$$

(avec $\epsilon = \pi/2$) qui est parallèle à l'aimantation de la troisième couche, FM3. Dans le second cas, où les électrons sont injectés de - vers +, ils arrivent avec une polarisation

$$P_{+/-} = \begin{pmatrix} A \\ P_0\sqrt{1-A^2}\cos\epsilon \\ -P_0\sqrt{1-A^2}\sin\epsilon \end{pmatrix}$$

antiparallèle à FM3.

Du fait de la TMR de la jonction tunnel, on s'attend à observer entre ces deux cas de figure une différence du courant collecté. Plus la TMR de la jonction est élevée, plus cette différence sera forte.

Le cas de figure 2.3 décrit ci-dessus n'est qu'un cas particulier, choisi pour l'exemple. Cet angle $\pi/2$ ne sera obtenu que pour des configurations d'aimantation bien précises. En réalité, l'angle de précession dépend de l'énergie des électrons. Dans le modèle théorique sommaire présenté plus haut, cet angle de précession suit une dépendance en $\frac{\Delta E_{ech}}{\sqrt{E}}$, ce qui a été confirmé

expérimentalement par Weber *et al.* pour une plage d'énergies allant de 5 à 15 eV (voir figure 2.2). On peut se demander si c'est toujours le cas à plus basse énergie.

Nous allons donc essayer d'y répondre qualitativement. A partir de différents prolongements de cette loi d'évolution à basse énergie (figure 2.4), nous avons calculé, à partir des équations ci-dessus, le comportement de la résistance tunnel que l'on s'attend à mesurer sur la double jonction tunnel.

Nous avons considéré deux cas de figure pour modéliser l'évolution de l'angle de précession à basse énergie : une dépendance en $\epsilon(E) \propto \frac{\Delta E_{ech}}{\sqrt{E}}$, qui prolonge la loi observée pour des énergies plus élevées (cas a) et une diminution (cas b) de l'angle avec l'énergie quand l'énergie tend vers 0. Ce dernier comportement est modélisé par une fonction en $\epsilon(E) \propto \frac{1}{\sqrt{E}}\left(1 - e^{-E}\right)$. Les valeurs des paramètres numériques sont choisies de sorte à « coller » avec les valeurs d'angle de précession mesurées pour le Co à 10 eV par Weber [15].

A partir de ces lois et de l'expression de la polarisation décrite précédemment, on peut déduire l'allure de la résistance mesurée dans chaque cas, selon que le courant est injecté dans un sens ou dans l'autre. Cela nécessite quelques hypothèses fortes : on supposera que les seules variations de résistance en fonction de la tension sont le fait de la précession ; bref, qu'il n'y a pas de dépendance en tension de la résistance des jonctions ni de leur TMR. Le rapport de ces résistances (ou asymétrie) est tracé figure 2.4. C'est ce paramètre auquel nous aurons accès expérimentalement, et qui permettra de nous apporter des premières informations sur la précession à basse énergie. Dans le premier cas, la diminution de l'énergie entraîne une augmentation importante de l'angle de précession, ce qui se traduit par des oscillations du rapport des résistances. Dans le second, l'angle de précession tend vers zéro à basse énergie, ce qui se traduit par un rapport des résistances qui tend vers 1 (il n'y a plus aucune asymétrie).

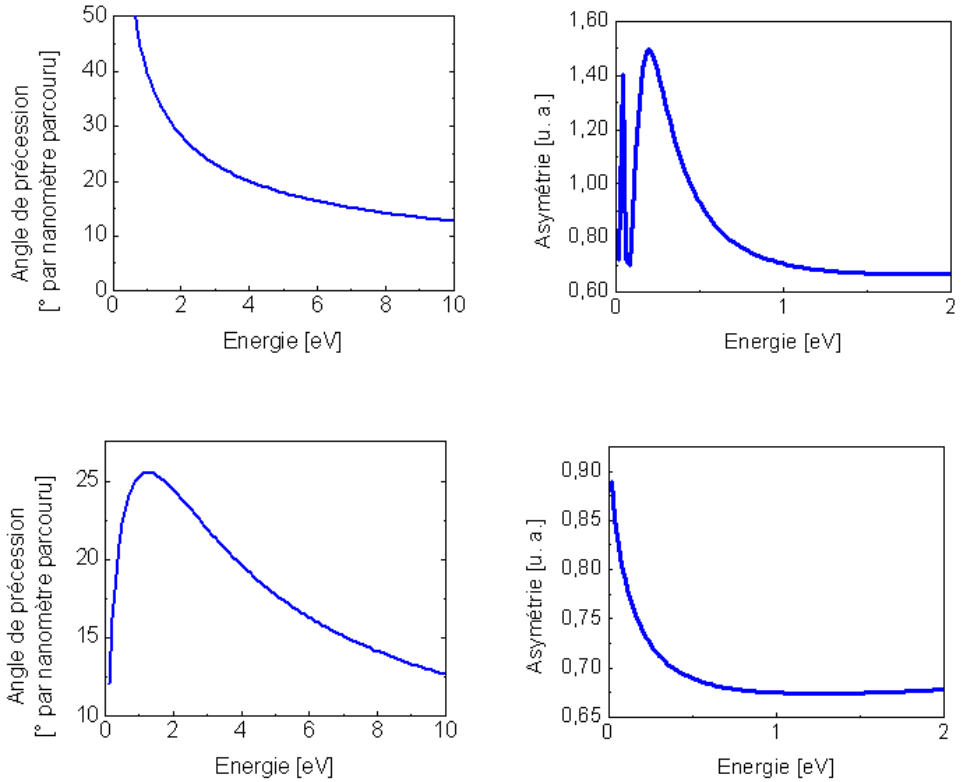


FIG. *2.4 – Les figures de gauche présentent les lois de variations hypothétiques de l'angle de précession par nanomètre en fonction de l'énergie. La première n'est autre que la loi observée à haute énergie. La seconde est une loi en* $\epsilon(E) \propto \frac{1}{\sqrt{E}}\left(1 - e^{-E}\right)$*, qui représente un comportement de saturation quand énergie tend vers zéro. Toutes trois deux le comportement observé expérimentalement entre 2 et 15 eV. Les figures de droite présentent l'évolution du rapport des résistances, calculé en fonction de la tension appliquée, pour chaque cas de figure. L'exemple est ici pris pour une couche ferromagnétique de 3 nm d'épaisseur.*

2.2 Élaboration des structures à barrières d'alumine

2.2.1 Bilan des résultats antérieurs

Propriétés de magnéto-transport des jonctions tunnel seules à aimantations planaires

Les premiers travaux menés au laboratoire, initiés il y a quelques années, portent sur les jonctions tunnel magnétiques individuelles élaborées par pulvérisation cathodique. La barrière est une couche mince d'alumine, obtenue par oxydation plasma d'une couche mince d'aluminium. Le choix d'électrodes magnétiques est vaste : Co, NiFe, couches durcies par adjonction de l'antiferromagnétique IrMn... Des travaux d'optimisation ont permis d'obtenir, de façon reproductible, des JTM à aimantation planaire de bonne qualité : par exemple, les JTM *Ta 5nm /Co 10nm / IrMn 7.5nm / Co 5nm / Al 2nm (oxydation 85s) / Co 1nm / NiFe 10nm /Pt 3nm* présentent une TMR de 25 % (voir figure 2.5), ce qui reste le maximum obtenu pour ces jonctions dans la littérature.

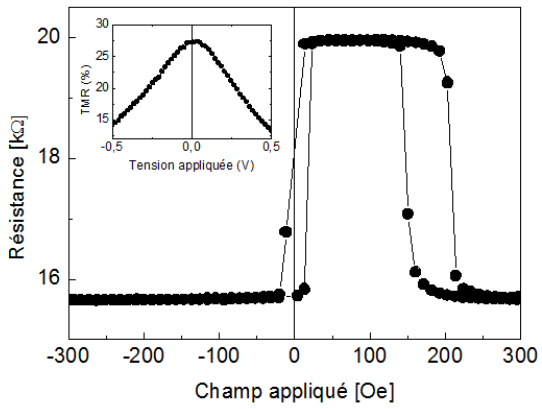


FIG. *2.5 – A gauche, cycle R(H) et (en encart) TMR(V) pour une jonction tunnel magnétique Ta 5nm / Co 10nm / IrMn 7.5nm / Co 5nm / Al 2nm (oxydation 85s) / Co 1nm / NiFe 10nm / Pt 3nm).*

Propriétés de magnéto-transport des jonctions tunnel seules à aimantations croisées

En plus de cela, des jonctions magnétiques tunnel à anisotropies croisées (une couche à anisotropie dans le plan de l'échantillon, et l'autre avec une anisotropie perpendiculaire au plan) à barrière d'alumine ont été développées dans le travail de thèse de Malinowski [55] [56]. La figure 2.6-a représente la résistance tunnel mesurée en fonction du champ magnétique, celui-ci étant appliqué perpendiculairement au plan des couches. On observe bien une évolution linéaire de la résistance, suivant une loi du type :

$$R(H) = \frac{R_P + R_{AP}}{2} + \frac{R_P - R_{AP}}{2}\left(\frac{H}{H_d}\right)$$

où R_P et R_{AP} sont les résistances dans les configurations parallèle et antiparallèle, et H_d le champ démagnétisant de la couche douce, d'aimantation M_2 sur le schéma.

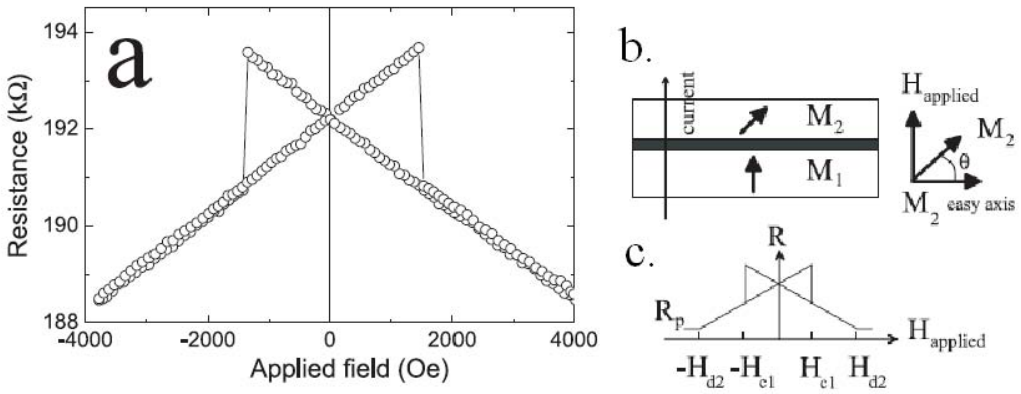


FIG. *2.6 – (a) Mesure de la résistance tunnel, à tension constante, d'une jonction tunnel à aimantation croisées (Pt/Co)x2 / Al_2O_3 / Co, en fonction d'un champ magnétique appliqué selon la normale au plan de l'échantillon. Les figures de droite indiquent (b) les directions d'anisotropie des couches magnétiques, et (c) leurs champs coercitifs. Figures extraites de [57].*

Dans le cas d'une couche simple Pt / Co / Al_2O_3, un travail a été mené [58] afin d'optimiser le temps d'oxydation de la couche d'aluminium. On observe (figure 2.7) une diminution du champ coercitif lorsque le temps d'oxydation augmente, puis tombe à zéro lorsqu'on atteint le temps d'oxydation avec lequel la TMR est maximale. Afin de conserver une couche à aimantation perpendiculaire de coercivité raisonnable, le temps d'oxydation est limité à 65 secondes, même si la valeur de la TMR est alors plus petite que la valeur optimale.

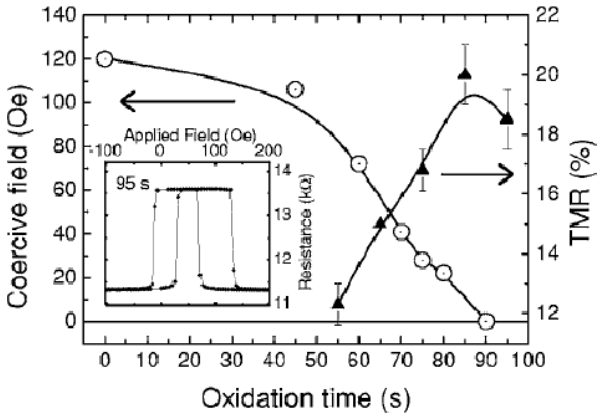


FIG. *2.7 – Évolution du champ coercitif de la couche (courbe de gauche) et de la TMR (courbe de droite) d'une jonction tunnel magnétique Ta 5nm / Pt 10nm / Co 5nm / Al_2O_3 / Co 2nm / Ta 0.5nm /Co 3nm / $Ir_{0.20}Mn_{0.80}$ 5nm / Pt 3nm.) en fonction de la durée d'oxydation par plasma de la couche d'aluminium. Extrait de [58].*

Les ingrédients pour construire la structure complète sont donc tous réunis et leur élaboration est maîtrisée.

Stabilisation de la tri-couche magnétique en champ nul

A partir de ces résultats, nous avons élaboré des jonctions doubles, constituées selon le principe expliqué en introduction : trois couches ferromagnétiques, d'anisotropies orientées dans les trois directions de l'espace, séparées par deux barrières tunnel d'Al_2O_3. L'élaboration de la structure complète est réalisée par pulvérisation cathodique, avec les paramètres utilisés pour les jonctions individuelles présentées ci-dessus.

La figure 2.8 présente les cycles d'hystéresis, mesurés par VSM dans les trois directions de l'espace, sur un échantillon de structure *Ta 5nm / Pt 5nm / Co 0.7nm / Pt 0.6nm / Co 0.5nm / Al_2O_3 2nm / NiFe 5nm / Al_2O_3 2nm / Co 5nm / IrMn 10nm / Pt 3nm*. Les mesures montrent que la configuration est correctement stabilisée à champ nul.

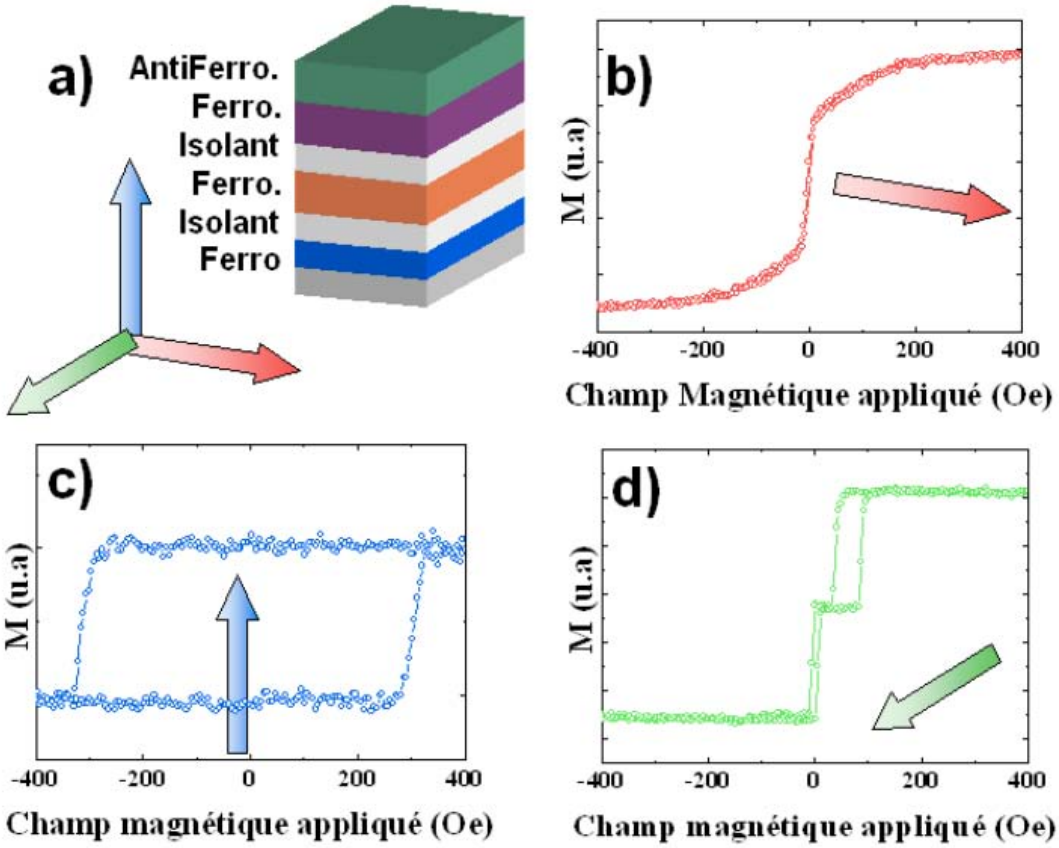


FIG. *2.8 – Propriétés magnétiques de la structure multi-couche. Les cycles d'hystérésis sont mesurés par VSM, en appliquant un champ magnétique suivant les trois directions des anisotropies.*

Pour ce qui est des propriétés de structure, des clichés de microscopie électronique en trans-

mission sur un échantillon vu en coupe (figure 2.9) montrent que les couches présentent une qualité convenable (elles sont continues), même si la rugosité est importante. Cela n'a ne semble cependant pas avoir ici d'effet sur les propriétés magnétiques.

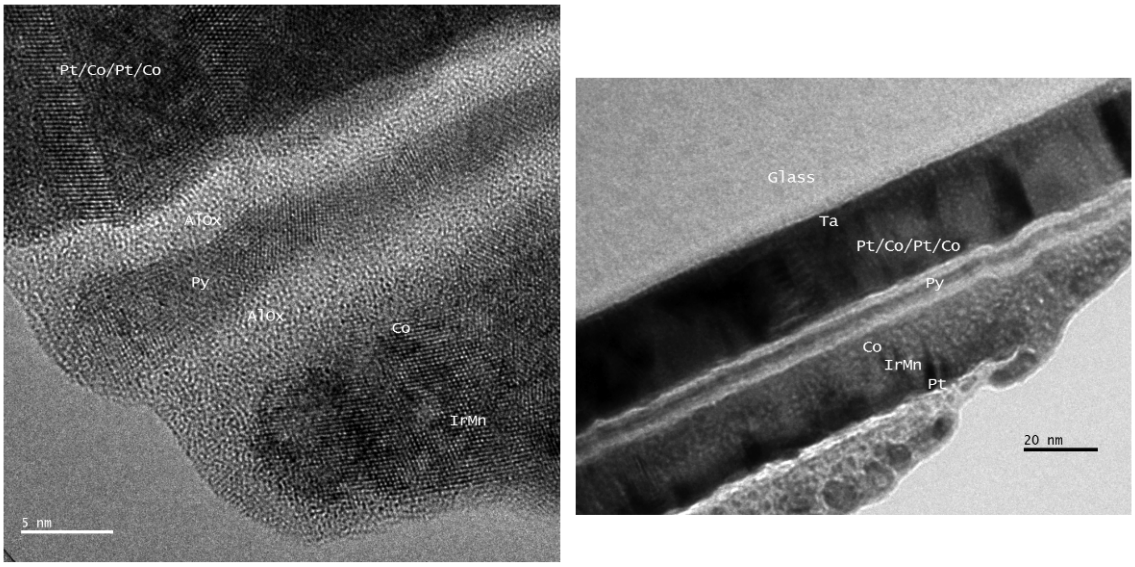


FIG. *2.9 – Clichés de microscopie électronique en transmission d'une jonction double de composition Ta 5nm / (Pt 10nm /Co 0.6nm)x2 / Al_2O_3 / Py / Al_2O_3 / Co / IrMn / Pt.*

2.2.2 Premières mesures de transport

Au vu des propriétés magnétiques et structurelles, nous avons commencé l'étude avec des doubles jonctions *Ta 5nm / Pt 5nm / Co 0.7nm / Pt 0.6nm / Co 0.5nm / Al_2O_3 2nm / NiFe $x$nm/ Al_2O_3 2nm / Co 5nm / IrMn 10nm / Pt 3nm* où x varie entre 2 et 10 nm. Dans quasiment tous les cas, les mesures de magnéto-résistance ont révélé l'absence de signature de la JTM supérieure : il n'y a pas de TMR, ni de résistance associée.

Afin d'identifier le problème, nous avons réalisé des jonctions doubles à aimantations planaires avec différents matériaux (permalloy, cobalt) pour la couche ferromagnétique intermédiaire. La figure 2.10 présente les résistances en fonction du champ appliqué dans la direction de facile aimantation, sur une double jonction de type *Ta 5nm / Co 10nm / IrMn 10nm / Co 5nm / Al_2O_3 / <ferromagnétique intermédiaire> / Al_2O_3 / Co 5nm / IrMn 10nm / Pt 3nm*, avec comme couche intermédiaire Co, NiFe, NiFe/Co et Co/NiFe/Co.

On constate que l'on ne trouve pas, dans le cycle de magnéto-résistance, de signature de la présence de la JTM supérieure lorsque la couche intermédiaire contient du permalloy et que celui-ci se trouve en contact avec la barrière de Al_2O_3. En revanche, en insérant du Co entre Py et alumine, on retrouve sa signature. Ce résultat laisse penser qu'il y a un problème à l'interface NiFe/Al_2O_3. Il s'agit probablement de la formation d'un alliage entre le permalloy et l'aluminium [59] avant que celui-ci ne soit oxydé. La barrière tunnel supérieure n'est donc

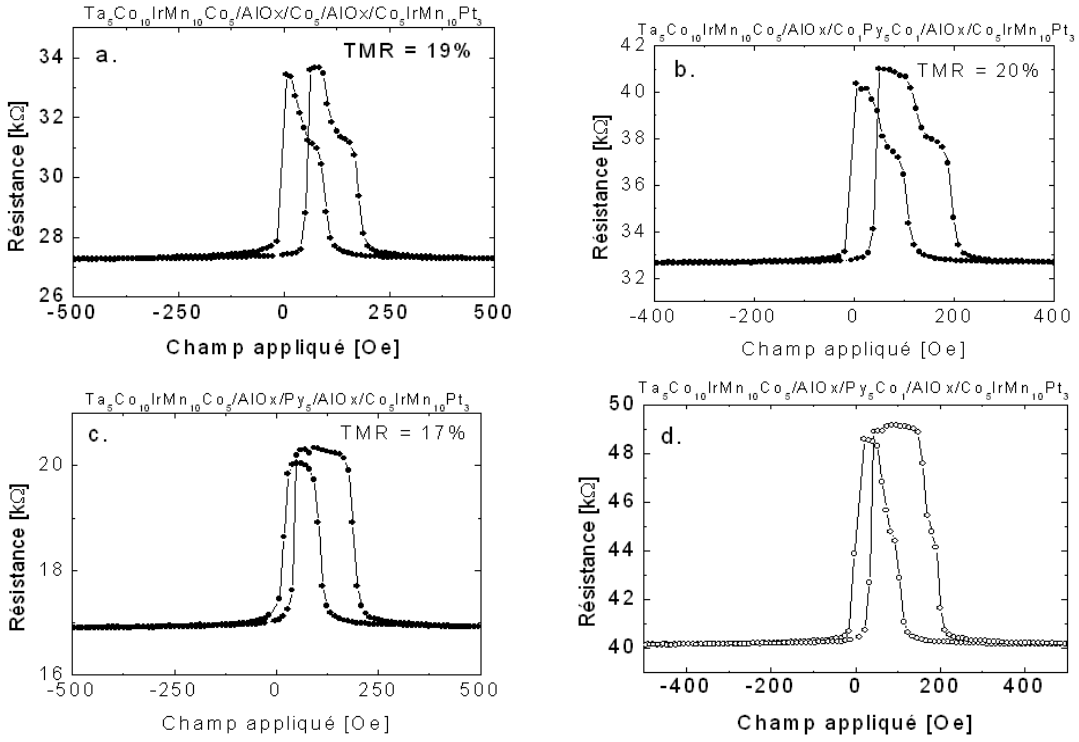


FIG. *2.10 – R(H) mesurées sur des double jonctions tunnel à aimantations planaires Co/Al_2O_3/<couche ferromagnétique intermédiaire>/Al_2O_3/Co, avec comme couche intermédiaire : [a] Co [b] Co/NiFe/Co [c] NiFe [d] NiFe/Co. Les courbes de R(V) dans les cas [a], [b] et [d] montrent la présence de l'état magnétique intermédiaire attendu, ce qui n'est pas le cas de la courbe [c].*

pas correctement formée. Cela est confirmé par la valeur de résistance surfacique des jonctions. Les jonctions en question ont été structurées avec une taille latérale de 50 μm. Dans le cas de l'échantillon avec la couche de Co/NiFe/Co, on mesure une résistance surfacique de $RA_b = 8.110^{-8}\Omega.m^2$; pour l'échantillon avec le NiFe seul, on mesure $RA_c = 4.210^{-8}\Omega.m^2$. La résistance surfacique de ce dernier échantillon vaut la moitié de la valeur de résistance surfacique d'un échantillon fonctionnel, ce qui confirme que l'une des jonctions tunnel est abimée, voire inexistante. Notons que ce problème n'est pas visible sur les clichés de microscopie MET présentés plus haut.

L'adjonction d'une fine couche intermédiaire entre celles de NiFe et d'aluminium (NiFe / Co / Al_2O_3) permet d'obtenir de bonnes propriétés tunnel. Cependant, cette dernière option n'est pas forcément souhaitable du point de vue du transport des électrons chauds.

En effet, des travaux théoriques sur le transistor à vanne de spin [60] ont montré que la diffusion des électrons chauds aux interfaces est responsable d'une forte réduction des valeurs du courant collecté. On peut s'interroger sur ce qu'il en sera dans notre système. Aussi, par précaution, on cherchera à limiter le nombre d'interfaces au niveau de la couche ferromagnétique intermédiaire. C'est pourquoi, dans un premier temps, on préfère se contenter d'une couche intermédiaire de Co, bien que celle-ci possède un champ coercitif plus élevé.

2.2.3 Structures optimisées à base de Co intermédiaire

Jonctions doubles à aimantations croisées

La suite de l'étude porte donc sur des doubles jonctions à couche intermédiaire de Co, dont on peut voir une courbe R(H) en figure 2.11. Le champ magnétique est appliqué dans le plan des couches. La contribution haut champ correspond à la jonction inférieure et celle à bas champ à la jonction supérieure.

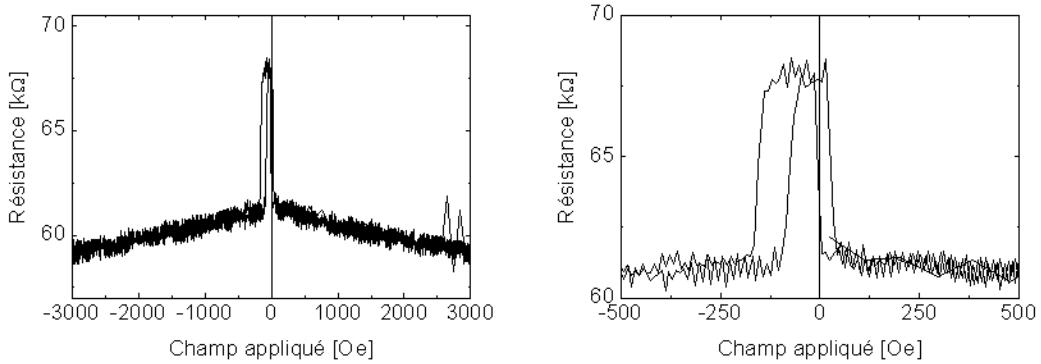


FIG. *2.11 – R(H) mesurées sur un double jonction tunnel à aimantations croisées Pt 5nm / Co 0.7nm / Pt 0.6nm / Co 0.5nm / Al_2O_3 2nm / Co 5nm / Al_2O_3 2nm / Co 5nm / IrMn 10nm / Pt 3nm.*

On remarquera au passage que les aimantations de la couche supérieure ne sont pas croisées à champ nul. Nous sommes donc contraints d'appliquer un champ magnétique selon l'axe difficile de la couche, pour obtenir les configurations désirées.

Mesures de transport

Pour mettre en évidence des effets de précession, nous avons mesuré le rapport des résistances pour différentes configurations magnétiques, à température ambiante. Pour ce faire, nous mesurons simplement la caractéristique I(V) pour différents champs magnétiques. La configuration magnétique non-colinéaire est obtenue en saturant l'aimantation de l'échantillon selon l'axe d'aimantation difficile puis en diminuant le champ appliqué. Le rapport des courants (on pourrait aussi travailler avec le rapport des résistances, ce qui revient au même ici) pour les deux sens d'injection (V > 0 et V < 0) est calculé à partir des caractéristiques I(V). A ces dernières est préalablement retranché la valeur du courant mesuré en configuration à saturation. En effet, on sait qu'il ne peut pas y avoir de précession pour cette configuration particulière ; on mesure ainsi la contribution des électrons qui se sont thermalisés lors de leur parcours (que l'on suppose indépendante de la configuration magnétique).

Les résultats sont présentés figure 2.12. Ceux-ci sont très bruités, rendant l'interprétation délicate. Il semblerait qu'à très basse tension le signal présente des oscillations, ce qui pourrait, qualitativement, correspondre à l'un des cas prédits par notre modèle sommaire (en l'occurrence, celui pour lequel l'angle de précession suit une loi en $\epsilon(E) \propto \Delta E_{ech}/\sqrt{E}$). Mais ce

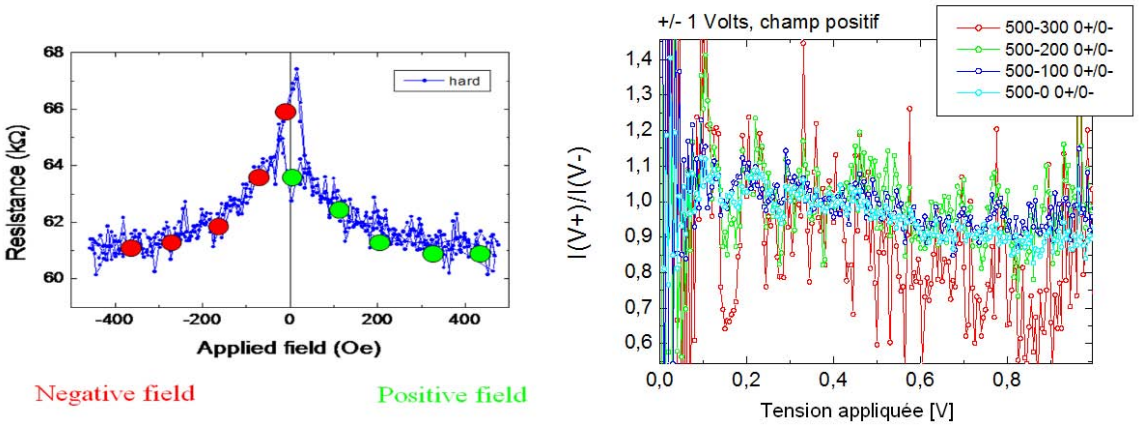


FIG. *2.12 – Mesures à 300K sur une double jonction tunnel à aimantations croisées Pt 5nm / Co 0.7nm / Pt 0.6nm / Co 0.5nm / Al_2O_3 2nm / Co 5nm / Al_2O_3 2nm / Co 5nm / IrMn 10nm / Pt 3nm. A gauche sont indiqués les champs magnétiques et les résistances pour lesquelles les I(V) ont été mesurées. A droite, rapport des résistances (en fait ici des courants) mesurées en fonction de la tension appliquée. Seules les mesures en champ magnétique positif sont tracées.*

résultat à lui seul n'est certainement pas suffisant pour conclure.

On peut d'ailleurs se demander s'il y a réellement des effets de transport cohérent à cette température dans ces jonctions. A nouveau, on se tourne vers des mesures de magnéto-transport de doubles jonctions à aimantation planaire. Nous avons considéré des structures *Ta 5nm / Co 10nm / IrMn 7.5nm / Co 5nm / Al_2O_3 2nm / Co x / Al_2O_3 2nm / Co 5nm / IrMn 10nm / Pt 3nm* pour des épaisseurs x de la couche de Co intermédiaire allant de 2 à 5 nm. Ces structures sont magnétiquement découplées, et ce pour toutes les épaisseurs de Co.

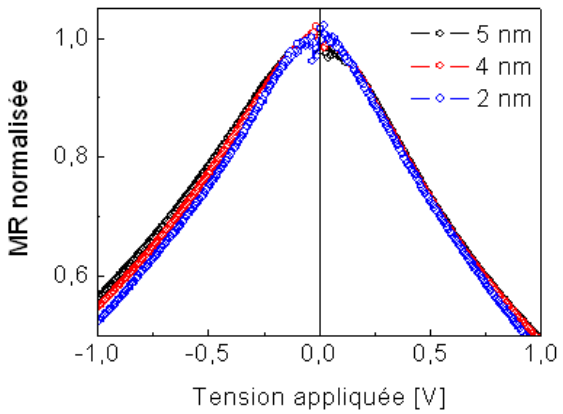


FIG. *2.13 – TMR(V) norrmalisée de structures Ta 5nm / Co 10nm / IrMn 7.5nm / Co5nm / Al_2O_3 2nm / Co x / Al_2O_3 2nm / Co 5nm / IrMn 10nm / Pt 3nm, en fonction de l'épaisseur de cobalt.*

Pourtant, on constate (figure 2.13) que la TMR(V) ne dépend quasiment pas de l'épaisseur de Co. De plus, le paramètre $V_{1/2}$ (tension pour laquelle la TMR vaut $TMR_{max}/2$) ne varie pas significativement pour chacune de ces doubles jonctions. Cela indique qu'il n'y a pas d'effets de transport cohérent [61].

2.2.4 Premières conclusions

Après stabilisation des propriétés, les premières mesures, réalisées à température ambiante, ne nous permettent pas de mettre en évidence un effet de précession de spin. De plus, il semblerait qu'aucun effet cohérent ne puisse être observé. Nous avons donc lancé une série de mesures à basse température (77 K et 7 K) en vue de parer au problème.

2.3 Mesures de magnéto-transport à basse température

Le tableau 2.1 récapitule les échantillons étudiés. Notons que tous les échantillons n'ont pu être mesurés, en raison de leur fragilité. La discussion des résultats sera donc restreinte à l'interprétation des mesures, en fonction de l'épaisseur de la couche de cobalt.

Éch.	Structure
298	Ta5 / Pt10 / Co7b / Pt4b / Co5b / Al_2O_3 / Co4 / Al_2O_3 / Co2 / Ta0.5 / Co2 / IrMn10 / Pt3
299	Ta5 / Pt10 / Co7b / Pt4b / Co5b / Al_2O_3 / Co3 / Al_2O_3 / Co2 / Ta0.5 / Co2 / IrMn10 / Pt3
341	Ta5 / Pt10 / Co7b / Pt4b / Co5b / Al_2O_3 / Co5 / Al_2O_3 / Co2 / Ta0.5 / Co2 / IrMn10 / Pt3
387	Ta5 / Pt10 / (Pt / Co)x4 / Al_2O_3 / Co4 / Al_2O_3 / Co3 / Ta0.5 / Co3 / IrMn8 / Pt3
388	Ta5 / Pt10 / (Pt / Co)x4 / Al_2O_3 / Co5 / Al_2O_3 / Co3 / Ta0.5 / Co3 / IrMn8 / Pt3
442	Ta5 / Pt10 / (Co / Pt)x4 / Al_2O_3 / Co4 / Al_2O_3 / Co4 / Ta0.5 / Co3 / IrMn10 / Pt3
443	Ta5 / Pt10 / (Co / Pt)x4 / Al_2O_3 / Co3 / Al_2O_3 / Co4 / Ta0.5 / Co3 / IrMn10 / Pt3

TAB. *2.1 – Tableau récapitulatif de la composition des JTM doubles étudiées.*

Les premières mesures ont été réalisées à 77 K, sur les échantillons 299 et 443, qui possèdent tous deux la même épaisseur de Co intermédiaire (3 nm). Les résultats sont indiqués dans la figure 2.14, pour différentes valeurs de champ magnétique. Le mode opératoire suivi est le même que celui décrit dans la section précédente.

L'évolution de l'asymétrie avec la tension de mesure suit un comportement similaire dans les deux cas : d'abord une brusque diminution, suivie d'une augmentation et, pour l'échantillon 443, un plateau qui tend à se creuser. On retiendra que, au moins qualitativement, ces résultats semblent en accord avec l'un des scénarios envisagés au début de ce chapitre, à savoir une diminution de l'angle de précession vers zéro à basse énergie. La figure 2.15 rappelle l'évolution de l'asymétrie en fonction de la tension de polarisation, calculée pour deux épaisseurs.

Le comportement observé pour l'échantillon 443 serait explicable par une épaisseur plus élevée (et donc un angle total de précession plus important) que celle de l'échantillon 229. Pourtant, les deux échantillons sont censés posséder la même épaisseur de Co (même si nous

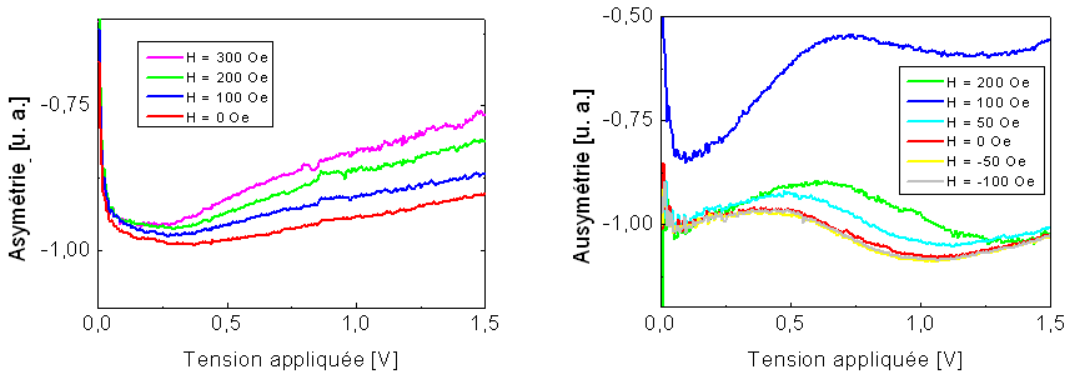


FIG. *2.14 – Évolution du rapport des courants en fonction de la tension appliquée, pour plusieurs champs magnétiques pour l'échantillon 299 (à gauche) et l'échantillon 443 (à droite). Mesures à 77 K.*

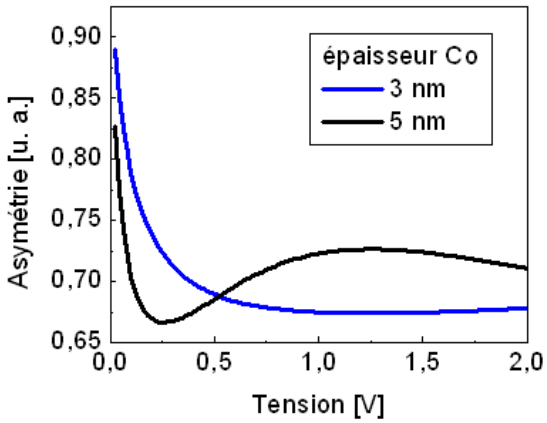


FIG. *2.15 – Prédiction théorique du rapport des résistances en fonction de la tension de polarisation, calculée pour des épaisseurs de Co intermédiaire de 3 nm et 5 nm.*

n'avons pas pu le vérifier). Ce point reste à ce jour inexpliqué.

La figure 2.16 résume les mesures menées à plus basse température (7 K) sur les échantillons 388 (3 nm Co) et 443 (5 nm Co). Le cryostat utilisé pour ces mesures est brièvement décrit au début du chapitre 3.

On retrouve une évolution de l'asymétrie en fonction de la tension similaire à celle mesurée à 77 K. Dans la gamme des tensions mesurées, on ne distingue pas de différences de comportement selon l'épaisseur de Co. On notera là encore des limitations expérimentales : la fragilité des barrières tunnel a rendu impossible l'application de tensions supérieures à 0,5 V. Du fait de ces faibles valeurs, il est impossible de distinguer un comportement en plateau comme on l'a vu pour les précédentes mesures. A cela s'ajoute une dégradation progressive des barrières au fil des mesures successives (problème récurrent avec des barrières tunnel amorphes comme l'Al_2O_3). Cela explique peut-être que l'on ne retrouve pas le même comportement en fonction

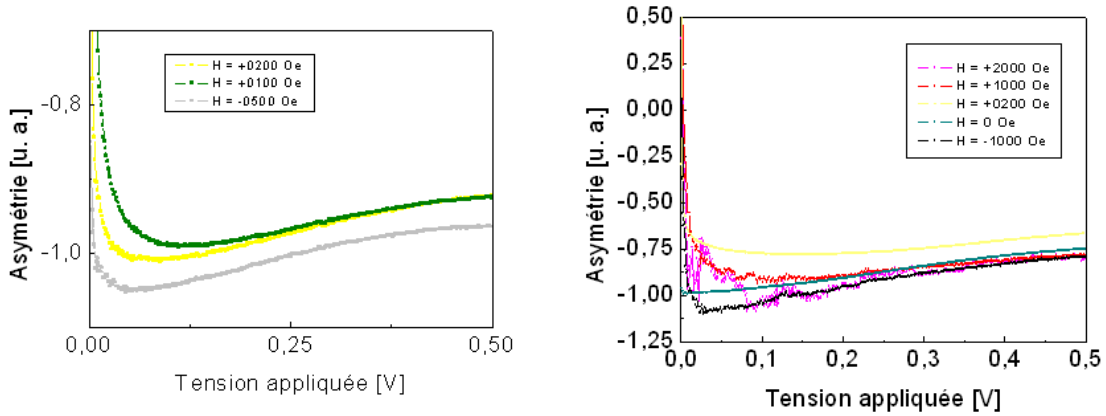


FIG. *2.16 – Rapport des courants mesurés pour les doubles jonctions 388 et 443, avec une couche intermédiaire de cobalt d'épaisseurs respectives de 5 et 3 nm. Données mesurées à 7 K.*

du champ magnétique (dans le cas des premières mesures, à 77 K, l'asymétrie s'atténuait quand diminuait le champ appliqué depuis la valeur de saturation, alors qu'ici aucune tendance nette ne se dégage).

Au final, les mesures à basse température ont permis d'atténuer fortement le niveau de bruit, de sorte à obtenir un signal exploitable. Celles-ci ont permis de mettre en évidence des résultats allant dans le sens d'un des modèles. Mais la fragilité excessive des échantillons a empêché de mener une étude systématique, ce qui rend toute conclusion prématurée.

2.4 Conclusion

Ce chapitre a retracé les premiers travaux menés au tout début de la thèse. Ceux-ci avaient pour objectif de mettre en evidence directement des effets de précession dans des doubles jonctions tunnel magnétiques (DJTM) assemblées à partir de JTM (à aimantations planaires et croisées) développées au laboratoire. Le but était de valider expérimentalement l'approche avant de passer à une étude plus approfondie.

L'assemblage a permis d'obtenir une DJTM fonctionnelle, malgré quelques soucis d'élaboration de la seconde barrière, qui ont nécessité de trouver un compromis restreignant le choix des matériaux utilisables dans la couche active.

Après des premières tentatives de mesure, infructueuses à température ambiante, l'étude s'est poursuivi à basse température, avec cette fois-ci un peu plus de succès. Les quelques résultats obtenus vont dans le sens du modèle simple décrit au début du chapitre. Mais il subsiste encore trop d'ambigüités pour parvenir en l'état à une conclusion ferme.

Une difficulté importante rencontrée vient de la qualité des barrières d'alumine, qui a fortement nui à la reproductibilité des mesures. D'une part, ces JTM ont une TMR qui s'est révélée être trop faible, qui ne permet pas d'apporter un contraste suffisant pour observer la précession. Ces barrières ont aussi une tension de claquage faible, généralement inférieure au volt. Cela

nous limite dans la gamme d'énergies auxquelles on peut étudier la précession.

On peut également citer d'autres problèmes liés au choix des matériaux utilisés dans cet empilement :

- L'utilisation comme couche active d'un matériau comme le cobalt entraîne des effets de filtrage importants, qui polarisent peut-être complètement les électrons avant que ceux-ci n'aient le temps de précesser. Il serait souhaitable de pouvoir remplacer le matériau de la couche intermédiaire par un de polarisation moindre.
- Il semblerait que la longueur de cohérence et le libre parcours moyen des électrons sont trop petits dans ces couches minces élaborées par pulvérisation cathodique. Une piste serait d'élaborer des structures par épitaxie à jets moléculaires, afin de disposer de couches de meilleure qualité cristalline.

Ces points ne remettent pas en cause le concept retenu, mais rendent nécessaire de redévelopper certains aspects du dispositif, notamment les matériaux utilisés. Il a été décidé de continuer à travailler avec des dépôts par pulvérisation cathodique magnétron. L'amélioration des dispositifs passe donc par l'utilisation de barrières tunnel à base de MgO (oxyde de magnésium), matériau qui a permis depuis quelques années l'obtention de performances record de TMR (voir l'introduction), et qui est aujourd'hui privilégié pour la plupart des développements de jonctions tunnel. L'utilisation de ce matériau permettra d'obtenir, dans notre cas, une plus forte TMR, ainsi que des tensions de claquage plus élevées (pouvant atteindre 2 à 3 V).

Le travail qui suit dans la partie III fait donc suite à ce constat. Il est consacré à la mise en place d'un procédé d'élaboration et au développement de jonctions tunnel magnétiques à barrières de MgO, en vue d'élaborer des DJTM qui permettront de poursuivre les travaux sur la précession. Nous rendrons également compte des travaux menés sur l'approche alternative, utilisant des jonctions métal ferromagnétique/oxyde/semi-conducteur, évoquée dans la partie précédente.

Troisième partie

Élaboration de multicouches magnétiques pour l'étude du transport et de la précession d'électrons chauds

Chapitre 3

Étude du transport tunnel dans des jonctions CoFeB/MgO/CoFeB

3.1 Introduction et motivations de l'étude

L'objectif de ces travaux est d'obtenir des jonctions tunnel magnétiques (JTM), en vue de leur intégration dans le dispositif présenté en introduction. En particulier, il est impératif d'obtenir des JTM dont les propriétés générales permettent de dépasser les limitations constatées avec les JTM à barrière d'oxyde d'aluminium (Al_2O_3) lors des travaux exposés dans le chapitre 3. Le choix s'est porté sur des jonctions tunnel à base d'oxyde de magnésium (MgO). Depuis quelques années, ce matériau s'est imposé comme le matériau de référence pour les JTMs, notamment grâce aux valeurs de TMR élevées qu'il permet d'atteindre [42] [43]. De plus, la barrière est capable de supporter des tensions de claquage plus importantes (jusqu'à 2 V), ce qui est un atout supplémentaire au vu des raisons évoquées précédemment.

Jonctions Co/MgO/Co

Les jonctions tunnel étudiées dans cette thèse sont élaborées par pulvérisation cathodique. Des premiers travaux d'élaboration de JTM à barrière de MgO par pulvérisation avaient été menés au laboratoire dès 2004 (voir [57]). Il s'agissait alors de jonctions à barrière de MgO amorphe et à électrodes magnétiques en cobalt.

L'élaboration de la barrière se déroule en deux temps : d'abord, une couche métallique de Mg est déposée sur l'électrode magnétique inférieure. Puis, cette couche est oxydée, de manière identique au procédé suivi pour les barrières d'alumine (oxyde d'aluminium). Il existe plusieurs techniques pour permettre une oxydation (contrôlée ou non) d'une barrière tunnel à partir d'un métal. Pour plus de détails sur leurs mérites comparés et sur leur implémentation pratique, on pourra consulter la thèse de doctorat de Joaquim Nassar [62]. Ici, les barrières sont oxydées par plasma d'oxygène, immédiatement après leur dépôt, et suivant la technique dite de *glow discharge*. Elle consiste à créer un plasma d'un gaz d'oxygène dans le sas du bâti de pulvérisation, en appliquant une différence de potentiel continue entre une cathode et une anode en forme d'anneau, située en amont de l'échantillon à oxyder. Cette technique permet un bon

contrôle du procédé d'oxydation. Elle donne des résultats expérimentaux plus reproductibles et de meilleure qualité par rapport aux procédés d'oxydation thermique ou à l'air libre.

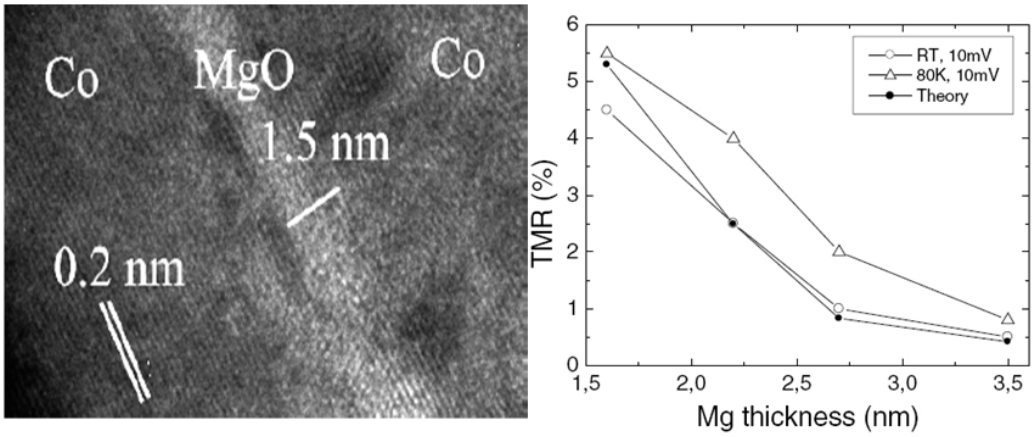


FIG. *3.1 – La figure de gauche est un cliché en microscopie électronique en transmission d'une jonction tunnel Co/MgO/Co, vue en coupe transverse. La barrière de MgO est ici élaborée par oxydation d'une couche de Mg. A droite, les graphes représentent l'évolution de la TMR de ces jonctions en fonction de l'épaisseur de la barrière : pour des mesures (symboles vides) à l'ambiante et à basse température, et l'évolution théoriquement prévue par le modèle de Brinkman (symboles pleins). Extrait de [57].*

Pour ce qui est des performances de ces jonctions, on peut en trouver un résumé dans la figure 3.1). Les résultats de magnéto-transport montrent une TMR qui atteint, au mieux, environ 4.5 % à température ambiante. L'évolution de la TMR en fonction de l'épaisseur de barrière est globalement en accord avec les prédictions théoriques (modèle de Brinkman [33]). Cette valeur de TMR est bien moindre que celle obtenue avec les JTM à barrière d'alumine (avec ces dernières, le maximum jamais obtenu est environ 70 %). Aussi, cette piste a rapidement été abandonée.

Jonctions tunnel CoFeB/MgO/CoFeB

Dans le cadre de ce projet, il a été jugé plus pertinent de travailler avec des jonctions CoFeB/MgO/CoFeB, sur les quelles on peut attendre de meilleures propriétés. Toute la difficulté consiste à réaliser des jonctions de bonne qualité cristalline par pulvérisation cathodique. Ce sont en grande partie celles-ci qui sont responsables des valeurs de TMR élevées, en permetant le transport tunnel cohérent des électrons de symétrie Δ_1.

Le principe de stabilisation de la structure cristalline est cependant différent. En effet, les procédés de dépôt par pulvérisation ne permettent pas de déposer directement des couches avec une qualité structurale obtenue par épitaxie. On doit donc trouver d'autres moyens pour obtenir une jonction dont la qualité cristalline permette l'apparition des effets de filtrage en symétrie. Une telle solution a pu être trouvée grâce à Parkin et coauteurs [51], avec des jonctions polycristallines de CoFe/MgO/CoFeB, puis par Djayaprawira et coauteurs [63] avec des jonctions

CoFeB/MgO/CoFeB.

La solution consiste à utiliser des électrodes de CoFeB à l'état amorphe. Ainsi, le MgO déposé au-dessus de l'électrode inférieure de CoFeB va pouvoir former une couche polycristalline, avec une texture (100) très prononcée. La cristallisation des électrodes amorphes est obtenue par un recuit à haute température (ou *annealing*). Ce recuit va activer la diffusion du bore (B) contenu dans l'alliage, ce qui conduit ainsi à la cristallisation du CoFe dans la structure bcc(100) (*body centered cubic*, cubique centré) au niveau des interfaces avec la barrière. Il a pu être montré que cette cristallisation débute au niveau de l'interface avec le MgO(100), puis se poursuit ensuite vers le reste de l'électrode [64]. Plus la température de recuit est élevée (jusqu'à 500-600˚C), plus la cristallisation des électrodes sera prononcée.

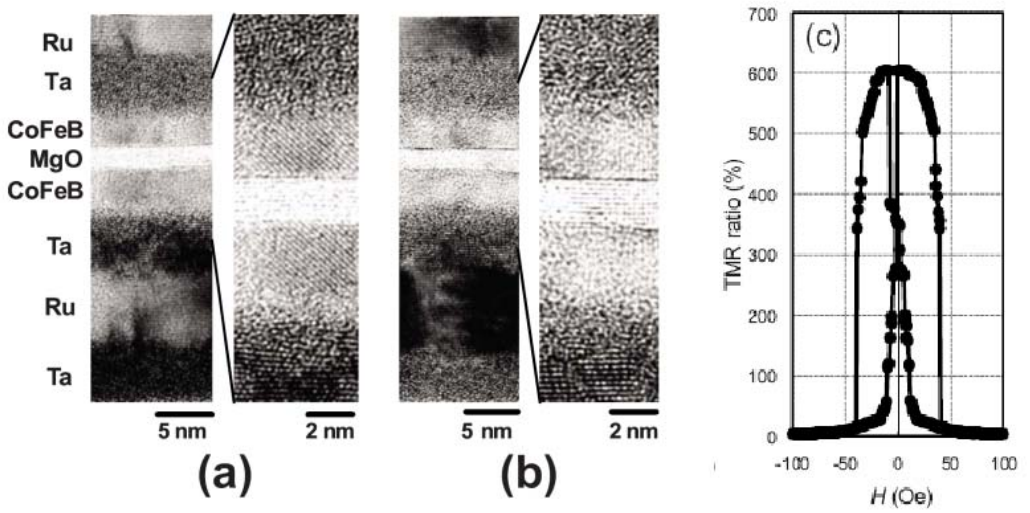


FIG. *3.2 – A gauche, images de microscopie électronique en transmission après recuit (a) à 475˚C et (b) à 600˚C, de jonctions Ta5 / Ru10 / Ta5 /($Co_{20}Fe_{60}B_{20}$)5 / MgO 2.1 /($Co_{20}Fe_{60}B_{20}$)4 / Ta5 / Ru5 (épaisseurs en nm). A droite (c), mesure de TMR, en fonction du champ magnétique appliqué, à température ambiante, sur une jonction du même type, mais avec 6 nm de CoFeB inférieur, recuite à 525˚C. Documents extraits de [52]*

Cette méthode a cependant un inconvénient. En effet, le recuit à haute température va activer la diffusion de cetains des éléments contenus dans l'empilement, comme le tantale, le manganèse, le bore... Leur diffusion entraîne généralement la formation de composés interfaciaux entre les couches de l'empilement, ou l'inclusion d'impuretés dans la barrière [65]. Cela a pour conséquence une dégradation des propriétés de transport, qui se traduit souvent par un effondrement de la TMR.

Ainsi, Hayakawa et coauteurs [66] ont montré que la diffusion du Mn, effective pour des températures de recuits au-dessus de 450˚C, est responsable d'une chute de la TMR à température ambiante. Pour cela, ils ont comparé des JTM avec une couche magnétique dure obtenue par décalage d'échange [67], par ajout d'une couche de piégeage IrMn, et des JTM sans IrMn.

Alors que la TMR des premières plafonne à 360 % (valeur de TMR qui constitue encore le record à ce jour pour ces systèmes), celles des secondes dépasse les 450 %.

De leur côté, Ikeda et coauteurs [52] ont mis en évidence que la diffusion du Ta peut dégrader la barrière et les interfaces de celle-ci avec les électrodes. En limitant sa diffusion, ils ont obtenu des valeurs de TMR de 604 % à température ambiante [52] (voir aussi figure 3.2). Ce résultat constitue un record encore inégalé à ce jour. Ces travaux soulignent l'importance de contrôler la diffusion des éléments lors du recuit. Cela passe par exemple par l'ajout de couches tampon, jouant le rôle de *getter*.

Objectif de l'étude

Il a fallu donc mettre en place au laboratoire, partant de zéro, un procédé d'élaboration par pulvérisation cathodique, qui permettrait de reproduire ces résultats. Nous avons travaillé sur des JTM utilisant le décalage d'échange, afin de pouvoir bénéficier d'un meilleur contrôle des propriétés magnétiques de la jonction. Cette méthode a donné des résultats probants, qui seront présentés en début du chapitre. Après optimisation des conditions de dépôt, nous avons réussi à élaborer, de manière reproductible, des jonctions qui affichent 140 % de TMR à température ambiante et des tensions de claquage supérieures à 2 V. Ces performances supérieures à celles obtenues au laboratoire avec les barrières à Al_2O_3. Mais elle restent encore en-deçà du record de 360 % [66] pour les systèmes avec IrMn.

Ce résultat est, en soi, satisfaisant pour les besoins de la thèse. Les contraintes de temps imposées par le projet n'ont pas permis de pousser les travaux plus loin pour arriver à atteindre l'état de l'art. Dans ce manuscrit, nous ne nous attarderons pas à détailler le travail de développement accompli pour parvenir à ce résultat, car il n'apporte ici rien de fondamentalement nouveau, scientifiquement parlant. Pour de plus amples détails sur l'état de l'art, on pourra se reporter à l'article de revue de S. Yuasa [68], aux références citées dans cette section, ainsi qu'aux citations qu'elles contiennent.

Les travaux qui suivent portent sur un aspect plus fondamental du transport polarisé en spin dans ces jonctions tunnel. En effet, les mesures de magnéto-transport à basse température à basse température ont révélé la présence d'anomalies de conductance (ZBA), à tension nulle, en configuration parallèle. Ce dernier point est intéressant, car cet effet n'est pas observé sur les jonctions tunnel épitaxiées Fe/MgO/Fe réalisées au laboratoire (elles en présentent seulement en configuration magnétique antiparallèle, ce qui est beaucoup mieux compris par les modèles actuels). Concernant la ZBA dans les JTM obtenues par pulvérisation, quelques groupes concurrents ont récemment rapporté des observations analogues sur des systèmes proches du notre [69] [70] [71], sans toutefois s'attacher à en préciser l'origine. Nous montrerons que cette anomalie peut en partie être expliquée par l'état de désordre structurel constaté dans les électrodes magnétiques (et surtout à leur interface avec la barrière). La compréhension de l'origine de la ZBA se justifie pour mieux comprendre les mécanismes fondamentaux de transport polarisé en spin, ce qui peut contribuer à améliorer la TMR des jonctions en vue d'applications pratiques.

3.2 Jonctions tunnel magnétiques CoFeB/MgO/CoFeB

3.2.1 Élaboration et caractéristiques

Élaboration des jonctions

Les jonctions tunnel magnétiques ont été élaborées par pulvérisation cathodique ; une brève présentation du procédé est fournie en annexe. Un travail d'optimisation, jouant sur plusieurs paramètres clef (conditions de dépôt, épaisseurs de la barrière et des électrodes, conditions et températures de recuit) a permis d'obtenir des performances convenables en termes de reproductibilité, de stabilité et, surtout, de TMR.

Les jonctions présentées dans ce chapitre ont la composition suivante : *Verre / Ta 5nm / Co 10nm / IrMn 7.5nm / CoFeB 4nm / MgO x nm / CoFeB 5nm / Ta 5nm / Pt 3nm*. Les épaisseurs sont données en nanomètres. L'épaisseur de la barrière avec laquelle on travaille varie entre 2 et 3 nm. Cette barrière d'oxyde est déposée directement par pulvérisation, sans phase d'oxydation, à partir d'une cible de MgO commerciale. Le dépôt est réalisé par pulvérisation cathodique en mode AC, puisque le matériau est un isolant. La couche déposée va fortement texturer suivant la direction (100).

Les couches de Ta amorphe jouent le rôle d'espaceurs. D'une part, elles permettent de freiner la diffusion de certains éléments lors des recuits en température. D'autre part, leur caractère amorphe leur permet de servir de couches tampon, que l'on intercale entre deux couches dont l'arrangement cristallin est autrement peu compatible. Par exemple, pour éviter que le Co, qui texture suivant l'orientation fcc(111), n'induise une texture parasite du CoFeB suivant cette orientation.

Le dépôt des couches de l'alliage CoFeB est réalisé à partir d'une cible commerciale, de composition $Co_{40\%}Fe_{40\%}B_{20\%}$ (la composition est donnée en pourcentages atomiques). Le pourcentage de bore est choisi, supérieur à 10 %, afin que la couche de CoFeB déposée soit amorphe. Comme on l'a expliqué précedemment, cela est nécessaire pour obtenir une jonction de bonne qualité cristalline. Sa cristallisation va être réalisée postérieurement au dépôt, en recuisant l'échantillon à température élevée.

Ces recuits sont aussi nécessaires pour obtenir le découplage magnétique des deux couches ferromagnétiques. En effet, pour contrôler l'aimantation des deux électrodes à l'aide d'un champ magnétique externe, il faut qu'elles aient des champs coercitifs différents. Comme les deux électrodes magnétiques sont quasiment identiques, on ne peut pas jouer sur l'épaisseur ou le matériau. On va donc « durcir » magnétiquement l'une des électrodes par couplage d'échange [67], en ajoutant à l'empilement un métal antiferromagnétique (en l'occurrence, un alliage $IrMn_3$). Les interactions à l'interface entre le ferromagnétique et l'antiferromagnétique vont conduire à un décalage du cycle d'aimantation de la couche ferromagnétique, augmentant ainsi son coercitif. L'anisotropie est contrôlée en recuisant l'échantillon à une température supérieure à la température dite de blocage, puis en appliquant un champ magnétique lors de son refroidissement [72].

Les recuits sont effectués dans un four fabriqué au laboratoire. Les échantillons sont placés

dans une enceinte sous vide (sous une pression de l'ordre de 10^{-7} mbar). Le chauffage est effectué grâce à une lampe halogène de 100 W, pilotée en courant. L'échantillon est graduellement porté à la température souhaitée, puis y est maintenu pendant une heure. Un électro-aimant permet d'appliquer un champ magnétique de 200 Oe pendant toute la durée de l'opération.

Les jonctions sont ensuite structurées par photolithographie UV, suivant le procédé détaillé en annexe. Les masques utilisés permettent de définir des jonctions dont la taille latérale va de 10 μm à 40 μm. Les jonctions étudiées ci-après possèdent une taille latérale de 10 μm, car c'est sur celles-ci que nous observons le maximum de TMR. En effet, plus la surface de la jonction est grande, plus sa résistance est petite. La contribution résistive des électrodes, mesurée dans une configuration en deux-points n'est alors plus négligeable, et tend à réduire la TMR mesurée.

Mesures de magnéto-transport

Les mesures de magnéto-transport sont le principal outil dont nous disposons pour caractériser les jonctions tunnel magnétiques : on étudie les caractéristiques électriques du dispositif en fonction de son état magnétique.

Ces mesures ont été réalisées en configuration « deux pointes », sur un sourcemètre « Keithley 2400 », permettant d'obtenir une sensibilité de mesure allant jusqu'à 10 nA. Les mesures sont faites à tension constante ; sauf précision contraire, la tension de polarisation V_p appliquée est de + 10 mV. Dans tout ce qui suit, la borne + du sourcemètre est reliée à l'électrode supérieure de la jonction (ce qui signifie qu'en tension positive, les électrons sont injectés depuis l'électrode du bas vers celle du haut).

Le champ magnétique est généré par un électro-aimant, qui peut atteindre au plus 0,5 T. La configuration d'aimantation parallèle (P) est obtenue en saturant l'aimantation de l'échantillon à H = - 1500 Oe ; celle d'aimantations antiparallèles (AP) est obtenue en saturant à H = - 1500 Oe, puis en appliquant un champ de 200 Oe. Le champ magnétique est appliqué dans la direction de l'axe de facile aimantation de l'échantillon.

Les mesures à basse température ont été réalisées sur un cryostat à hélium gazeux (ARS Cryo Displex), fonctionnant en boucle fermée. Ce type de système est ici plus avantageux que les cryostats à hélium liquide, car il ne nécessite pas de réaliser de pénibles et coûteux transferts d'hélium pour recharger le réservoir. On peut donc effectuer des mesures sur de plus longues durées, plusieurs jours, voire semaines, sans dégradation des performances, et donc sans risque d'abimer l'échantillon. La contrepartie est, bien évidemment, une température minimale plus élevée. Théoriquement prévu pour descendre jusqu'à 4,2 K, ce cryostat ne nous a pas permis de réaliser des mesures utiles en-deçà de 7 K.

Caractéristiques générales des jonctions étudiées

Présentons maintenant quelques caractéristiques générales des jonctions. La jonction présentant de meilleurs résultats étant celle ayant été recuite à 300°C, c'est celle-là que nous montrerons, sauf comparaison ou précision contraire.

La figure 3.3 représente la résistance mesurée sur une jonction (recuite à θ = 300˚C) en fonction du champ magnétique appliqué (suivant la direction de facile aimantation des électrodes magnétiques), pour trois températures de mesure : à T = 300 K (température ambiante), à 40 K et à 7 K.

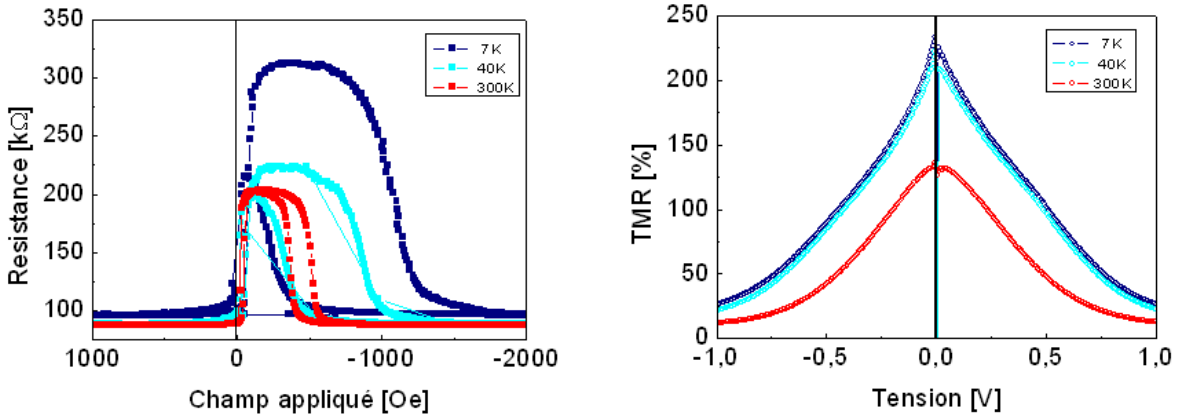


FIG. *3.3 – Caractéristiques des jonctions élaborées, après recuit à 300˚C, ici avec une barrière de 3 nm d'épaisseur. Les courbes montrent la résistance en fonction du champ magnétique appliqué (à gauche) et l'évolution de la TMR en fonction de la tension de polarisation (à droite). Mesures effectuées à 300K, 50K et 7K.*

On distingue bien les deux configurations magnétiques découplées : un plateau de résistance élevée pour la configuration d'aimantations antiparallèles (AP), et une basse résistance pour la configuration d'aimantations parallèles (P). Quant à l'évolution en fonction de la température, on constate que la résistance dans la configuration AP augmente significativement quand T diminue. La TMR à tension nulle atteint 130 % dans le cas des jonctions recuites à 300˚C.

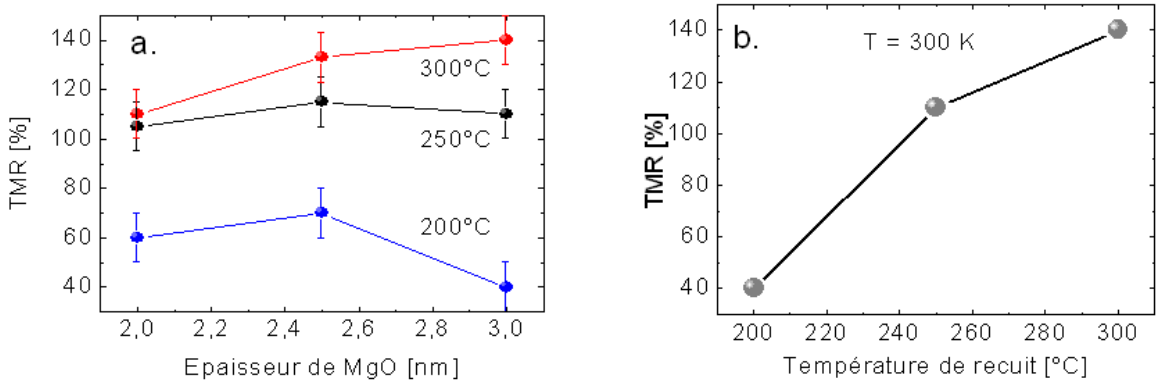


FIG. *3.4 – Évolution de la TMR en fonction [a] de la température de recuit (θ) ; mesure à température ambiante. [b] de l'épaisseur de barrière, mesurée à 7 K et 300 K.*

La figure 3.4 présente l'évolution de la TMR en fonction de l'épaisseur de barrière et en fonction de la température de recuit. Les résultats indiquent que les recuits en température donnent lieu à l'apparition d'effets de filtrage en symétrie. En effet, lorsque l'effet de filtrage en symétries n'est pas ou peu présent, la théorie prévoit une décroissance de la TMR quand l'épaisseur augmente (voir le chapitre 2). C'est le cas des jonctions faiblement cristallisées, ici celles dont la température de recuit est faible (200˚C et 250˚C). Au contraire, la présence d'effets de filtrage en symétrie doit causer une augmentation de la TMR avec l'épaisseur de barrière, ce que l'on observe à partir de 300˚C de recuit. Ce comportement de la TMR, ainsi que son augmentation avec la température de recuit, indiquent donc indirectement que le recuit a permis une amorce de cristallisation de la jonction.

Pour de plus hautes températures de recuit supérieures à 350 ˚C, en revanche, la TMR disparaît.

3.2.2 Propriétés de transport à basse température

Les mesures de conductance dynamique (dI/dV), dérivées de la caractéristique courant-tension des jonctions, sont tracées figure 3.5. Dans la configuration d'aimantations parallèles (respectivement antiparallèle), la courbe [a] (resp. [c]) représente la conductance mesurée à différentes températures. La figure [b] (resp. [d]) présente l'évolution de la conductance en fonction des températures de recuit. Pour faciliter la comparaison, les données ont été normalisées par rapport à la valeur de conductance à tension nulle.

En diminuant la température, on observe deux effets notables : l'apparition d'un double minimum à tension non nulle (dans l'état parallèle seulement), et une chute de la conduction à basse tension (pour les deux configurations magnétiques).

A température ambiante, la conductance dans l'état parallèle présente un aspect parabolique, ce qui est typique du transport tunnel. Il faut cependant descendre à basse température (10 K) pour que ces effets soient plus prononcés. Là, son évolution en fonction des recuits successifs témoigne d'une amorce de la cristallisation de l'interface électrode-barrière, et ce des deux côtés de la barrière (on voit la diminution, puis disparition de l'asymétrie en tension). Le double minimum, présent de part et d'autre à une tension Vp d'environ $\pm$ 350 mV, confirme cette interprétation : ces épaulements sont la signature d'effets de filtrage en symétrie [73], et plus précisément de la contribution au processus de conduction tunnel d'électrons majoritaires de symétrie Δ_5, et d'électrons de spin minoritaires de symétrie Δ_1.

Le second point à basse température est plus surprenant : la conduction diminue fortement au voisinage de $V_p = 0$. Ce phénomène n'est pas totalement inconnu, et nous y reviendrons dans la section suivante. Il apparaît dans la littérature sous le nom d'anomalie de conductance à tension nulle, ou « ZBA » (de l'anglais *zero bias anomaly*), acronyme que nous utiliserons dans la suite dans ce chapitre.

La figure 3.6 est un agrandissement des courbes de conductance dynamique recentrées sur les basses tensions, ce qui permet de mieux distinguer la ZBA et apprécier son évolution en fonction des paramètres que sont la température de mesure et la température de recuit. Pour

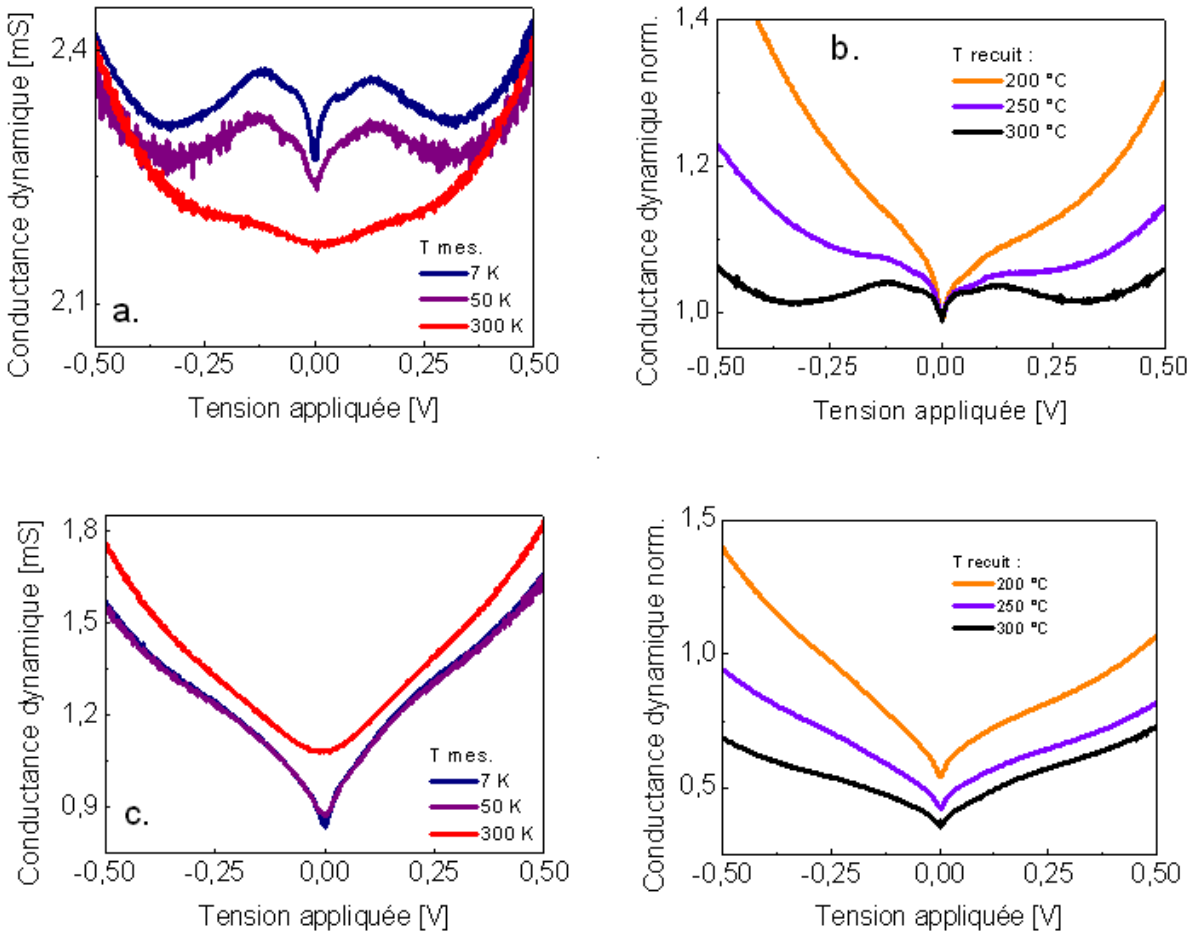


FIG. *3.5 – A gauche : conductance dynamique d'une jonction tunnel, recuite à 300˚C, pour les états parallèle (haut) et antiparallèle (bas). Résultats pour 7K, 50 K, 300 K. A droite : conductance dynamique mesurée à 10 K, sur une des jonctions recuites à 200˚C, 250˚C et 300˚C, pour les états parallèle (haut) et antiparallèle (bas).*

quantifier son amplitude, nous adoptons la convention suivante, systématiquement rencontrée dans la littérature traitant du sujet :

$$\text{ZBA (en \%)} = \frac{G(+100\text{mV}) - G(0)}{G(0)}$$

On remarque que la ZBA, absente à température ambiante, commence à apparaitre en-dessous de 100 K, et augmente lorsque la température diminue, et ce en P comme en AP (figure 3.7). En revanche, les deux suivent une évolution contradictoire en fonction du recuit : la ZBA en P diminue, alors que la ZBA en AP augmente. Les deux sont dépendantes de l'épaisseur, et diminuent fortement quand l'épaisseur de la barrière est réduite. Enfin, la ZBA en configuration parallèle ne dépend pas de la valeur du champ magnétique utilisé pour saturer les électrodes, du moins jusqu'à 0,5 T (figure 3.8).

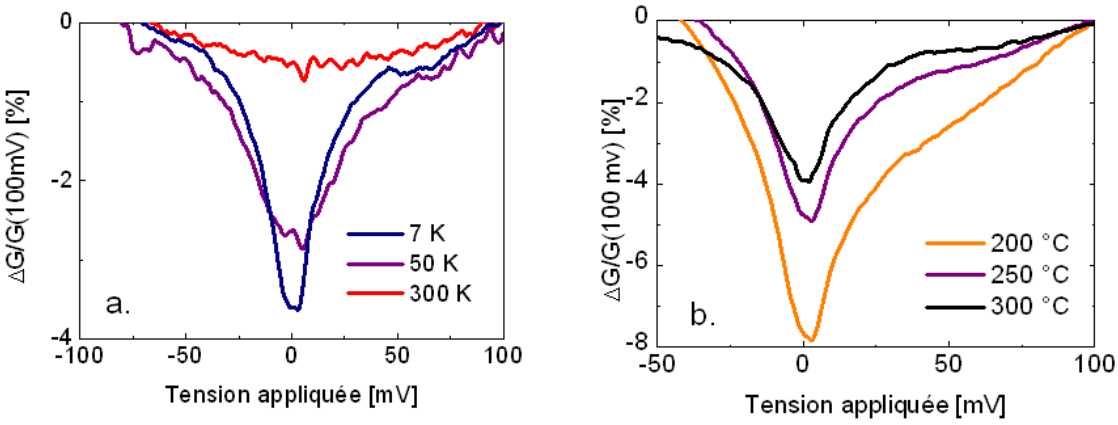


FIG. *3.6 – Grossissement sur les basses tensions de la courbe de conductance dynamique, normalisées par G(100 mV) montrant l'évolution de l'anomalie de conductance en fonction [a] de la température de mesure, pour un échantillon recuit à 300°C. [b] des conditions de recuit ; mesures à 10 K.*

Les différences de comportement observées entre les ZBA pour les conductances parallèle et antiparallèle laissent présager que deux mécanismes sous-jacents bien distincts sont à l'œuvre. Le cas qui nous intéresse est celui de la ZBA dans la configuration parallèle qui, au contraire de l'autre configuration, n'a jamais été observé dans des JTM à barrières de MgO épitaxiées, et dont la compréhension est incertaine [69] [70] [71]. C'est donc sur ce dernier que portera le reste du chapitre.

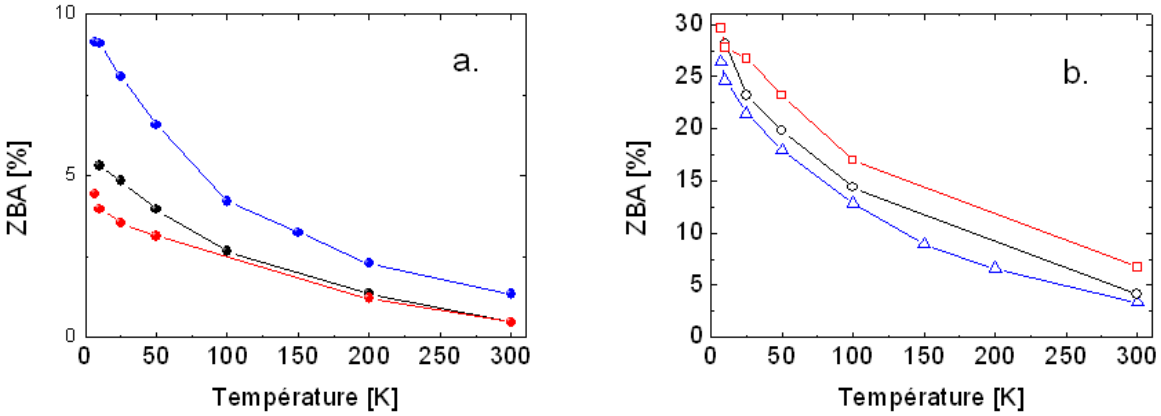


FIG. *3.7 – Evolution de la ZBA en fonction de la température de mesure, pour plusieurs températures de recuit, et pour les configurations d'aimantation [a] parallèle et [b] antiparallèle.*

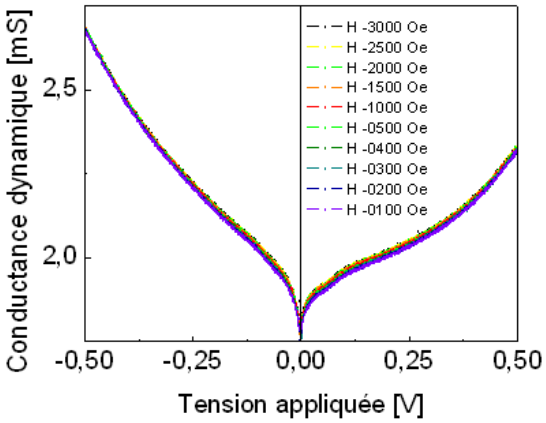


FIG. *3.8 – Conductance dynamique dans la configuration parallèle, en saturant à différents champs magnétiques de plus en plus élevés, jusqu'à un demi-tesla. On ne constate aucune variation de l'amplitude de la ZBA.*

3.3 L'anomalie de conductance à tension nulle (ZBA)

L'anomalie de conductance à tension nulle est fréquemment observée dans les caractéristiques courant-tension de jonctions tunnel. Les premières observations de ZBA remontent aux années 1960, ou divers auteurs ont rapporté son observation dans des jonctions tunnel semiconductrices p-n [74], puis dans des jonctions tunnel métal/isolant/métal [75], [76]. Ce terme de ZBA désigne seulement le comportement que suit la conductance à tension « nulle » (la dénomination est un peu abusive, puisqu'en fait le pic de conductance s'étale sur plusieurs dizaines de millivolts autour du point $V = 0$). De fait, elle n'a pas d'origine unique, et aux différentes observations correspondent souvent une grande variété de mécanismes physiques [77].

L'obtention des premières mesures de TMR à température ambiante [6] dans des jonctions ferromagnétique/isolant/ferromagnétique s'est accompagnée d'un regain d'intérêt pour ce phé-

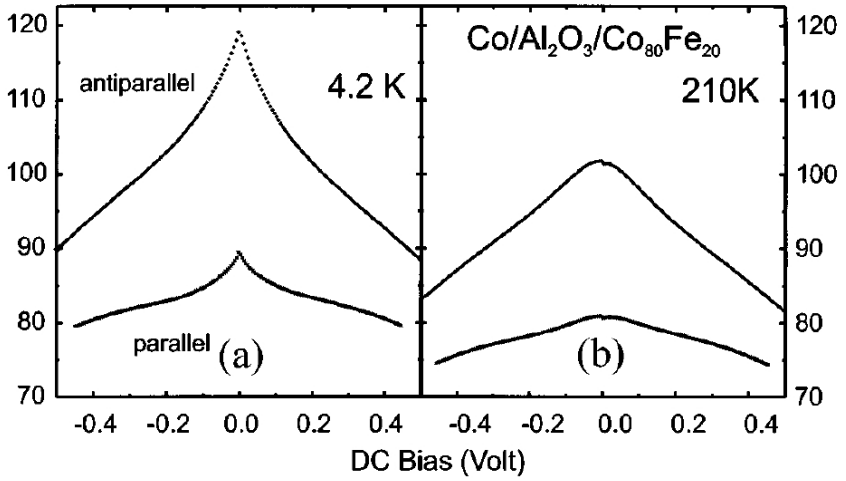


FIG. *3.9 – Observation de la ZBA à basse température dans des jonctions tunnel magnétiques Co/alumine/CoFe.Les courbes montrent la résistance mesurée en fonction de la tension de polarisation (*DC bias*), pour les deux configurations magnétiques (*parallel *et* antiparallel*), à 4,2 K [a] et à 210 K [b]. Image tirée de l'article [79].*

nomène de ZBA [78]. C'est pour ces dernières que nous allons voir quelqques unes des principales explications avancées dans la littérature.

Duke fut le premier à identifier le rôle des excitations collectives aux interfaces [80] dans l'anomalie de conductance présente dans des jonctions tunnel non-magnétiques. Depuis, dans des JTM, ont été identifiés [79] [78] des mécanismes faisant intervenir des magnons aux interfaces entre la barrière et les électrodes. Le mécanisme explique convenablement la ZBA en AP. En configuration magnétique antiparallèle, des processus de *spin-flip* (retournement du spin) donne lieu à un canal de conduction majoritaire-majoritaire entre les deux électrodes magnétiques, ce qui n'est normalement pas permis en régime de transport tunnel ordinaire.

Les facteurs intrinsèques reposent sur la présence de défauts et d'impuretés, magnétiques ou non, au sein de la barrière tunnel. Du point de vue du transport, ils se comporter comme des centres diffuseurs, et peuvent donner lieu à des mécanismes de transport complexe au travers de la barrière (mécanismes de transport séquentiel élastique ou inélastique) [81].

Cette explication semble être confirmée expérimentalement par [82], qui étudient une jonction tunnel dont l'une des électrodes magnétiques a été remplacée par une barrière de vide (*vacuum barrier*), qui ne peut donc pas contenir de défauts, et une pointe de microscope à effet tunnel (STM). La conductance tunnel mesurée ne présente alors pas de ZBA.

D'autres modèles vont plus loin en considérant une combinaison d'effets extrinsèques et intrinsèques, comme Sheng et coauteurs [83], qui proposent un modèle basé sur le couplage entre des interactions électron-phonon et la présence d'impuretés magnétiques dans la barrière.

Enfin, la ZBA peut aussi être une manifestation de l'effet Kondo [84] dans des jonctions

tunnel. Les centres Kondo sont ici des impuretés magnétiques dans la barrière. Cette possibilité avait déjà été évoquée dans des jonctions tunnel non-magnétiques contenant des impuretés magnétiques [77]. Une étude récente [85] en a apporté la confirmation expérimentale dans une jonction tunnel magnétique. Les JTM CoFe/Al_2O_3/CoFe, préparées par pulvérisation cathodique et oxydation plasma, contiennent des impuretés de Fe dans une matrice d'Al-Fe-O. La JTM présente une anomalie de résistance à basse température, fortement dépendante de la température, due à la diffusion des électrons tunnel par les impuretés magnétiques. De plus, la TMR est, pour $T < T_K$ (T_K étant la température Kondo) fortement atténuée, le canal de conduction associé aux électrons diffusés devenant prépondérant devant le transport tunnel.

3.4 Origines de la ZBA dans nos jonctions tunnel magnétiques

Comme on l'a évoqué plus haut, des mesures de transport dans des jonctions tunnel épitaxiées Fe/MgO/Fe ont montré une absence de ZBA en configuration d'aimantations parallèles (figure 3.10). Si on considère uniquement le rôle des magnons, cela peut se comprendre avec le filtrage en symétries.

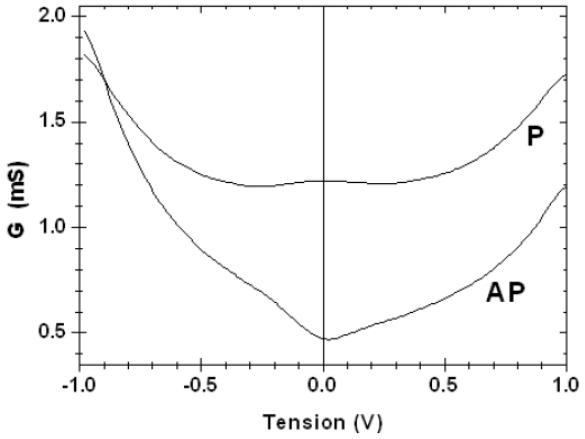


FIG. *3.10 – Conductance dynamique mesurée sur une JTM Fe/MgO/Fe épitaxiée au laboratoire. On voit qu'à basse tension, les conductances ne présentent pas d'anomalie en configuration d'aimantations parallèles (P). Courbe issue de [7].*

Dans le cas d'une telle jonction, les électrons ayant subi une diffusion sans conservation du spin ne peuvent pas participer au transport tunnel. En effet, on a vu dans le chapitre précédent que, dans le système épitaxié Fe/MgO/Fe, le transport en configuration P est principalement assuré par les électrons de symétrie Δ_1. Dans les électrodes, pour les porteurs de spin minoritaire, seuls sont présents les états de symétries Δ_5 et $\Delta_{2'}$. Un électron de symétrie Δ_1 subit un changement de spin (majoritaire vers minoritaire), il ne pourra pas traverser la barrière, faute d'état disponible dans la seconde électrode.

Ainsi, la présence de ZBA dans les jonctions élaborées par pulvérisation trahit le fait que le transport n'est pas totalement gouverné par les mécanismes de filtrages en symétries, laissant

présager d'une qualité cristalline imparfaite.

3.4.1 Spectres de conductances tunnel (IETS)

Afin d'y voir plus clair sur la nature de l'origine de la ZBA, nous avons analysé les spectres de conductance tunnel inélastique [86] (IETS, pour *inelastic electronic tunneling spectra*) à basse température (10 K). Ces spectres, dérivés de la conductance dynamique, sont un outil spectroscopique d'étude des mécanismes de tunnel inélastiques et leurs énergies d'excitation associées (on considère que l'application d'une différence de potentiel V_p aux bornes de la jonction correspond à une excitation d'énergie eV_p).

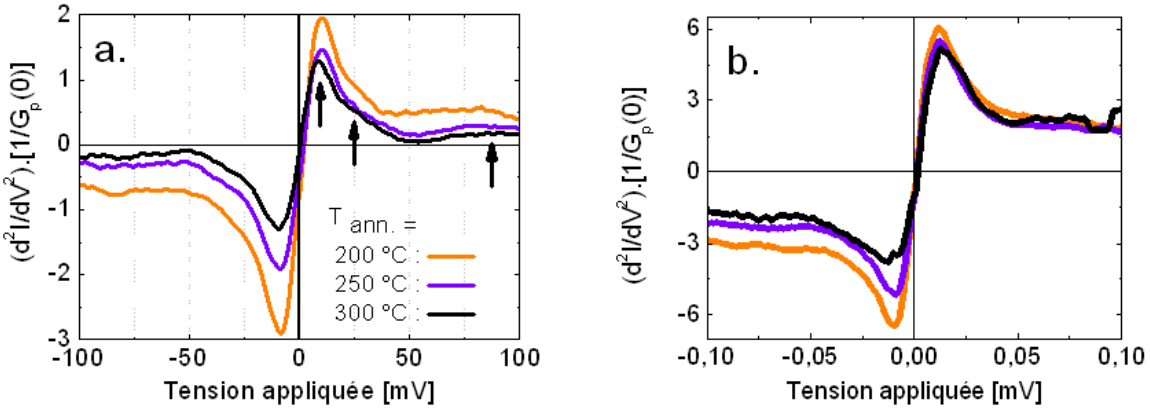


FIG. *3.11 – Spectres IETS spectres correspondant aux trois températures de recuit, pour une mesure à 10 K, pour la configuration magnétique respectivement [a] parallèle et [b] antiparallèle.*

La figure 3.11 présente les spectres (normalisés par rapport à la valeur de conductance à tension nulle) en fonction de la tension de polarisation, pour chacune des deux configurations d'aimantation, et montre leur évolution en fonction des conditions de recuit. On observe clairement plusieurs pics, symétriques en tension, qui correspondent aux états d'excitation pour le processus de conduction. Dans la configuration magnétique parallèle, on observe trois pics, indiqués par des flèches, d'énergies respectives 10 mV, 35 mV et 80 mV.

Plusieurs études expérimentales ont été menées dans la littérature [87], [88], [89], [90], [91], faisant apparaître des divergences quant à leur signification. Le pic de plus haute énergie est généralement attribué, sans ambiguïté, à des excitations de phonons dans la barrière [87]. L'énergie d'excitation associée (80 meV) correspond à celle d'un des modes de phonons du MgO *bulk* [92]. Celui d'énergie de 35 meV est associé à des excitations de magnons. La nature de l'excitation associée au pic de basse énergie est moins claire. Selon les études, elle est dire correspondre à la présence dans la barrière d'impuretés (et/ou de défauts) ayant une influence sur le transport [89], [90], [88]. Dans certaines études [91], le deuxième pic (plus large et d'amplitude moins élevée que les autres) est carrément inaperçu, et c'est l'excitation à plus basse énergie qui est dit correspondre à des excitations de magnons. Nous allons dans la suite nous

intéresser à ce pic de basse énergie. Nous considèrerons le rôle que jouent dans nos jonctions les défauts de volume et les défauts aux interfaces. Nous verrons qu'aucun de ces mécanismes ne rend complètement compte de l'effet de ZBA observé, et qu'une explication nouvelle (du moins pour ces systèmes là) est nécessaire.

3.4.2 Défauts dans la barrière, défauts de volume

Cette hypothèse postule la présence de défauts de volume au sein de la barrière, qui jouent un rôle sur le transport tunnel. Ici, le terme de défaut peut aussi bien concerner des défauts physiques de type « trou d'aiguille », que des impuretés ayant diffusé lors des recuits. Il est connu que de tels défauts puissent avoir une influence sur le processus de conduction, notamment par le biais de mécanismes de tunnel assisté (saut en chaîne, ou *chain hopping*) qui viennent s'ajoutent au transport tunnel polarisé en spin.

Pour tester cette hypothèse, nous avons procédé à une vérification en deux temps. D'abord, une analyse de spectroscopie de photoélectrons induits par rayons X (XPS, *X-ray photoemission spectroscopy*, parfois aussi appelée ESCA, pour *electron spectroscopy for chemical analysis*). L'objectif est de connaître la composition chimique des éléments présents au niveau de la barrière, afin de déceler la présence éventuelle d'impuretés (magnétiques ou non) résultant de la diffusion activée (volontairement ou pas) par le recuit de l'échantillon. Ensuite, des considérations sur les propriétés de magnéto-transport nous permettront de vérifier si la conductance présente ou non la signature de modes de transport assisté par des défauts.

Analyses XPS de la composition chimique de la barrière

On rappelle brièvement les principes de cette technique d'analyse, ici utilisée pour obtenir un profil en profondeur de la composition chimique de nos échantillons. L'élément à étudier est irradié par des rayons X d'énergie donnée, de sorte à « arracher » des électrons par effet photoélectrique. Ces électrons sont collectés, et leur énergie est analysée ; on en tire l'énergie de liaison correspondante, ce qui nous renseigne sur l'élément chimique et son état électronique. Pour plus de précisions sur cette technique, on pourra consulter [93].

Deux échantillons identiques à ceux étudiés en transport ont été préparés (mais non structurés), puis recuits séparément, l'un à 200°C et l'autre à 300°C. Les mesures ont été effectuées au laboratoire grâce à Marc Alnot. Les échantillons ont été gravés avec un plasma de gaz argon Ar+ et analysés avec une source de rayons X Al K_α (λ = 1486,6 eV). Nous nous sommes focalisés sur les éléments manganèse (Mn) et bore (B), qui, parmi ceux présents dans la structure, sont les plus susceptibles de diffuser lors du recuit.

Une vue globale des résultats est donnée dans la figure 3.12. Les intensités des raies des différents éléments sont indiquées, en fonction de la durée de gravure. Cette durée, notée « temps de bombardement » sur les figures, est proportionnel à la profondeur à laquelle est analysée l'échantillon. La barrière tunnel est atteinte après environ 180 minutes de gravure. L'électrode métallique inférieure l'est après environ 260 minutes de gravure.

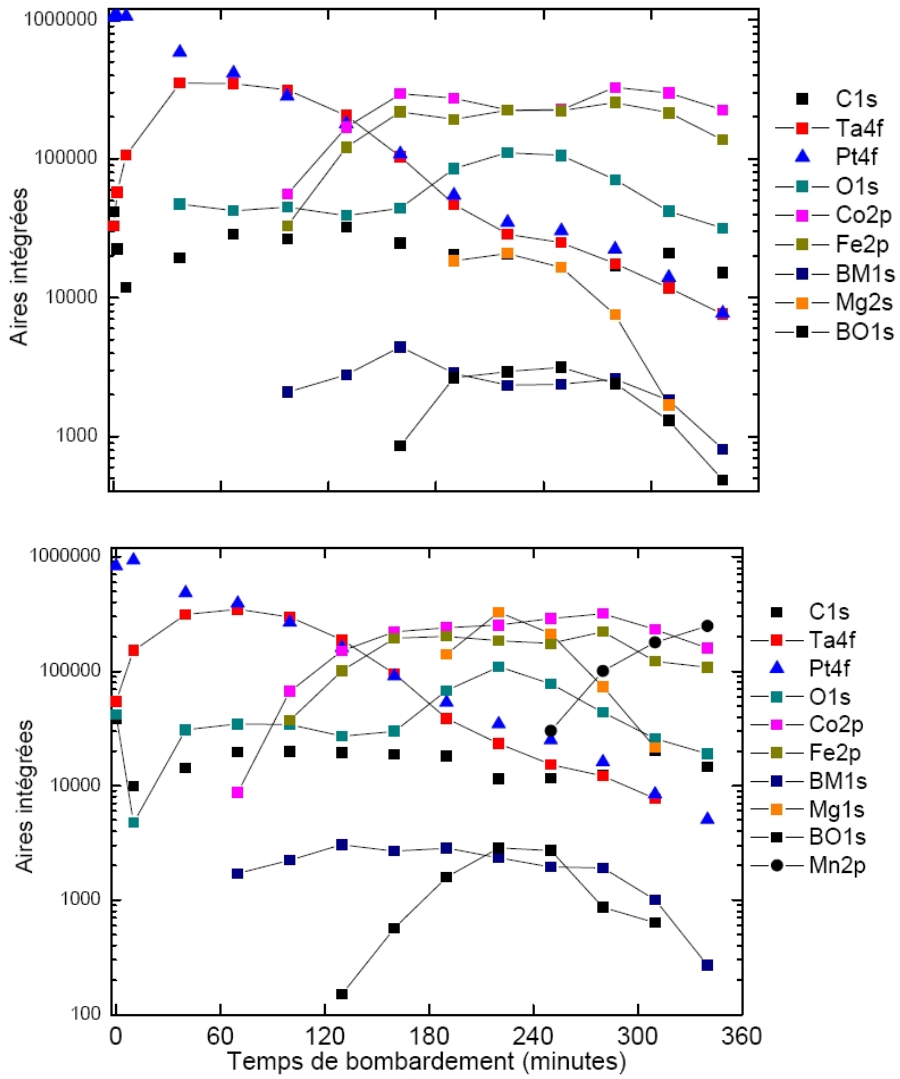


FIG. *3.12 – Les courbes représentent, pour les échantillons recuits à 200˚C [a] et 300˚C [b], l'évolution de l'intensité du signal pour chacune des raies des éléments, en fonction de la durée de gravure de l'échantillon.*

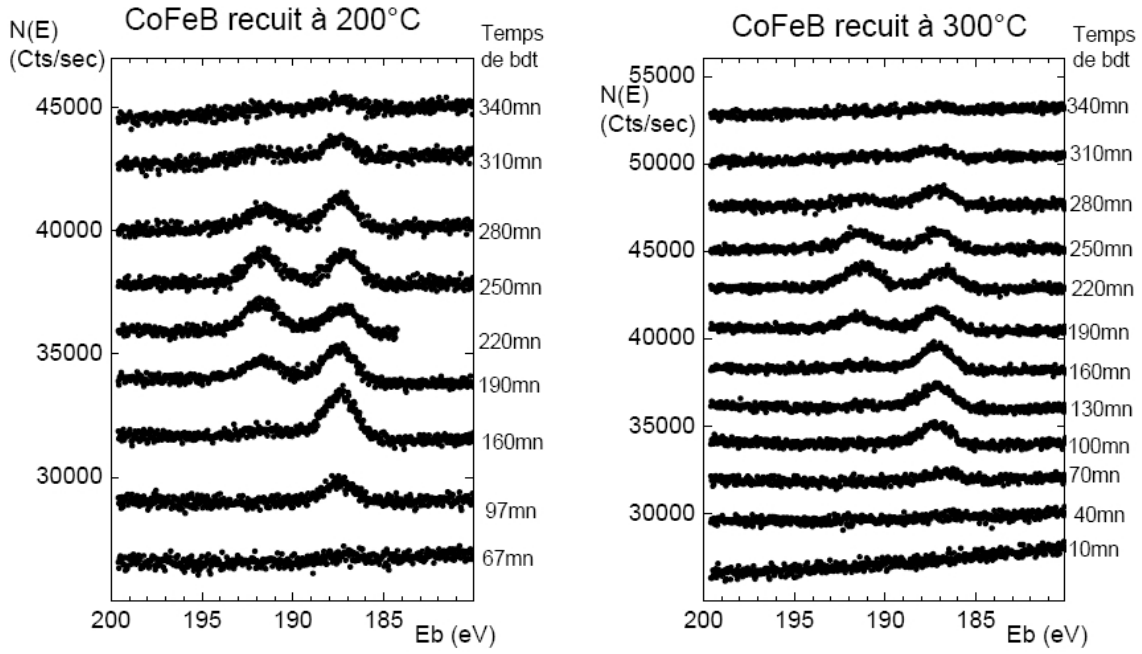


FIG. *3.13 – Spectres correspondant à la raie $B1s$: intensité en fonction de l'énergie de liaison. Les courbes sont superposées en fonction de la profondeur de gravure. Les images [a] et [b] correspondent respectivement aux échantillons recuits à 200˚C et 300˚C. On voit apparaître deux pics, pour des valeurs d'énergie E_b correspondant aux énergies de liaison caractéristiques du bore métallique (187 eV) et du bore oxydé (192 eV). Les spectres sont superposés verticalement, chacun ayant été enregistré à une profondeur d'échantillon différente, indiquée sur l'échelle de droite.*

Ces résultats sont interprétés comme suit :

- Dans le cas de l'élément manganèse (raie Mn2p), l'analyse montre, après recuit à 300˚C, une intensité qui varie peu dans la barrière. On peut raisonnablement penser que la diffusion du Mn dans le MgO est négligeable.
- Dans le cas de l'élément bore, le détail du spectre B1s est présenté dans la figure 3.13. Pour les deux températures de recuit, du bore est présent à proximité de la barrière, sous la forme d'un oxyde de bore [94]. En effet, pour des profondeurs correspondant à la position de la barrière, on voit apparaître sur le spectre un second pic, à une énergie correspondant à l'énergie de liaison du bore oxydé (environ 192 eV). Sa concentration est faible, et ne varie pas sensiblement en fonction de la température de recuit. De plus, elle reste à peu près constante autour de la barrière. Cela dit, nous ne disposons pas de suffisamment de résolution pour déterminer avec précision la position du bore.
- On observe bien une diffusion du tantale (Ta) dans l'échantillon, comme cela est attendu [52]. Sa répartition dans l'échantillon ne varie toutefois pas sensiblement en fonction du recuit.

En résumé, les analyses XPS montrent qu'il n'y a pas, ou très peu, de Mn dans la barrière.

D'autre part, les analyses confirment la présence de bore dans la barrière (sous forme d'oxyde de bore), ainsi qu'au niveau des interfaces avec les électrodes. En tout cas, il n'est présent qu'en faible concentration, qui de surcroît ne varie pas sensiblement en fonction de la température de recuit. Or, la ZBA s'atténue très sensiblement lorsqu'augmente la température de recuit. On peut donc en déduire que les deux phénomènes ne sont pas liés. Il en va de même pour la diffusion du Ta.

Rôle des défauts de la barrière sur le transport

Il reste la possibilité que la barrière contienne des défauts (points chauds), liée à sa structure. Faute de pouvoir caractériser directement les propriétés de structure de la barrière, nous nous reposons sur les mesures de magnéto-transport pour vérifier s'ils ont ou non un rôle sur le transport tunnel.

Nous nous appuyons sur les conclusions d'une étude récente menée par Yuan Lu et collaborateurs [65] sur un système très proche du notre : des JTM CoFeB/MgO/CoFeB élaborées par pulvérisation cathodique. Des analyses XPS montrent une diffusion du bore dans la barrière, sous forme d'oxyde de bore. Dans leurs travaux, les propriétés de conductance et de TMR en fonction de la température et de la barrière sont caractéristiques d'un mécanisme de tunnel séquentiel conservant le spin.

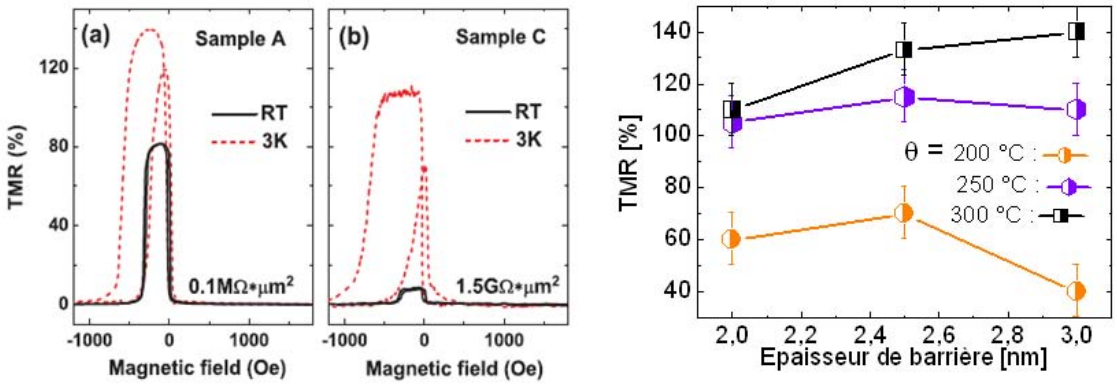


FIG. *3.14 – A gauche, image issue de l'article [65], montrant l'influence du nombre de défauts dans la barrière sur la valeur de la TMR à température ambiante. A droite, évolution de la TMR, mesurée à température ambiante, en fonction de l'épaisseur de barrière de MgO, pour différentes températures de recuit.*

En augmentant l'épaisseur de la barrière, et donc la concentration en défauts, ils observent à température ambiante une forte réduction de TMR : ce qui se comprend car on ajoute, en sus du canal de conduction tunnel normal, un canal de conduction qui est indépendant de la polarisation des électrons.

Si on suppose que nos barrières contiennent des défauts qui agissent sur le transport, on s'attendrait à voir un résultat analogue. Or, en augmentant le recuit, on constate une augmentation

de la TMR avec l'épaisseur de barrière.

Conclusion

Les analyses chimiques montrent qu'il n'y a pas de diffusion massive d'impuretés dans la barrière lors du recuit. Leur concentration et leur évolution sont insuffisantes pour expliquer l'intégralité des effets observés.

L'absence de défauts magnétiques permet de surcroît d'écarter la possibilité d'effet Kondo dans la jonction. Cette hypothèse était de toute façon peu plausible, vu que l'on ne constate pas de suppression de la TMR à basse température (au contraire : elle augmente fortement). La non-dépendance de la ZBA en fonction du champ magnétique appliqué n'était en revanche pas un argument suffisant pour conclure, car le dispositif expérimental ne permet pas de descendre à des températures suffisamment basses, ni de générer des champs magnétiques suffisamment intenses pour obtenir des conditions expérimentales pertinentes (il faut un champ magnétique B de l'ordre de $\frac{k_B}{\mu_B}B$ [85]).

Les autres défauts de structure de la barrière, s'il y en a, ne semblent pas avoir d'incidence sur le transport tunnel : on n'observe pas de trace de phénomènes de conduction assistée. On peut donc rejeter l'hypothèse que les défauts, quels qu'ils soient, influent sur le processus de transport.

3.4.3 Défauts d'interface

Il faut donc chercher ailleurs l'origine de l'excitation à basse tension discutée en début de section. Après avoir regardé les défauts de volume, il nous faut regarder les défauts d'interface ou effets liés à la densité électronique d'interface. On a vu précédemment que le transport tunnel est dépendant à la densité d'états électroniques dans les électrodes. Et la faible TMR laisse penser qu'il y a un souci avec la cristallisation des électrodes. On peut donc se poser la question de savoir dans quel état elles se trouvent réellement, et si leur état structurel peut avoir une incidence sur le transport.

Clichés MET-HR

Pour tenter d'y répondre, nous avons réalisé des analyses de microscopie électronique en transmission à haute résolution (MET-HR) sur nos échantillons. Comme pour les analyses XPS, deux JTM identiques, non structurées, ont été préparées puis recuites séparément à des températures différentes. Les clichés (ainsi que la préparation préalable des morceaux observés) ont été réalisés par l'équipe d'Etienne Snoeck, du CEMES-Toulouse.

Les images (figures 3.15 et 3.16) montrent une vue en coupe d'une jonction recuite à 200˚C et une recuite à 300˚C. On observe que, même après recuit à température élevée, de larges zones des électrodes de CoFeB sont encore à l'état amorphe, ce qui confirme les suspicions évoquées en début de chapitre. Cette observation n'est cependant pas suffisante, car c'est avant tout l'état

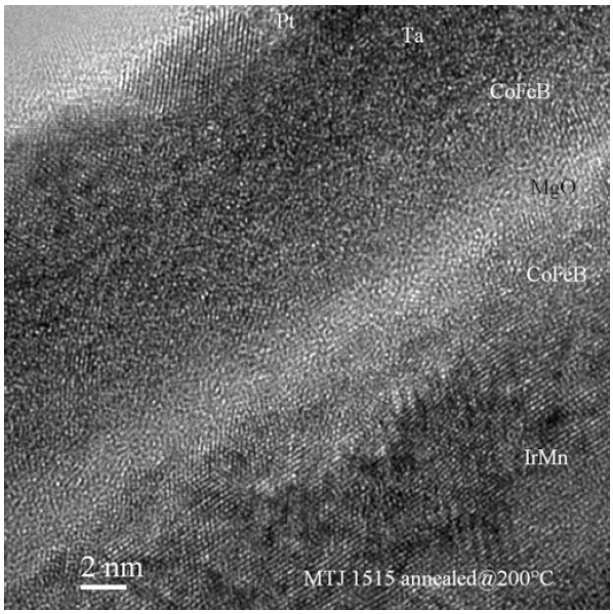


FIG. *3.15 – Clichés MET-HR de coupes transverses des jonctions, recuites à 200˚C.*

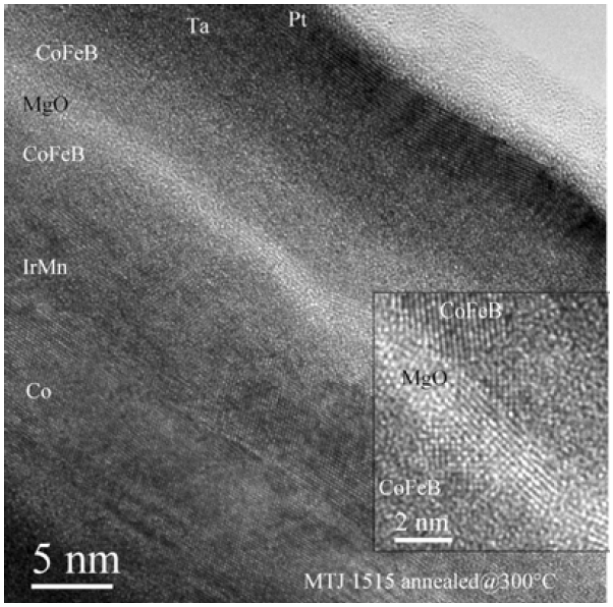


FIG. *3.16 – Clichés MET-HR de coupes transverses des jonctions, recuites à 300˚C. L'encadré montre un zoom sur une région de la jonction.*

des électrodes à proximité de l'interface avec la barrière qui a le plus d'importance pour le transport tunnel. Les quelques agrandissements permettent de voir à certaines régions interfaciales, une structure cristalline de l'électrode de CoFeB, sur une épaisseur d'au moins quelques plans atomiques.

Malheureusement, la résolution n'est pas assez fine pour discerner précisément et avec certitude la structure du matériau sur toute la longueur des interfaces avec la barrière. Une analyse plus poussée serait nécessaire, utilisant par exemple la spectroscopie EELS (*Electron Energy Loss Spectroscopy*) en mode champ sombre/champ clair.

Propriétés électriques du CoFeB

Nous avons mesuré la résistivité du CoFeB seul en fonction de la température afin d'avoir plus d'informations sur les propriétés électriques de ce matériau.

Pour cela, un échantillon spécifique a été élaboré : il s'agit d'un barreau de CoFeB, élaboré par pulvérisation cathodique, et de composition : verre/MgO(3)/CoFeB(10)/MgO(3). Les conditions de dépôt des différentes couches sont les mêmes que celles utilisées pour les jonctions tunnel. L'échantillon a ensuite été structuré par lithographie optique, suivant un procédé déjà établi. Le barreau mesure 10 microns de large et 60 microns de long ; les contacts électriques sont séparés par une distance de 10 microns. La mesure a été effectuée en configuration 4-points, sur le banc de mesures à basse température décrit précédemment. Le résultat en est présenté sur la figure 3.17.

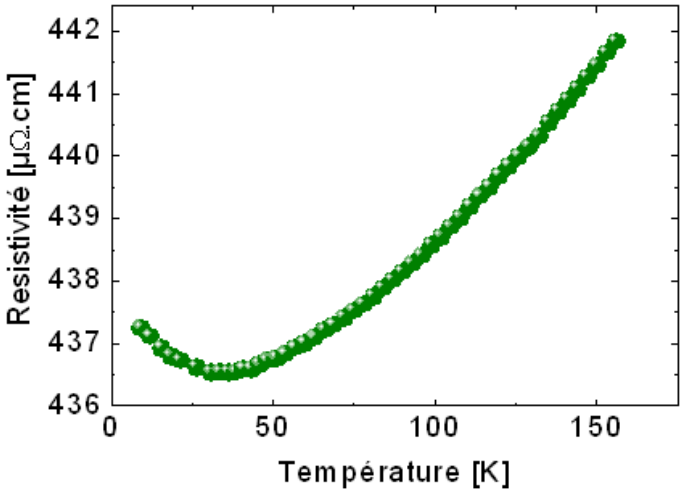


FIG. *3.17 – Résistivité, en fonction de la température, du barreau de CoFeB.*

On constate que la courbe présente un minimum à basse température (aux alentours de T = 40 K). Il s'agit d'une information intéressante, car pour un métal on s'attendrait plutôt à avoir une évolution monotone de la résistivité, croissant avec T. Le comportement observé est en revanche caractéristique d'un métal amorphe [95]. Cela confirme les suspicions évoquées

en début de ce chapitre : il semble y avoir un désordre structurel des électrodes, suffisamment important pour avoir une incidence visible sur les propriétés électroniques du matériau seul.

On peut alors se demander quelles conséquences cela va-t-il avoir sur le transport tunnel de la jonction entière. Car puisque l'état des électrodes transparait au niveau des propriétés électroniques (et donc de la densité d'états), on peut s'attendre à ce que cela ait une conséquence sur le transport tunnel.

3.5 Transition métal-isolant dans les jonctions tunnel

3.5.1 Modèle de McMillan

La question du transport tunnel dans un matériau désordonné a déjà été étudiée dans les années 1980, par McMillan et collaborateurs, mais dans des systèmes non-magnétiques. Ces travaux portaient sur des couches minces de matériaux amorphes, sondés par transport tunnel. On peut trouver une synthèse de ces travaux dans les articles [96] et [97]. Les matériaux étudiés sont des alliages de $Ge_{(1-x)}Au_x$. Leur désordre structurel est contrôlé lors de leur élaboration en variant la concentration x.

La conductance dynamique mesurée à basse température est représentée dans la figure 3.18. S'agissant de matériaux amorphes, une transition métal-isolant continue se produit au delà d'un certain niveau de désordre, atteint ici pour une concentration $x = 0{,}12$. Pour $x > 0{,}12$, le matériau est dans la phase métallique ; la conductance dynamique présente une anomalie de conductance à tension nulle, dont l'amplitude augmente avec le désordre. Pour $x < 0{,}12$, le matériau se trouve dans la phase isolante, et donc l'interprétation de la conductance en terme de densité d'états n'a plus de sens.

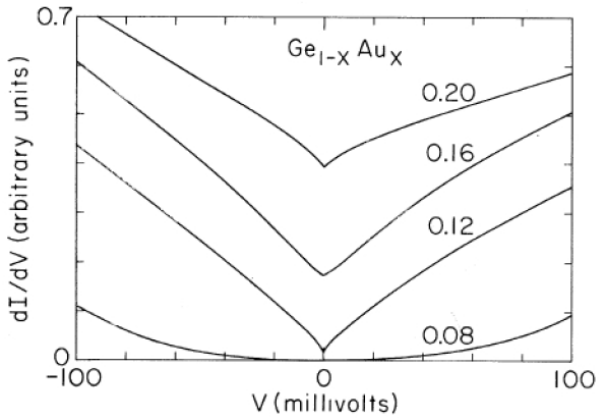


FIG. *3.18 – Conductance dynamique normalisée, représentée en fonction de la tension de polarisation, pour différentes concentrations x de l'alliage. Mesures effectuées à 2,5 K. Document extrait de [96].*

La transition métal-isolant est un phénomène rencontré dans certains matériaux et structures

complexes, qui ont la propriété de passer d'un état isolant à un état métallique (donc conducteur), et ce sous l'action de la variation d'un paramètre intrinsèque. Ce phénomène est de nature purement quantique, et résulte d'une modification importante de la structure de bandes du matériau. Dans un solide cristallin, par exemple, les niveaux électroniques sont groupés en bandes. Pour un non-métal, ces bandes sont soit totalement peuplées, soit totalement vides, alors que pour un métal, les bandes sont partiellement remplies. La transition va correspondre au passage d'un état où les bandes se chevauchent, à un où elles sont distinctes. Il existe en fait de nombreux autres types de transitions métal-isolant, selon qu'elles fassent intervenir des effets d'interaction entre électrons et phonons, des effets de corrélation électronique, de localisation des électrons de conduction (localisation d'Anderson)... Cette section n'a toutefois pas vocation à entrer en détail dans la nomenclature de ces transformations. Aussi, pour plus de précisions, le lecteur pourra consulter l'ouvrage de Mott [98].

Le traitement théorique par McMillan de cette transition dans les matériaux désordonnés est détaillé dans son article [97]. La transition métal-isolant est interprétée comme une transition continue, et est modélisée en prenant en compte à la fois des effets de localisation faible et d'interactions électron-électron, et suivant une loi d'échelle [99].

McMillan propose que, dans la phase isolante, la transition conduirait à la formation d'un gap de corrélation dans la densité d'états. Dans la phase métallique, en revanche, cette transition serait anticipée par l'ouverture d'un pseudo-gap de corrélation dans la densité d'états (noté δ), résultant de la déformation des bandes. L'anomalie de conductance tunnel en serait la manifestation.

Ainsi, selon cette explication, les électrodes de CoFeB de nos jonctions tunnel seraient suffisamment désordonnées pour se trouver précisément au seuil d'une transition métal-isolant, tout en restant dans la phase métallique. L'anomalie de conductance observée, et jusqu'alors inexpliquée, serait donc en grande partie causée par cet effet.

Nous ne rentrerons pas dans le détail de la théorie, ni des calculs de renormalisation : cela sortirait, et de loin, du cadre de cette étude. Nous retiendrons seulement le résultat prévu par la théorie dans le régime métallique (celui dans lequel on se trouve). Les effets électroniques vont induire une modification de la densité d'états, suivant une loi de la forme

$$N(E) = N(0)\left(1 + \sqrt{\frac{E}{\delta}}\right)$$

où E est l'énergie et δ est le pseudo-gap de corrélation (voir figure 3.19). Ce gap, qui caractérise l'écrantage, peut être compris comme une indication sur la courbure des bandes au niveau de Fermi. Comme les mesures de transport nous permettent de sonder la densité d'états près de l'interface, on s'attend à retrouver cette contribution dans la conductance dynamique (dI/dV), puisque cette dernière est directement proportionnelle à $N(E)$. Des études expérimentales (voir par exemple [100] sur des échantillons d'aluminium granuleux) ont fourni la confirmation de cette description.

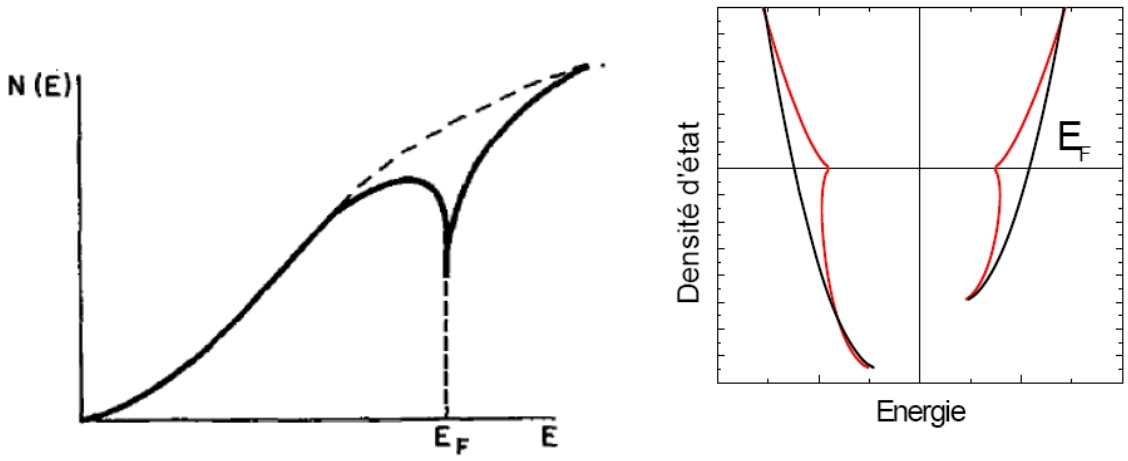


FIG. *3.19 – Á gauche : densité d'états d'un matériau amorphe. Figure tirée de [98]. A droite, schéma de principe, illustrant le pincement de la densité d'état à l'approche de la transition (trait noir) par rapport à la densité d'états normale (trait rouge). Le décalage en ordonnée des deux bandes est dû à l'interaction d'échange dans le ferromagnétique.*

3.5.2 Discussion des résultats

Explication en termes de DOS des électrodes de CoFeB

Nous avons précédemment vu l'effet de cette transition sur les propriétés électriques du CoFeB seul, au travers de sa résistivité en température. On l'observe également sur la résistance globale de la jonction tunnel, dont nous avons mesuré la dépendance en température pour différentes tensions de polarisation : +1 mV, +10 mV et +100 mV (figure 3.20). La courbe de la figure 3.17 est également retracée, pour servir de référence.

On remarque qu'à faible tension de polarisation (V_p = +1 mV, courbe rouge), la résistance totale de la jonction présente un aspect légèrement différent de celui attendu pour une jonction tunnel, à savoir une variation monotone. A basse température, la résistance subit un infléchissement similaire à celui observé sur le CoFeB, et ce à des températures identiques (autour de 35 K), ce qui laisse penser que les deux effets sont liés.

A tension de polarisation plus importante (V_p = +10 mV, courbe verte), la variation a tendance à s'estomper. Pour des tensions de polarisation plus élevées (V_p = +200 mV, courbe noire), correspondant à des énergies « loin » de la ZBA, l'effet disparaît complètement. En fait le comportement est un peu différent de ce que l'on a décrit comme étant normal. Mais cela est fréquemment observé dans des JTM, et s'explique par le désalignement des moments magnétiques des électrodes en température [101]. On voit ainsi, de manière qualitative, l'impact de ces effets électroniques sur le transport tunnel.

Détermination numérique du pseudo-gap

Pour tester la prédiction du modèle de McMillan, qui prévoit une dépendance de la densité d'états en $\sqrt{V_p}$, nous avons repris les données de la conductance dynamique (directement pro-

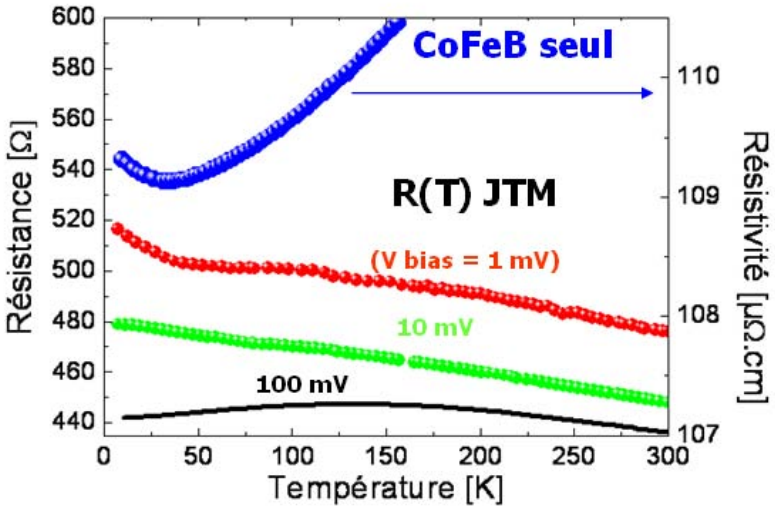
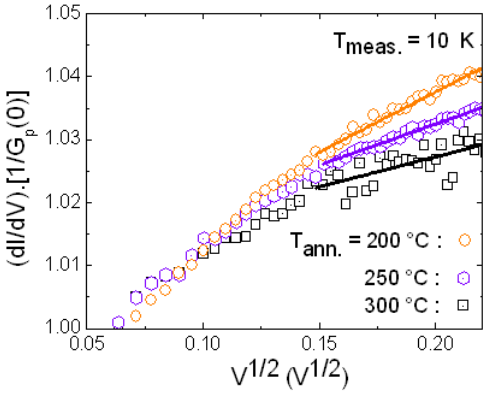


FIG. *3.20 – Evolution en fonction de la température de la résistance dans l'état P de la jonction tunnel, mesurée pour des tensions de polarisation V_p = + 1mV, +10 mV, +200mV. En superposition, la courbe de résistivité du CoFeB de la section précédente est rajoutée à titre indicatif.*

portionnelle à la densité d'états) sur la plage d'énergies correspondant à la présence de la ZBA (de quelques mV jusqu'à 0,1 V) et les avons tracées sur la figure 3.21, en fonction de $\sqrt{V_p}$. On s'attend à voir une relation linéaire entre la conductance normalisée et $\sqrt{V_p}$.



θ (°C)	δ (eV)	± err δ (eV)
200	27,25	0,46
250	58,56	1,17
300	110,5	1,72

FIG. *3.21 – A gauche, conductance dynamique normalisée, tracée en fonction de $\sqrt{V_p}$, pour différentes températures de recuit. A droite, valeurs numériques de δ*

On distingue deux régimes : pour $\sqrt{V_p} < 0{,}15\ \sqrt{V}$ la conduction suit une loi en $V_p + \sqrt{V_p}$. La variation de la conductance est assurée par deux contributions : celle en $\sqrt{V_p}$ provient des interactions électron-électron, et l'autre (celle en V_p) provient des magnons. Pour $\sqrt{V_p} > 0{,}15\ \sqrt{V}$, en revanche, la contribution des magnons est arrivée à saturation, et seul subsiste l'effet des interactions électron-électron. On trouve bien la relation linéaire attendue, dont un adjustement numérique permet d'extraire les valeurs numériques du gap δ.

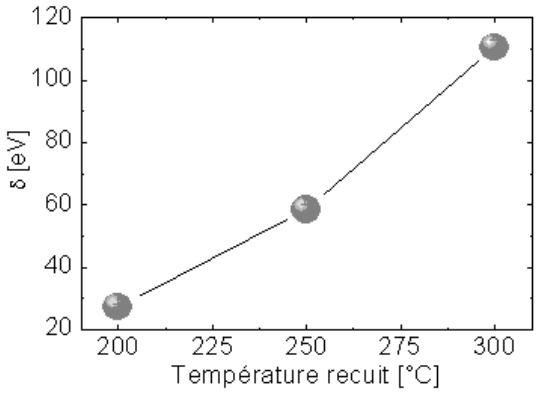


FIG. *3.22 – Evolution de δ en fonction de la température de recuit.*

La figure 3.22 montre une augmentation de gap en fonction du recuit, ce qui traduit une diminution de l'effet au fur et à mesure qu'augmente la cristallisation des interfaces CoFeB-MgO. En effet, plus δ est grand, plus le terme en $\sqrt{E/\delta}$ tend à diminuer ; le terme correctif de la densité d'états s'atténue donc, et se rapproche de la situation normale (préfacteur $N(0)$). La réduction du désordre structurel qui se produit au fur et à mesure de la cristallisation des interfaces conduit à la disparition des effets de localisation électronique, jusqu'à disparition de la ZBA. Quant aux valeurs de ce gap de corrélation, elles sont cohérentes avec celles rapportées lors d'études similaires sur des matériaux désordonnées : 20 eV pour FeSn et 256 eV pour FeB.

3.6 Conclusion

3.6.1 Bilan et perspectives

Au cours du travail de préparation et de développement des jonctions tunnel magnétiques CoFeB/MgO/CoFeB, nous avons observé une anomalie de conductance à tension nulle et à basse température, dont le comportement n'est pas explicable avec les modèles communément décrits pour les JTM ; en particulier, les spectres de conductance tunnel inélastique ont révélé la présence d'une excitation d'origine inexpliquée. Sur la base de travaux anciens portant sur le transport tunnel dans des composés métalliques amorphes, nous avons proposé que le caractère non complètement cristallin des interfaces barrière-électrodes de CoFeB soit responsable d'effets de localisation électroniques, expliquant en partie la ZBA observée en configuration parallèle. Les résultats qualitatifs comme quantitatifs sont cohérents avec les prédictions du modèle, dans la gamme d'énergies pour laquelle cette effet se manifeste.

Il est difficile d'aller plus loin dans l'analyse du problème, en raison de la compétition simultanée d'effets différents, rendant l'interprétation délicate. Par exemple, pour des températures de recuit plus importantes, la signature du filtrage en symétrie devient plus importante alors que parallèlement l'effet de localisation tend à s'atténuer du fait de l'amélioration de la qualité de l'électrode. C'est d'ailleurs une des limitations de l'étude de ne pas prendre en compte les

différentes symétries prenant par au transport tunnel.

Il serait donc souhaitable d'aller plus loin dans cette étude, et de manière moins qualitative. D'une part, en approfondissant la description théorique du problème. D'autre part, on pourrait montrer l'influence du désordre du CoFeB sur le transport tunnel, en fabriquant des JTM dont la concentration de bore dans l'alliage serait plus importante. Une étude menée par Md Nor [102] a montré qu'une concentration de bore plus importante (30 % dans leur cas) conduit à un désordre important de la jonction, causant un effondrement de la TMR. On s'attend donc à voir la ZBA devenir plus importante.

Dans notre cas, il est difficile de contrôler précisément la concentration de B, puisque nous travaillons avec des cibles de CoFeB commerciales, dont la composition est fixée. Des essais ont toutefois été menés avec une cible contenant, en pourcentage atomique, 40 % de bore. Malheureusement, les résultats préliminaires semblent indiquer que la barrière n'a pas survécu au recuit. Des essais complémentaires devraient être prochainement réalisés pour élucider ce point.

3.6.2 Quelques mots sur la ZBA dans la configuration anti-parallèle

Les mesures de conductance montrent aussi une ZBA dans la configuration anti-parallèle (AP). Nous avons évoqué plus haut le fait que d'autres mécanismes semblent entrer en jeu. En fait, dans la configuration AP, si on a un filtrage parfait, le canal de conduction Δ_1 est complètement fermé, faute d'états disponibles dans la seconde électrode. Le seul moyen pour les électrons de passer la barrière est par le biais d'un processus de diffusion (par exemple, un processus de *spin-flip* modifiant le spin). A tension et température nulles, ces processus sont gelés, et la conduction est nulle. Mais ils peuvent être excités en augmentant la tension de polarisation. La conduction augmente alors brutalement avec la tension, donnant lieu à la ZBA observée.

Chapitre 4

Jonctions tunnel à anisotropie magnétique perpendiculaire

4.1 Introduction

Le présent chapitre est consacré aux travaux sur la deuxième brique de base du dispositif final : on cherche à obtenir des jonctions tunnel magnétiques (JTM) telles que les deux électrodes ferromagnétiques possèdent des directions d'anisotropie magnétique croisées : l'une étant perpendiculaire au plan des couches, l'autre dans le plan des couches. Le dispositif requiert en effet l'obtention de trois couches magnétiques d'anisotropies non colinéaires. L'objectif est donc de maîtriser l'élaboration de JTM à anisotropies hors du plan, et à anisotropies croisées, présentant une TMR suffisamment importante.

Dans ce chapitre, nous rappellerons brièvement quelques généralités sur les couches minces magnétiques à anisotropie perpendiculaire, en s'intéressant plus particulièrement aux applications pour les JTM. Nous donnerons ensuite quelques propriétés des films minces amorphes de CoTb, matériau qui a été retenu pour la présente étude. Nous présenterons enfin les travaux menés sur les jonctions tunnel magnétiques à aimantations perpendiculaires, ainsi que les premiers résultats, prometteurs. Puis nous utilisons ces résultats pour l'élaboration de jonctions à aimantations croisées.

Couches minces à anisotropie perpendiculaire

On parle d'anisotropie magnétique lorsque l'aimantation rémanente d'un solide magnétique présente une direction préférentielle dans l'espace. Une telle anisotropie peut résulter de nombreux effets physiques : anisotropie magnétocristalline, induite, élastique, de forme..., dont on trouvera une description exhaustive dans les ouvrages spécialisés [103].

L'anisotropie de forme se manifeste dans un matériau uniformément aimanté. Elle est dûe à l'interaction des dipôles magnétiques dans le matériau, et se traduit par l'apparition d'un champ magnétique dit démagnétisant, dont la valeur dépend de la forme du matériau. Dans le cas d'une couche mince, on peut montrer qu'il approche $H_d = -M_s \cos\theta$, où M_s est l'aimantation à saturation du matériau, et θ l'angle entre la direction d'aimantation et la normale au plan de

la couche. L'énergie d'anisotropie associée à ce champ démagnétisant s'écrit alors :

$$E_d = \frac{\mu_0}{2V} \int \mathbf{M}.\mathbf{H_d}\mathbf{dv} = \frac{\mu_0}{\mathbf{2}}\mathbf{M_s^2}.\cos^{\mathbf{2}}\theta = \mathbf{E_d}\cos^{\mathbf{2}}\theta$$

On voit donc qu'une configuration stable sera obtenue lorsque l'aimantation est alignée dans la couche, et c'est ce qui se produit avec de nombreux matériaux.

Il existe cependant un certain nombre de moyens de stabiliser une anisotropie perpendiculaire dans des couches minces. Par exemple, on peut faire intervenir d'autres sources d'anisotropies, notamment l'anisotropie magnétique d'interface [104]. Celle-ci peut être présente à l'interface entre un métal magnétique (Co, par exemple) et un métal non magnétique (Pt, Pd, ...). Cet effet d'interface peut être mis à profit en réalisant des empilements multicouches, de sorte à augmenter le nombre de surfaces, pour bénéficier d'une anisotropie importante. On citera par exemple les multicouches Co/Pt[105], Co/Pd,[106] et CoFe/Pt [107].

D'autres matériaux permettent l'obtention d'une aimantation perpendiculaire. C'est par exemple le cas des alliages à base de CoCr. D'abord étudiés à la fin des années 1970 [108], ils sont utilisés industriellement depuis quelques années dans les disques durs [109].

Des travaux ont été également menés sur des alliages de FePt. Seki et coauteurs ont pu élaborer des couches minces de FePt ordonné $L1_0$, qui présente une forte anisotropie perpendiculaire (de constante d'anisotropie $K_u = 1,8.10^7$ erg/cm^3 [110].

Une anisotropie magnétique perpendiculaire peut enfin être obtenue avec des alliages de terres rares / métaux de transition (notés RE-TM, pour *rare earth - transition metal alloys*) [111], composés de métaux de transition comme Co ou Fe, mélangés à des terres rares comme le terbium (Tb) ou le gadolinium (Gd).

Jonctions tunnel magnétiques à anisotropies perpendiculaires

Les travaux sur ces matériaux à anisotropie perpendiculaire étaient motivés par le développement de techniques d'enregistrement magnétique pour le stockage de données. Depuis quelques années, on assiste à un vif intérêt pour l'étude du transfert de spin (spin torque transfer) dans des systèmes à aimantation perpendiculaire (vannes de spin, jonctions tunnel magnétiques), notamment en vue du développement de mémoires magnétiques MRAM. En effet, l'utilisation de couches magnétiques à anisotropie perpendiculaire au plan des couches fournit, pour le transfert de spin, un certain nombre d'avantages par rapport à des dispositifs équivalents à aimantations planaires. Parmi ces avantages, on citera notamment un courant de retournement plus faible [112], ainsi qu'une meilleure stabilité thermique de l'aimantation.

Un travail important est donc actuellement consacré à l'intégration ces matériaux à anisotropie magnétique perpendiculaire dans les jonctions tunnel magnétiques, notamment celles à barrière de MgO. Plusieurs groupes travaillent activement sur ce sujet. Nous ne ferons pas ici une revue exhaustive des différentes pistes, mais nous citerons simplement quelques résultats marquants, notamment pour illustrer la façon dont nos travaux se situent dans ce contexte.

Dès 2002, Nishimura et coauteurs ont présenté des JTM à aimantations perpendiculaires, utilisant une barrière polycristalline d'alumine, et des électrodes magnétiques de CoFe associées à des couches de TbFeCo ou de GdFeCo [113]. Ils ont ainsi obtenu une TMR de 55 % à température ambiante.

Il faudra attendre quelques années de plus pour voir appraître les premières JTM perpendiculaires à barrières de MgO. En 2008, le groupe de Nakayama est parvenu à élaborer de telles JTM, utilisant des films minces amorphes de CoFeTb [114]. Ils sont les premiers à avoir pu contrôler le retournement de l'aimantation sous l'effet d'une impulsion de courant. On notera que leurs jonctions présentent une TMR de 15 % à température ambiante, ce qui reste faible. Des travaux ultérieurs [115] ont permis de porter cette valeur à 64 %, ce qui reste encore aujourd'hui la valeur maximale de TMR pour des JTM à base d'alliages de terres rares.

Plus récemment, de nombreux résultats ont été présentés à ce sujet lors de la 11ème conférence Intermag-MMM qui s'est tenue en janvier 2010. Par exemple, Nishiyama et coauteurs [116] ont rapporté l'obtention d'une TMR de 200 % grâce à l'utilisation d'un système mixte, combinant un alliage $L1_0$-FePt (électrode inférieure) et une bicouche CoFeB/CoFeTb (électrode supérieure).

Enfin, on retiendra les résultats, fraîchement publiés par le groupe de S. Ikeda, qui montrent la stabilisation d'une anisotropie magnétique perpendiculaire dans des jonctions tunnel CoFeB / MgO / CoFeB, sans utiliser aucun des matériaux cités ci-dessus [117]. Qui plus est, ces jonctions présentent des résultats très prometteurs pour les applications liées au transfert de spin, et affichent une TMR de 120 % à température ambiante.

Objectif du chapitre

Pour en revenir au sujet de la thèse, nous avons évoqué dans les chapitres précédents la nécessité de travailler avec des jonctions tunnel à barrière d'oxyde de magnésium MgO(100), en remplacement des JTM à barrière d'alumine. Nous avons vu à quel point l'état cristallin et la texture de la barrière et des électrodes sont importants pour l'obtention des propriétés de magnéto-transport désirées.

Les travaux menés sur les doubles jonctions à barrière d'alumine (évoqués dans le chapitre 2) avaient à l'époque permis d'obtenir la configuration magnétique souhaitée, grâce à l'utilisation de multicouches Co/Pt, qui assuraient l'aimantation hors du plan.

Malheureusement, cet empilement n'est pas transposable en l'état sur des systèmes utilisant des barrières de MgO(100), à cause des problèmes de croissance que cela induirait. En effet, avec notre procédé de dépôt, les multicouches Co/Pt cristallisent avec une texture (111). Comme on l'a expliqué en début du précédent chapitre, cela n'est pas compatible avec l'orientation préférentielle (100) du MgO, ni avec la cristallisation bcc(100) du CoFeB que l'on cherche à promouvoir. Rappelons que l'utilisation des électrodes de CoFeB est nécessaire pour obtenir les effets de filtrage en symétrie, responsables de l'obtention de fortes TMR. Il nous a donc fallu repartir de zéro pour mettre au point des jonctions tunnel magnétiques qui présentent une anisotropie perpendiculaire, et dont les propriétés (de TMR, notamment) soient suffisantes pour permettre la réalisation des doubles jonctions tunnel qui font l'objet de cette thèse.

Dans cette étude, nous avons travaillé avec le CoTb, par ailleurs étudié au laboratoire. Ce

matériau présente une forte anisotropie magnétique hors du plan, bien plus que les systèmes à base de multicouches. Ses propriétés magnétiques dépendent de la composition de l'alliage, ce qui les rend faciles à modifier. Mais surtout, son attrait réside dans la facilité de dépôt par pulvérisation cathodique, puisque la couche de CoTb, déposée à l'état amorphe, n'impose pas de texture particulière. Le couple CoTb/CoFeB apparaît donc très intéressant du point de vue pratique, car les deux alliages peuvent être déposés amorphes, ce qui permet de laisser croître le MgO selon la texture qui convient. La cristallisation des électrodes, nécessaire pour l'obtention d'une TMR élevée, se fait postérieurement au dépôt, par recuit sous vide en température.

Ainsi, nous avons travaillé sur deux types d'échantillons :
- des jonctions tunnel magnétiques CoTb / CoFeB / MgO / CoFeB / CoTb, dont les deux électrodes présentent une anisotropie perpendiculaire au plan de l'échantillon
- des jonctions tunnel magnétiques IrMn / CoFeB / MgO / CoFeB / CoTb, dont une électrode (celle du bas) présente une anisotropie planaire, et l'autre (l'électrode supérieure) présente une anisotropie perpendiculaire au plan.

4.2 Propriétés magnétiques des couches minces de Co_xTb_{1-x}

Dans le cadre de cette étude, nous travaillons avec des couches minces de Co_xTb_{1-x}, un alliage binaire ferrimagnétique [111]. Dans un ferrimagnétique, les atomes constitutifs de l'alliage sont répartis sur deux sous-réseaux distincts. Au sein de chaque sous-réseau, il y a un couplage ferromagnétique entre les moments magnétiques. Entre les moments des deux réseaux, en revanche, le couplage est antiferromagnétique. Dans le cas du CoTb, cela est dû au couplage d'échange négatif entre les électrons $5d$ des atomes de terres rares, et les électrons $3d$ des métaux de transition.

L'aimantation du matériau est la somme du moment magnétique global de chacun de ces sous-réseaux. Pour une certaine composition, ces deux moments sont égaux et de signe opposé : il y a alors compensation des moments, et l'aimantation résultante est nulle. La compensation dépend de plusieurs paramètres, comme la température (les aimantations des deux sous-réseaux varient différemment avec la température), ou la composition de l'alliage. C'est sur ce paramètre que nous allons jouer.

La figure 4.1 est tirée des travaux de Hansen *et al.* [111], et représente le moment magnétique de plusieurs alliages RE-TM en fonction de leur composition. Pour le CoTb, ils ont déterminé que la compensation, à température ambiante, se produit à $x_{Co} = 77\%$.

Un travail préliminaire a été mené au laboratoire, sur l'étude des propriétés magnétiques de couches minces de CoTb élaborées par pulvérisation cathodique. Ce travail a été effectué en collaboration avec Matthias Gottwald [118] dans le cadre de son stage de master. Même si ces matériaux ont été étudiés au laboratoire dans le passé et élaborés par épitaxie par jets moléculaires, aucune croissance n'avait été tentée par pulvérisation cathodique. Les conditions de dépôt (et notamment du vide de base de l'enceinte) des équipements de croissance n'étaient

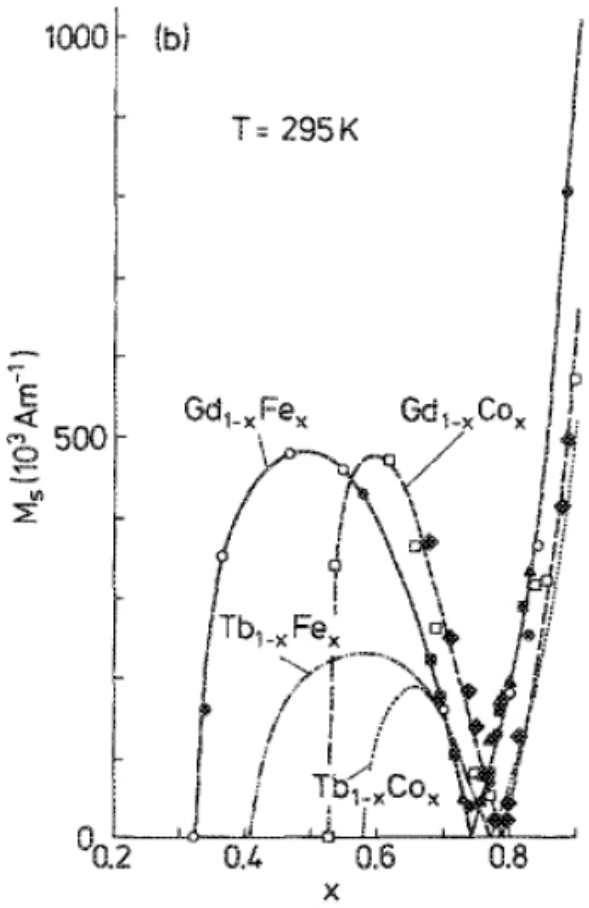


FIG. *4.1 – Évolution de l'aimantation de différents alliages RE-TM amorphes, en fonction de leur composition, mettant en évidence la compensation des moments magnétiques des deux sous-réseaux. Document extrait de [111].*

pas compatibles avec la forte tendance qu'ont les terres rares à s'oxyder. Ces conditions ont été grandement améliorées avec la récente mise en place d'un bâti de pulvérisation ultravide au sein du complexe MPGA, avec lequel les jonctions ont été élaborées lors de ce travail.

Une première étude s'est portée sur la mesure de l'aimantation et du champ coercitif de couches de Co_xTb_{1-x} de 20 nm d'épaisseur en fonction du pourcentage de Co. Elle a permis de montrer que la compensation magnétique est obtenue pour x_{Co} = 80 %, valeur cohérente avec celle de Hansen. Pour toutes les valeurs de concentration de Co étudiées, l'aimantation est perpendiculaire au plan de la couche. Cette dernière se réoriente dans le plan pour des valeurs de x supérieures à 92 %.

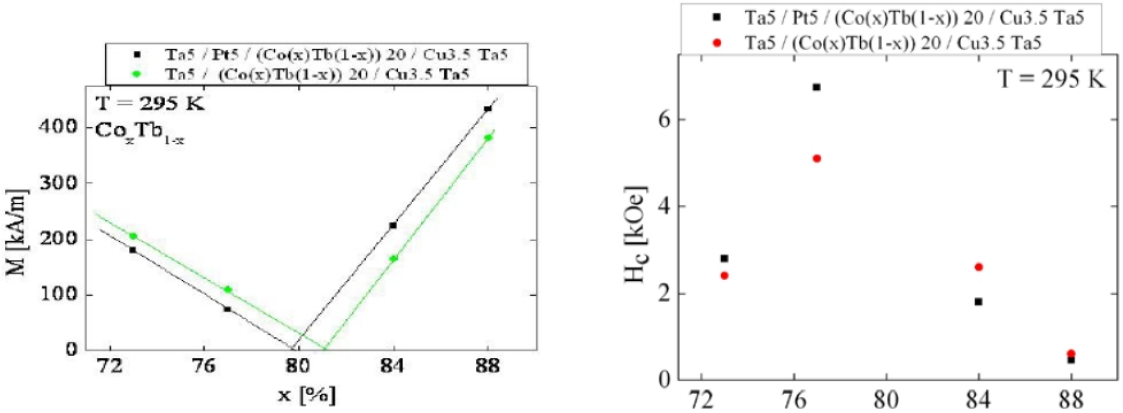


FIG. *4.2 – Évolution du champ coercitif en fonction du pourcentage atomique de Co de l'alliage. Les mesures ont été réalisées à température ambiante. Données issues de l'étude [118].*

Ainsi, on peut contrôler le champ coercitif des couches en modulant la composition de l'alliage tout en conservant une aimantation perpendiculaire au plan des couches. Cependant, il faudra tenir compte du fait d'une part, que la structure sera recuite afin de permettre une cristallisation des interfaces avec le MgO pour obtenir le filtrage en symétrie et, d'autre part, que pour obtenir le filtrage en symétrie, une fine couche de CoFeB sera insérée entre la couche de CoTb et de MgO. Tout cela est susceptible de diminuer l'anisotropie perpendiculaire de la couche de CoTb/CoFeB, voire d'engendrer un basculement de l'aimantation dans le plan de la couche.

4.3 Jonctions tunnel magnétiques à anisotropies perpendiculaires au plan

4.3.1 Conditions d'élaboration

Les échantillons sont préparés par pulvérisation cathodique. Les conditions d'élaboration sont, de manière générale, les mêmes que celles évoquées en annexe et dans le chapitre précédent. La composition standard des jonctions est la suivante : *Verre // Ta 5nm / Pt 5nm / CoTb /*

CoFeB / MgO / CoFeB / CoTb / Cu 2nm / Pt 2nm (voir figure 4.3). Les épaisseurs des couches de CoFeB et CoTb ont été optimisées ainsi que la concentration du Co et du Tb dans l'alliage CoTb ; l'épaisseur du MgO, tout comme pour les jonctions à aimantation planaire, varie entre 2 et 3 nm.

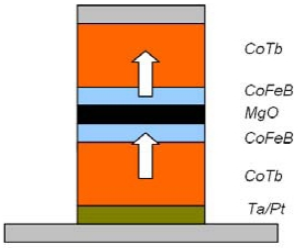


FIG. *4.3 – Schéma de principe des jonctions tunnel magnétiques à aimantations perpendiculaires étudiées. Les flèches représentent la direction d'anisotropie magnétique des électrodes.*

Comme nous l'avons évoqué, l'anisotropie magnétique hors du plan est assurée par les couches minces de CoTb. L'alliage est obtenu par co-pulvérisation, à partir de deux cibles distinctes de Co et Tb, avec un plasma alimenté en tension continue. La couche dure correspond à l'électrode supérieure. Les couches inférieures de Ta et de Pt jouent le rôle de couche tampon, pour permettre une bonne adhésion de la multicouche sur le substrat et gommer ses imperfections. Les couches supérieures de Cu et de Pt servent à protéger la multicouche de l'oxydation. La couche de Cu est déposée dans la foulée du CoTb, pour éviter toute contamination qui pourrait modifier les propriétés magnétiques (champ coercitif notamment) de cette couche. Il en est de même pour la couche de CoFeB déposée sur le CoTb inférieur.

La présence d'une fine couche de CoFeB, de part et d'autre de la barrière isolante de MgO, est nécessaire pour obtenir des effets de filtrage en symétrie, qui sont nécessaires si l'on veut obtenir une TMR élevée. En effet, le CoTb (tout comme les autres alliages RE-TM) ne donne pas à lui seul une polarisation totale pour les électrons Δ_1.

La jonction tunnel sera donc élaborée de la même façon que dans le chapitre précédent, à savoir un empilement CoFeB / MgO / CoFeB. La barrière de MgO est déposée sur une fine couche de CoFeB amorphe, et texture avec une orientation (100). Une fois le dépôt terminé, l'échantillon est recuit en température, afin de permettre la cristallisation bcc(100) du CoFeB, notamment aux interfaces CoFeB/MgO. Une complication par rapport au cas des systèmes à aimantation planaire, est qu'ici les propriétés magnétiques des bicouches CoTb/CoFeB sont dégradées pour des hautes températures de recuit. Nous avons constaté expérimentalement que l'aimantation des couches perpendiculaires bascule dans le plan en cas de recuits à des températures supérieures à 350˚C. Les meilleures propriétés ont été obtenues en limitant la température de recuit à 300˚C. C'est donc à cette température que seront recuites toutes les jonctions dans ce chapitre, sauf mention contraire. Une conséquence de cette limitation en température est que les électrodes ne seront pas entièrement cristalisées.

4.3.2 Propriétés magnétiques des électrodes

Nous avons élaboré et étudié les propriétés magnétiques de la bicouche CoTb/CoFeB des électrodes inférieure et supérieure, en fonction de l'épaisseur du CoFeB, de l'influence du recuit, et de la composition de CoTb. Le défi est de parvenir à trouver un bon compromis entre ces paramètres. Cela est compliqué, car l'ajout de CoFeB au CoTb augmente artificiellement l'aimantation à saturation de la bicouche, et entraîne une diminution du champ coercitif de l'ensemble, et parfois un basculement de l'aimantation dans le plan de la couche.

Plus particulièrement, il s'agit donc de trouver les couples composition/épaisseur qui permettent d'obtenir des champs coercitifs raisonnables pour contrôler le retournement de l'aimantation des couches sur nos dispositifs expérimentaux. En effet, pour les mesures de magnéto-transport, nous sommes limités par les électro-aimants utilisés au laboratoire, qui ne peuvent pas générer des champs magnétiques supérieurs à 1 Tesla.

Propriétés magnétiques de l'électrode inférieure

L'objectif ici est de stabiliser la couche la plus douce perpendiculaire, afin de pour permettre un retournement à bas champ. Pour ce faire, nous avons retenu la composition $Co_{0.88}Tb_{0.12}$, qui possède un coercitif H_c de 1000 à 1500 Oe avant recuit et de l'ordre de 800 Oe après un recuit à 300 ˚C.

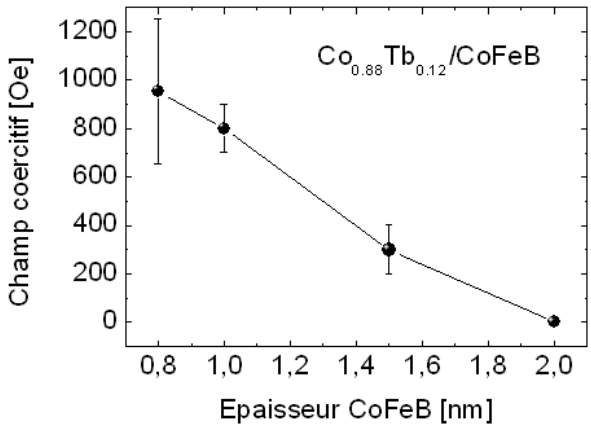


FIG. *4.4 – Cycle d'aimantation et champ coercitif après recuit pour ($Co_{0.88}Tb_{0.12}$) 20nm / CoFeB (x nm). Le champ coercitif nul correspond à une aimantation qui s'est couchée dans le plan de la couche.*

L'électrode inférieure est ici choisie comme électrode douce (ou libre) de la jonction. On constate une forte fluctuation du champ coercitif de la bicouche. Cela provient de deux facteurs liés au procédé de dépôt, et dont nous nous sommes attachés à minimiser les effets.

– le premier est un mauvais contrôle de la concentration du Co_xTb_{1-x}. L'alliage est déposé par co-pulvérisation, à partir de cibles de Co et de Tb. En particulier, le Tb est déposé

en alimentant le plasma avec une puissance de 5 W. L'utilisation d'une valeur aussi faibe rend le dépôt sensible à la moindre fluctuation de puissance du générateur. Nous avons par exemple observé que des fluctuations de la puissance entre 5 et 6 W suffisent à faire augmenter la valeur du champ coercitif de 50 %.
– le second dépend du temps de latence entre le dépôt des couches de CoTb et de CoFeB. Pour des raisons pratiques, les couches ne sont pas par défaut déposées dans la foulée, ce qui fait qu'il y a une petite pause entre le dépôt des deux couches consécutives. En effet, le temps de stabilisation de la tension d'autopolarisation du plasma peut varier de 10 à 20 % d'un dépôt à l'autre. La surface de CoTb peut alors être polluée, entrainant alors une variation du champ coercitif de l'ensemble. Nous nous reviendrons sur ces problèmes d'oxydation du CoTb en fin de section.

En pratique, pour contrôler les propriétés de l'aimantation perpendiculaire, nous avons initialement travaillé avec l'épaisseur de la couche de CoFeB. En ce qui concerne le CoTb, différentes épaisseurs ont été testées, jusqu'à 40 nm. Avec ce matériau, une épaisseur élevée (plusieurs dizaines de nanomètres) est nécessaire pour imposer les propriétés magnétiques perpendiculaires dans des couches minces. En revanche, une trop grande épaisseur engendre une rugosité excessive des couches, ce qui nuit aux propriétés de la jonction tunnel. Au final, nous avons trouvé un compromis, en limitant l'épaisseur de CoTb entre 20 nm et 40 nm. Les bicouches retenues ont pour composition : CoFeB 1nm / ($Co_{0.88}Tb_{0.12}$) 20nm, ou CoFeB 1.5nm / ($Co_{0.88}Tb_{0.12}$) 20 nm. Avec ce choix, l'épaisseur de CoFeB, est maintenue inférieure à 2 nm d'épaisseur ; au-delà, elle bascule dans le plan.

Propriétés magnétiques de l'électrode supérieure

L'électrode supérieure joue ici le rôle de couche dure (ou *pinned layer*). Nous devons obtenir une coercivité supérieure à celle de la couche douce, sans pour autant dépasser des valeurs de champ coercitif supérieures au Tesla. , ce qui rendait la couche dure difficilement saturable dans nos électro aimants. Nous avons étudié les alliages de concentrations suivantes : $Co_{0.84}Tb_{0.16}$, $Co_{0.80}Tb_{0.20}$ et $Co_{0.77}Tb_{0.23}$. Ceux-ci possèdent des champs coercitifs supérieurs à 3000 Oe avant recuit, et supérieurs à 1500 Oe après recuit à 300 ˚C. La compensation magnétique intervenant pour x_{Co} = 80 %, le $Co_{0.80}Tb_{0.20}$ seul ne peut pas être saturé avec les électro-aimants disponibles au laboratoire (il s'agit du point manquant dans la figure 4.2).

Le principal problème rencontré dans un premier temps est le dépôt du CoFeB sur la barrière de MgO. Conventionnellement, le dépôt d'un métal sur un isolant engendre l'apparition de couches discontinues, à cause des différences entre les tensions de surface de ces deux matériaux. Pour que la couche soit continue, il est souvent nécessaire de déposer des épaisseurs plus importantes : 2 à 3 nm de métal pour la pulvérisation et plus de 5 nm pour épitaxie par jets moléculaires. Seul problème : l'augmentation d'épaisseur du CoFeB entraîne une augmentation artificielle du moment magnétique de la bicouche, et donc une diminution du champ coercitif. Cela nous restreint dans le choix de compositions de l'alliage : avec une couche de CoFeB de cette épaisseur, nous serons certainement à la limite du basculement de l'anisotropie dans le plan avec $CoFeB/Co_{0.84}Tb_{0.16}$. A l'inverse, les électrodes $CoFeB/Co_{0.80}Tb_{0.20}$ auront une anisotropie perpendiculaire mais avec un champ de saturation élevé, difficile à atteindre avec nos moyens

expérimentaux. C'est malgré tout ce dernier choix que nous avons retenu pour composer la couche supérieure.

4.3.3 Propriétés des jonctions tunnel magnétiques

Influence de l'épaisseur de la couche de CoFeB sur la TMR

Les mesures de magnéto-transport sont faites après recuit et après structuration, suivant le même procédé que dans le chapitre précédent (par ailleurs décrit dans l'annexe B). Les jonctions définies ont une taille comprise entre 10 et 40 microns. Un contact électrique est pris sur chacune des deux électrodes. En tension positive, le courant est injecté dans l'électrode inférieure (la borne + du sourcemètre est connectée sur l'électrode supérieure). Les mesures sont réalisées en configuration deux-points, à température ambiante, à une tension de polarisation V_p = + 10 mV.

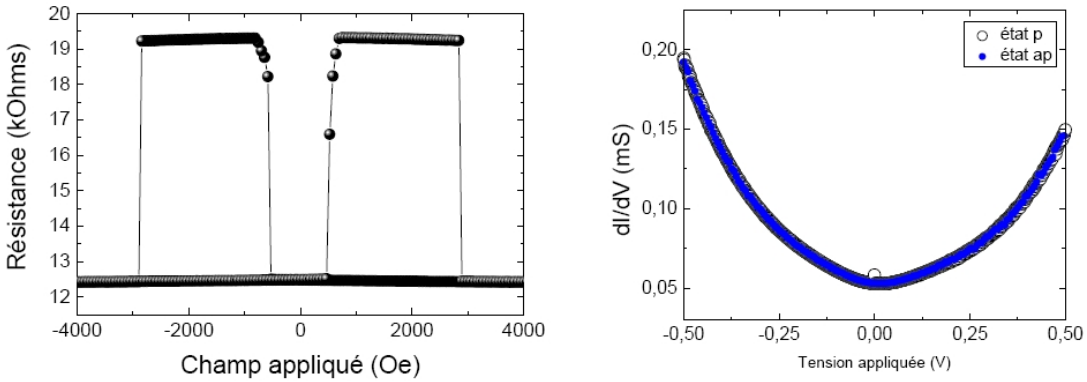


FIG. *4.5 – Cycle de TMR à température ambiante et conductance dynamique (dI/dV) pour l'échantillon ($Co_{0.88}Tb_{0.12}$) 20nm / CoFeB 1.5nm / MgO 2.5nm / CoFeB 1.5nm / ($Co_{0.84}Tb_{0.16}$) 20nm / Cu / Pt (échantillon 1312).*

La TMR mesurée sur la figure 4.5 vaut 56 %. La résistance surfacique (RA) de la jonction vaut $1.210^{-3}k\Omega.\mu m^2$. La conductance dynamique de la jonction, mesurée en tension, à température ambiante, présente un aspect parabolique, ce qui confirme que l'on a de l'effet tunnel.

Dans l'ensemble, la TMR des jonctions étudiées est comprise entre 50 % et 60 % après recuit. Cette valeur est inférieure à celle mesurée sur des jonctions à aimantation planaire, pour lesquelles la TMR était de 130 % (également après recuit à 300°C). En conservant l'épaisseur de la barrière de MgO fixe, nous avons dans un premier temps réduit l'épaisseur de la couche de CoFeB à l'interface. On constate bien une diminution de la TMR, qui passe alors à des valeurs comprises entre 5 et 15 % (figure 4.7).

En conservant l'épaisseur de la barrière de MgO fixe, nous avons dans un second temps augmenté l'épaisseur de la couche de CoFeB à l'interface. Le magnétisme de la couche dure se trouve modifié. À l'heure actuelle, nous n'avons toutefois pas réussi à stabiliser la structure *($Co_{0.88}Tb_{0.12}$) 20nm / CoFeB 1.5nm / MgO 2.5nm / CoFeB 2nm / ($Co_{0.84}Tb_{0.16}$) 20nm / Cu / Pt*

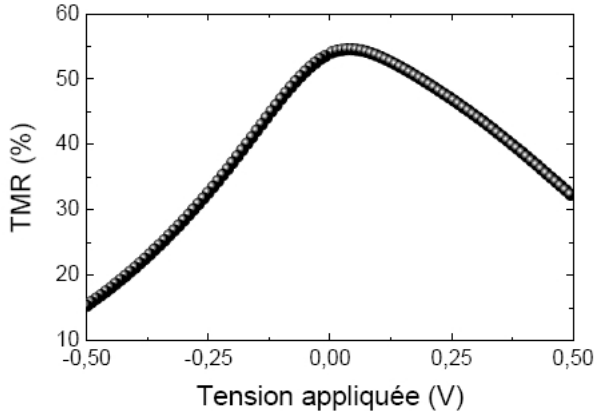


FIG. *4.6 – TMR en fonction de la tension à température ambiante pour l'échantillon ($Co_{0.88}Tb_{0.12}$) 20nm / CoFeB 1.5nm / MgO 2.5nm / CoFeB 1.5nm / ($Co_{0.84}Tb_{0.16}$) 20nm / Cu / Pt (échantillon 1312).*

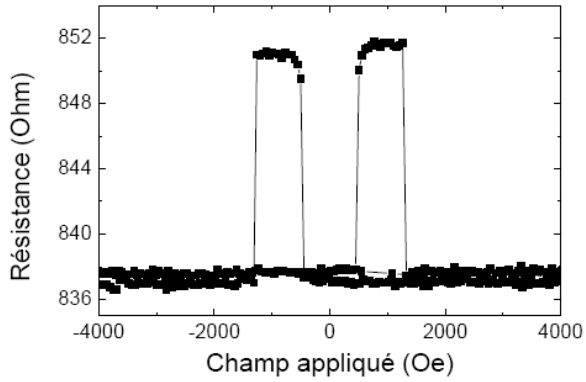


FIG. *4.7 – Cycle de TMR à température ambiante pour l'échantillon ($Co_{0.88}Tb_{0.12}$) 20nm / CoFeB 1nm / MgO 2.5nm / CoFeB 1nm / ($Co_{0.84}Tb_{0.16}$) 20nm / Cu / Pt (échantillon 1310).*

à aimantation perpendiculaire avec un champ coercitif important. Un travail d'optimisation est encore en cours.

Nous avons cherché à comprendre pourquoi notre TMR plafonne à 60 % à température ambiante. Comme on l'a évoqué plus haut, pour obtenir des propriétés magnétiques convenables, nous sommes obligés d'utiliser des épaisseurs de CoFeB réduites. Les mesures de magnéto-transport ont montré que la TMR des jonctions diminue lorsque l'épaisseur de CoFeB passe de 2 à 1 nm. On peut alors s'interroger sur l'influence qu'a l'épaisseur de la couche de CoFeB sur le processus de transport tunnel.

En effet, Gradhand et coauteurs [119] ont théoriquement prédit que l'on peut conserver des effets de filtrage en symétrie même avec des électrodes amorphes, du moment que les électrodes métalliques sont cristallisées à l'interface sur de faibles épaisseurs. Dans le cas du système Fe/MgO/Fe, ils ont calculé qu'une monocouche de Fe à l'interface avec le MgO suffit pour obtenir 500 % de TMR. On ne s'attend donc pas à voir d'aussi importantes variations

de TMR en fonction de l'épaisseur de CoFeB. Notons que cette dégradation de la TMR pour de très faibles épaisseurs a été constatée dans d'autres travaux expérimentaux [120]. Une explication à la limitation de la TMR est que le CoFeB ne cristallise pas complètement (soit en raison de la température de recuit limitée, soit encore à la diffusion de certains matériaux). Mais, cela n'explique pas de manière satisfaisante la si grande dépendance de la TMR en fonction de l'épaisseur de CoFeB.

Nous proposons que ce problème provienne (au moins en partie) de la non-continuité de la couche de CoFeB déposée sur le MgO, situation déjà suspectée plus haut. Pour vérifier ce qu'il en est dans notre cas, nous avons mené une étude des propriétés magnétiques en température de monocouches et de multicouches CoFeB/MgO, pour lesquelles l'épaisseur de CoFeB a été variée de 1 à 4 nm. Le tableau 4.1 récapitule tous les échantillons synthétisés.

Epaisseur CoFeB	Monocouches	Multicouches
1 nm	Substrat/MgO2/CoFeB1/MgO2	Ta5/(CoFeB1/MgO2)x40 /Ta5
2 nm	Substrat//MgO2/CoFeB2/MgO2/	Ta5/(CoFeB2/MgO2)x40 /Ta5
3 nm	Substrat//MgO2/CoFeB3/MgO2/	Ta5/(CoFeB3/MgO2)x40 /Ta5
4 nm		Ta5/(CoFeB4/MgO2)x40 /Ta5

TAB. *4.1 – Liste des échantillons élaborés pour tester la continuité de la couche de CoFeB (l'épaisseur des couches est indiquée en nanomètres).*

Les résultats des mesures de magnétométrie SQUID sont présentés figure 4.8-a. Que l'on étudie les monocouches ou les multicouches, les résultats sont similaires et les conclusions sont identiques. Ici, nous ne présentons que les mesures sur les multicouches, car le rapport signal sur bruit est meilleur.

La figure de gauche présente les résultats sur les multicouches avec 1 nm de CoFeB (des mesures ont aussi été menées sur des échantillons de 1,5 nm de CoFeB ; leurs comportement magnétique est identique à celui mesuré pour 1 nm). Les mesures en température ont été réalisées d'abord en refroidissant l'échantillon à champ nul (ZFC, ou *zero field cooling*), puis en appliquant un champ magnétique lors du refroidissement (FC, pour *field cooling*).

L'aimantation FC des échantillons évolue aevc la température suivant une loi en $1/T$, signe d'un comportement paramagnétique (loi de Curie). L'aimantation ZFC (notée $M_{ZFC}(T)$) a un comportement plus intéressant : dans un premier temps, elle augmente lorsque la température augmente, jusqu'à atteindre un maximum pour T_{max} = 50 K. Au-delà de cette température, $M_{ZFC}(T)$ décroit en $1/T$. Ce comportement est la signature magnétique d'une assemblée d'agrégats superparamagnétiques [103].

En effet, pour des particules magnétiques monodomaines (ce qui est raisonnable ici, du fait de leur faible taille) et interagissant peu ou pas du tout, leur réponse à un champ magnétique extérieur dépend de l'amplitude de l'énergie thermique par rapport à l'énergie d'anisotropie de la particule. Du fait de l'anisotropie de la particule, l'aimantation ne peut prendre que deux

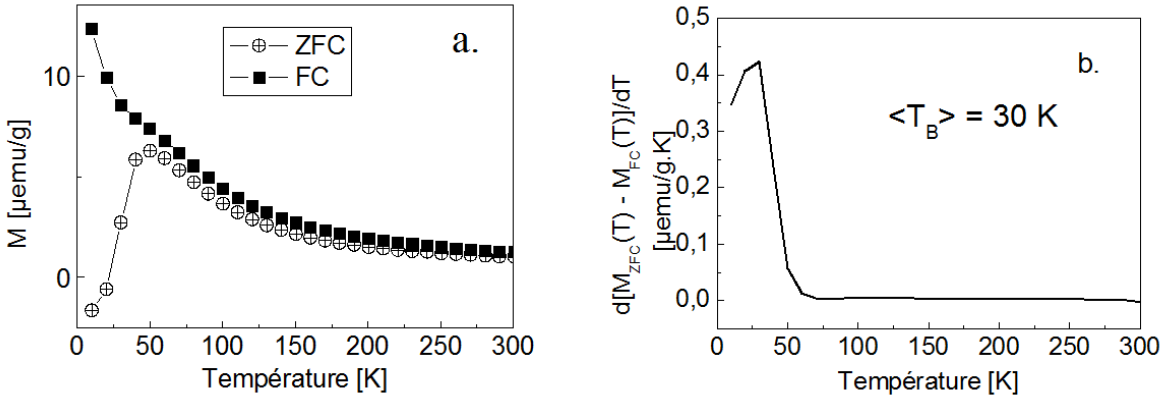


FIG. *4.8 – Mesures d'aimantation, en fonction de la température, sur les multicouches CoFeB/MgO. A gauche, mesure du moment magnétique d'un échantillon avec 1 nm de CoFeB, avec (FC) et sans (ZFC) champ magnétique appliqué lors du refroidissement. A droite, dérivée* $d[M_{ZFC}(T) - M_{FC}(T)]/dT$ *calculée à partir des données de la figure a.*

états stables, antiparallèles et alignés selon l'axe de facile aimantation de la particule. Il y a une certaine probabilité pour que, sous l'effet de l'excitation thermique, cette aimantation bascule d'un état à l'autre. Le temps de relaxation correspondant, noté τ, est donné par l'expression suivante, établie par Néel :

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{K.V}{k_B.T}\right)$$

où K est la constante effective d'anisotropie magnétique du matériau, V le volume de la particule, T la température, k_B la constante de Boltzmann, et τ_0 une constante qui vaut environ 10^{-10} secondes.

Le comportement magnétique de la particule varie donc selon la température. Si l'agitation thermique k_BT est très grande devant le terme KV, l'aimantation s'aligne rapidement avec le champ appliqué. Au contraire, si k_BT est très petit devant KV, la barrière d'énergie d'anisotropie fait que le système va approcher l'équilibre avec un temps de relaxation τ élevé. Si ce dernier devient plus long que le temps pris pour mesurer l'aimantation, alors l'état d'équilibre ne peut pas être observé, et les moments magnétiques apparaissent bloqués.

La température pour laquelle le temps de retournement est égal au temps de mesure (τ_m) est nommé la température de blocage, que l'on note T_B. On tire son expression de l'équation de Néel :

$$T_B = \frac{K.V}{k_B \ln(\frac{\tau_m}{\tau_0})}$$

où le logarithme vaut environ 25, approximation commune dans la littérature vu les temps de mesure usuels des SQUID. Ainsi, lorsque T < T_B, le temps de retournement de l'aimantation est supérieur au temps de mesure, et la particule est dans un état bloqué. En revanche, pour T > T_B, le temps de retournement est plus court que le temps de mesure, d'où le comportement paramagnétique observé.

Ce que l'on a dit concerne une particule unique. Pour un ensemble de particules quelconques, du fait de la distribution en volume des particules, on observe une distribution des températures de blocage, notée $f(T_B)$. La température T_{max} est proportionelle à la température de blocage moyenne, $< T_B >$. La distribution $f(T_B)$ peut être calculée comme suit [121] :

$$f(T_B) \propto \frac{d[M_{ZFC}(T) - M_{FC}(T)]}{dT}$$

La figure 4.8-b représente la distribution des températures de blocage de l'échantillon considéré. Notons au passage que, sur nos résultats, les deux courbes d'aimantation ne divergent significativement qu'à partir de T > T_{max}, ce qui est signe d'une faible distribution des températures de blocage. On en tire une température de blocage moyenne $< T_B >$ = 30 K. Connaissant la valeur de la constante K des particules de CoFeB, on pourrait en déduire leur volume moyen, ainsi que leur distribution en taille.

Les propriétés magnétiques indiquent que nous ne sommes donc pas en présence d'une couche continue, mais plutôt d'une assemblée de particules de particules superparamagnétiques. Ainsi, lorsque l'épaisseur déposée est trop faible (inférieure à 1,5 nm), la couche de CoFeB déposée sur le MgO démouille partiellement lors du dépôt. Les multicouches CoFeB/MgO ne sont alors en fait que des agrégats de CoFeB, noyés dans une matrice de MgO.

Pour ce qui est des échantillons avec une épaisseur supérieure à 2 nm, les mesures d'aimantation en ZFC (non représentées ici) ne montrent pas de comportement superparamagnétique. Les mesures en FC (avec H_p = 500 Oe), représentées en figure 4.9, confirment que l'on est en présence d'une couche ferromagnétique continue.

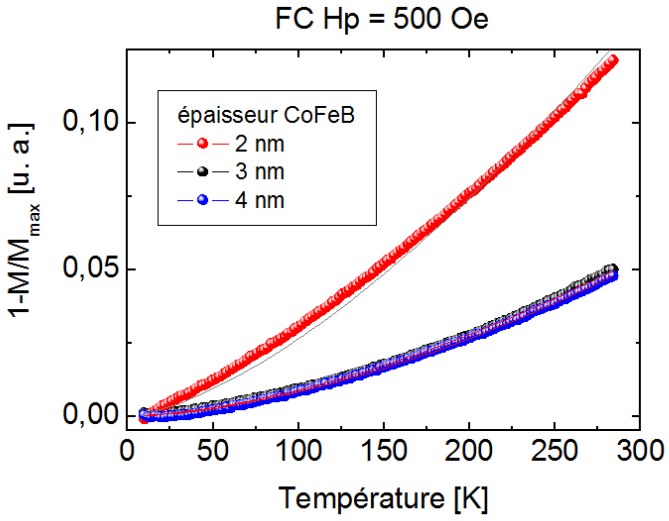


FIG. *4.9 – Mesures d'aimantation pour des échantillons avec 2, 3 et 4 nm de CoFeB refroidis sous champ (FC, H_p = 500 Oe) magnétique. Les traits pleins correspondent au fit de 1 - M/M_{max} par une loi en $T^{3/2}$ pour chacune des différentes épaisseurs.*

En effet, du fait de la présence dans les couches d'ondes de spin [122] [123] (excitations collectives des moments magnétiques du ferromagnétique), on s'attend à ce que, pour des températures inférieures à $T_c/3$ (T_c étant la température de Curie du matériau), l'aimantation suive une loi de comportement :

$$\frac{M_{max} - M(T)}{M_{max}} = 1 - \frac{M(T)}{M_{max}} = BT^{\frac{3}{2}}$$

La valeur de B dépend fortement de l'épaisseur t de la couche ferromagnétique, et il a été démontré que le coefficient B dépend de cette épaisseur de la manière suivante :

$$B(t) = B_{bulk} + B_{surface}/t$$

Un adjustement numérique des données expérimentales (trait plein sur la figure 4.9) confirme l'évolution en $T^{3/2}$. L'augmentation de l'épaisseur se traduit, comme prévu, par une diminution de la valeur de B.

En conclusion, on passe d'une couche de CoFeB continue à une couche discontinue pour des épaisseurs supérieures à 1,5 nm. Avec nos conditions de dépôt, il faut donc déposer au moins 2 nm de CoFeB si l'on veut garder une couche continue. Cela nécessite de revoir l'optimisation de la bicouche magnétique pour conserver l'anisotropie perpendiculaire. Ce point sera abordé plus loin.

Influence de l'épaisseur de MgO

Avant d'aller plus loin, on peut s'intéresser de plus près à ce qui se passe lorsque l'on augmente légèrement l'épaisseur de la barrière. Les mesures qui suivent ont été effectuées sur des jonctions dont la barrière a été portée de 2.5 nm à 3 nm d'épaisseur de MgO, tout en conservant des électrodes magnétiques identiques à l'étude précédente : *($Co_{0.88}Tb_{0.12}$) 20nm / CoFeB 1.5nm* pour l'électrode inférieure (douce) et *CoFeB 1.5nm / ($Co_{0.84}Tb_{0.16}$) 20nm* pour l'électrode supérieure (dure).

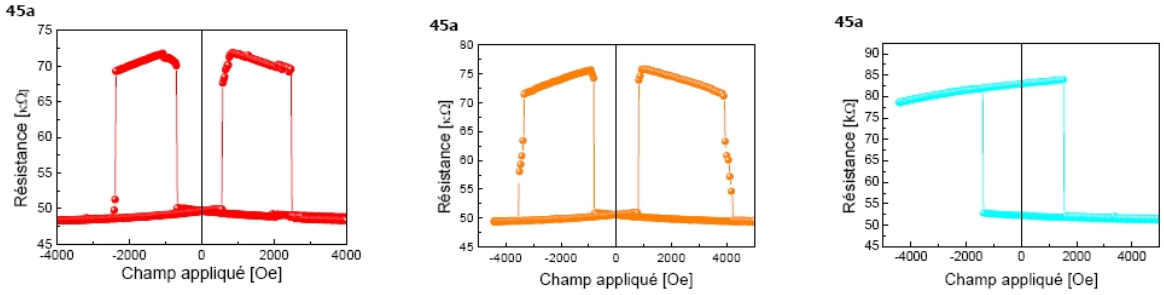


FIG. *4.10 – Mesures de résistance en fonction du champ magnétique pour un échantillon ($Co_{0.88}Tb_{0.12}$) 20nm / CoFeB 1.5nm / MgO 3nm / CoFeB 1.5nm / ($Co_{0.84}Tb_{0.16}$) 20nm / Cu / Pt. De gauche à droite sont tracées les courbes mesurées respectivement à 300 K, 250 K et 200 K.*

La magnétorésistance tunnel est quasiment identique à celle observée avec 2.5 nm de MgO, ce qui n'est pas très surprenant. Dans le cas des jonction tunnel à aimantations planaires du chapitre 3, une si petite augmentation de l'épaisseur de MgO n'avait pas non plus eu d'incidence majeure sur la TMR. Ces jonctions ont été mesurées à basse température, afin de vérifier leurs propriétés de conductance tunnel, notamment pour observer s'il y a des effets de filtrage en symétries. Nous voyons que les champs coercitifs des couches augmentent fortement lorsque la température diminue (figure 4.10), ce qui complique les mesures. A 200 K, seul le cycle mineur est accessible. En deça de 50 K, nous n'avons même plus accès à celui-ci.

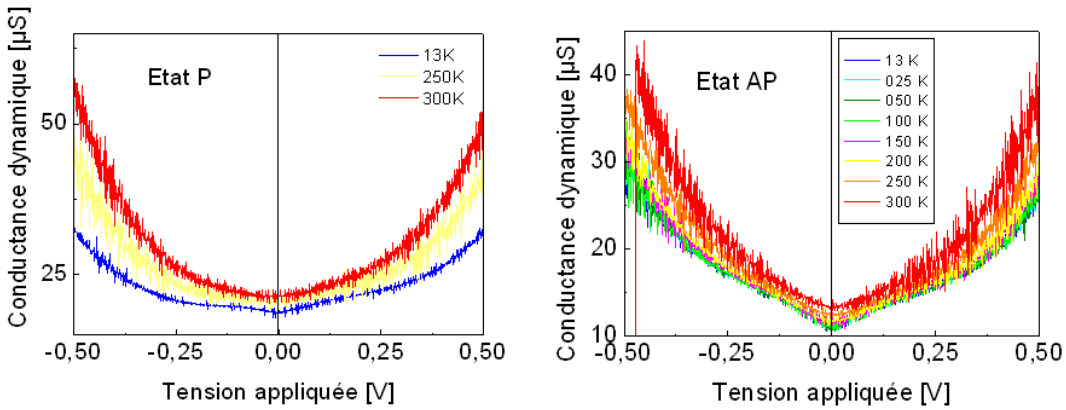


FIG. *4.11 – Mesures de dI/dV dans l'état parallèle (P) et antiparallèle (AP) pour différentes température pour un échantillon ($Co_{0.88}Tb_{0.12}$) 20nm / CoFeB 1.5nm / MgO 3nm / CoFeB 1.5nm / ($Co_{0.84}Tb_{0.16}$) 20nm / Cu / Pt.*

Nous pouvons cependant accéder aux caractéristiques de conductance dynamique (dI/dV) des jonctions, en fonction de la température T (voir la figure 4.11). La configuration P est obtenue en saturant l'échantillon à + 4000 Oe, la configuration antiparallèle en appliquant, après saturation, un champ de -1000 Oe. Les résultats montrent bien une caractéristique du transport tunnel (courbe parabolique). A 13 K, nous observons, dans l'état parallèle, un petit renflement pour une tension de polarisation positive de $\pm$ 170 mV : ceci est la signature du canal de conduction Δ_5 majoritaire (voir la discussion au chapitre 3). Le fait que la TMR ne soit pas plus élevée, alors que l'on constate la signature des effets de filtrage en symétrie, se comprend donc par le fait que la couche de CoFeB n'est pas continue : une partie du courant passe alors par des zones où le CoTb est directement en contact avec la barrière tunnel.

Enfin, une autre caractéristique est apparue lorsque l'épaisseur de MgO a été portée à 3 nm : le plateau de résistance en configuration antiparallèle n'est plus plat. La résistance de la jonction tunnel augmente légèrement dès que le champ appliqué diminue, et cela même en champ positif.

Nous avons tenté de comprendre l'origine de ces pentes en mesurant les cycles R(H) de la jonction structurée en faisant varier l'angle θ entre la direction du champ appliqué et la direction d'anisotropie des couches magnétiques. Ces mesures sont reportées sur la figure 4.12-a. De ces cycles, on tire la différence entre les champs coercitifs positif et négatif, ΔH_c, pour chacune

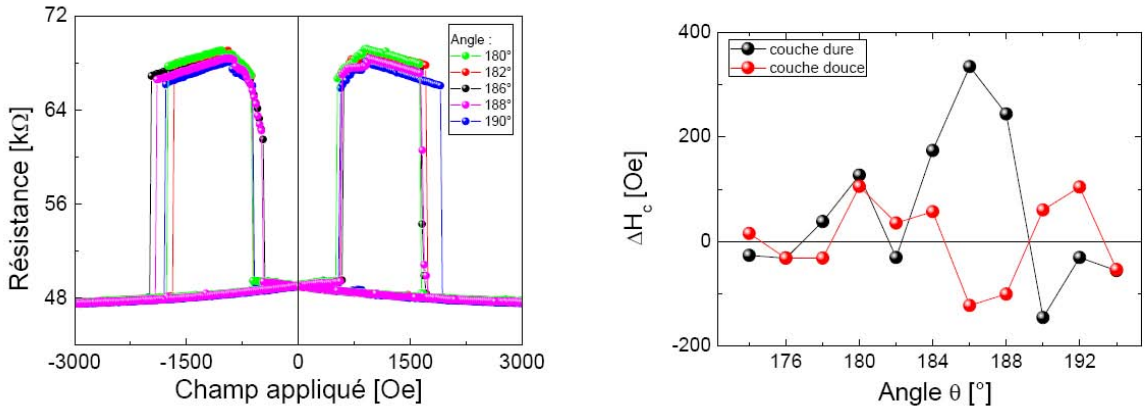


FIG. *4.12 – A gauche, mesures de résistance en fonction du champ magnétique pour un échantillon ($Co_{0.88}Tb_{0.12}$) 20nm / CoFeB 1.5nm / MgO 3nm / CoFeB 1.5nm / ($Co_{0.84}Tb_{0.16}$) 20nm / Cu / Pt à température ambiante en fonction de l'angle entre le champ magnétique et la surface. L'angle de 180° correspond à une configuration de champ perpendiculaire. A droite, différence entre les champs coercitifs positif et négatif pour la couche dure et la couche douce.*

des deux couches (dure et douce). La figure 4.12-b représente cette différence pour plusieurs valeurs d'angle θ autour de la direction supposée d'anisotropie. L'angle de 180 degrés correspond au champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan des couches, direction qui correspond normalement à l'axe facile d'aimantation. On constate que, pour les angles compris entre 182 et 190 degrés, la différence de champ coercitif pour la couche dure est très importante. Or, normalement, cette différence devrait être nulle.

Ce comportement peut être à un couplage magnétique entre les électrodes douce et dure. En effet, lorsque le décalage ΔH_c est maximum (ce qui est observé pour un angle θ d'environ 186-188 degrés), on observe sur le cycle R(H) que le renversement de la couche douce n'est plus abrupt, mais progressif. Ces données ne permettent pas de déterminer avec certitude l'origine exacte du couplage. Mais, au vu de la structure utilisée, on peut suspecter que ce couplage résulte d'inhomogénéités de la couche dure. Une étude plus complète de la structure de l'empilement devra être entreprise pour le confirmer. En tout cas, la conséquence est que la couche dure n'est pas saturée.

Modification de la couche dure

Un moyen de surmonter le problème de non-continuité de la couche de CoFeB déposée sur le MgO est d'augmenter l'épaisseur de celle-ci, au moins de 2nm de CoFeB. Or, comme on l'a évoqué, l'augmentation de l'épaisseur de CoFeB va modifier les propriétés magnétiques de l'ensemble de la bicouche CoTb/CoFeB. Pour compenser cette modification, il est nécessaire de modifier les propriétés de la couche de CoTb. Pour cela, nous avons remplacé la couche dure *CoFeB 1.5nm / ($Co_{0.84}Tb_{0.16}$) 20nm* par soit *CoFeB 2nm / ($Co_{0.80}Tb_{0.20}$) 20nm / Cu / Pt*, soit *CoFeB 2nm / ($Co_{0.80}Tb_{0.20}$) 40nm*.

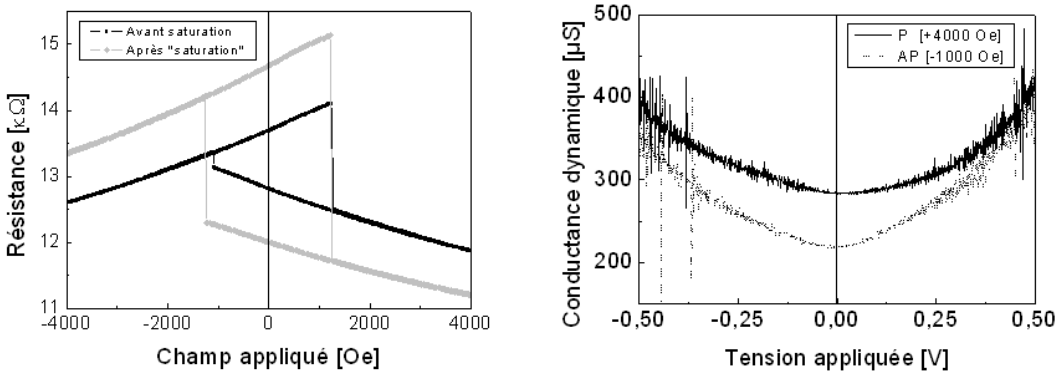


FIG. *4.13 – A gauche, mesures de résistance en fonction du champ magnétique appliqué, pour un échantillon ($Co_{0.84}Tb_{0.16}$) 20nm / CoFeB 1.5 nm/ MgO 2nm / CoFeB 2nm / ($Co_{0.80}Tb_{0.20}$) 20nm / Cu / Pt. A droite, conductance dynamique en fonction de la tension de polarisation, pour les configurations parallèle et antiparallèle, sur ce même échantillon.*

Un cycle de R(H) représentatif d'échantillons avec une couche dure *CoFeB 2nm /($Co_{0.80}Tb_{0.20}$) 20nm*, est donné en figure 4.13. La courbe de gauche (en noir) est obtenue après un cycle $\pm$ 4 kOe. La courbe grise est obtenue après application d'un champ magnétique de 1,5 T (à l'aide d'un VSM, étant donné que les bancs de magnéto-transport du laboratoire ne permennent pas d'atteindre de telles valeurs de champ), dans l'espoir de saturer la couche dure. On constate sur le cycle R(H) que l'application de ce champ n'est pas suffisante. Les courbes de conductance présentent de leur côté la signature d'un processus de transport tunnel, signe que la jonction tunnel est fonctionnelle.

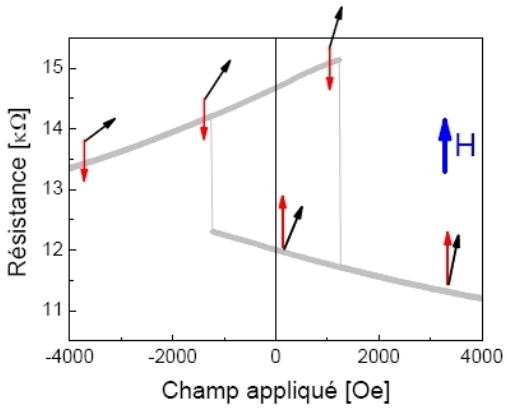


FIG. *4.14 – Mesures de résistance en fonction du champ magnétique appliqué, pour un échantillon ($Co_{0.84}Tb_{0.16}$) 20nm / CoFeB 1.5nm / MgO 2nm / CoFeB 2nm / ($Co_{0.80}Tb_{0.20}$) 20nm / Cu / Pt. Les flèches schématisent les directions des aimantations de chacune des deux couches.*

On peut comprendre le cycle d'aimantation à l'aide de la figure 4.14. La couche de CoFeB en contact avec la barrière est cantée (son axe d'anisotropie est désaxé) et la couche dure

CoTb/CoFeB dure ne se retourne jamais. Pour réduire ce *canting*, il faut renforcer l'anisotropie perpendiculaire de l'ensemble, en augmentant l'épaisseur de la couche de $Co_{0.80}Tb_{0.20}$.

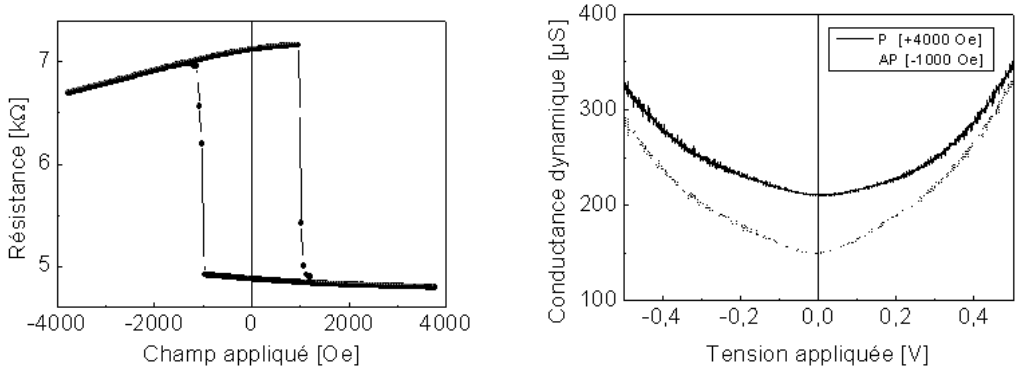


FIG. *4.15 – A gauche, mesures de résistance en fonction du champ magnétique appliqué, pour un échantillon ($Co_{0.84}Tb_{0.16}$) 20nm / CoFeB 1.5nm / MgO 3nm / CoFeB 2nm / ($Co_{0.80}Tb_{0.20}$) 40nm / Cu / Pt. A droite, conductance dynamique en fonction de la tension de polarisation, pour les configurations parallèle et antiparallèle, sur ce même échantillon.*

En augmentant son épaisseur à 40 nm, on observe (figure 4.15) que les pentes sont réduites, comme on s'y attend. Seul problème, la TMR a diminué, et ne vaut plus que 50 %. On suppose que le *canting* d'aimantation d'interface est responsable de cette diminution. Cette limitation des propriétés magnétiques est probablement ce qui nous empêche d'obtenir une TMR supérieure à celle attendue, maintenant que le problème de continuité du CoFeB a été réglé.

4.3.4 Oxydation de la couche de Co_xTb_{1-x}

Une complication rencontrée lors de la mise en forme des jonctions est la propension qu'ont les terres rares à s'oxyder. La couche de CoTb s'oxyde très facilement lorsqu'elle est au contact d'oxygène, ce qui est susceptible de survenir à deux étapes de la fabrication.

D'abord pendant la phase de dépôt : même avec un vide suffisamment poussé (10^{-9} mbar) dans l'enceinte principale, le temps de pause entre la fin du dépôt de CoTb et le début du dépôt de la couche supérieure peut être suffisant pour que la couche s'oxyde légèrement. Il est donc préférable de déposer les couches supérieures dans la foulée, afin de ne pas laisser la couche exposée trop longtemps.

L'oxydation peut également survenir pendant l'étape de structuration, lors de la première phase de gravure ionique. Cette première étape nécessite de graver l'échantillon jusqu'au niveau de la barrière tunnel. La mince épaisseur de la couche de CoFeB rend fréquentes des surgravures accidentelles l'échantillon. La couche de CoTb va, lors des étapes suivantes de structuration, être de fait exposée à l'air libre et s'oxyde rapidement. Cela peut fortement dégrader les propriétés de la JTM (altération du magnétisme, instabilité des contacts électriques, formation de barrières tunnel parasites qui vont dépolariser les électrons, court-circuit entre les

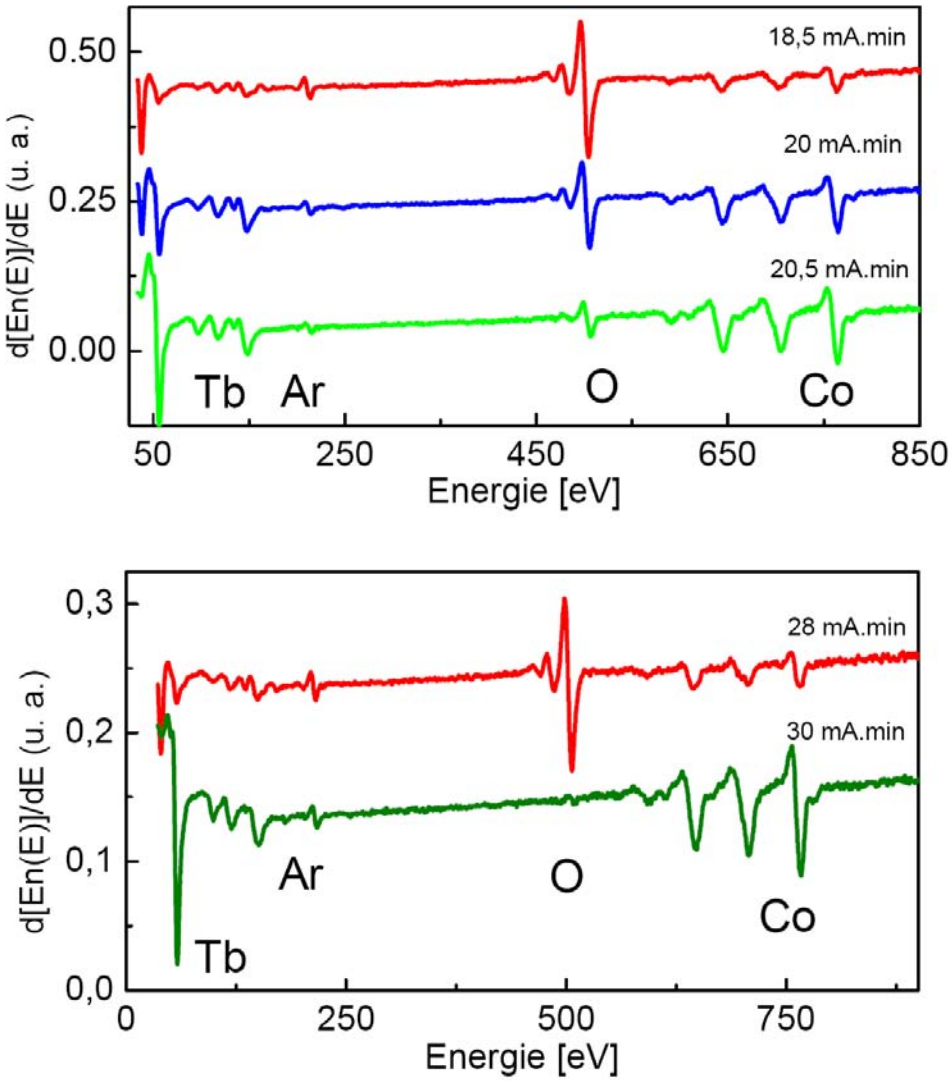


FIG. *4.16 – Spectres Auger, en mode dérivé, enregistrés lors de la progression de la gravure dans deux cas : jonction non surgravée en haut, jonction surgravée en bas (respectivement, échantillons 1510 et 1527). Les courbes montrent les spectres Auger, enregistrés à différentes étapes de la gravure (la dose, indiquée pour chaque courbe, est incrémentée pas à pas). Dans la seconde figure, on voit que l'on a dépassé (de loin) la barrière : la signature de l'oxygène a complètement disparu, et l'intensité des pics associés au Co et au Tb augmente.*

deux électrodes).

Un dénombrement des échantillons traités lors de cette étude font bien apparaître une légère corrélation entre surgravure et dysfonctionnement de la barrière. Dès lors qu'il y a une surgravure avérée (constatée par une analyse Auger de la surface de l'échantillon à la fin de la gravure ; voir la figure 4.16 pour un exemple), plus de 50 % des jonctions tunnel magnétiques de la plaque étaient court-circuitées et donc inutilisables.

Lorsque la gravure est arrêtée normalement (c'est à dire dans la barrière tunnel), le taux de réussite est plus favorable : dans trois-quarts des cas, plus de 80 % des jonctions sont opérationnelles. Notons toutefois que ces barrières restent fragiles ; leur tensions de claquage est comprise entre 0.5 et 1 V, ce qui est faible par rapport à celles des jonctions à aimantation planaire.

4.4 Jonctions tunnel magnétiques à anisotropies croisées

La section précédente a montré que l'on parvenait à élaborer des jonctions tunnel magnétiques à anisotropies magnétiques perpendiculaires au plan, même si leurs performances peuvent encore être optimisées. L'étape suivante est d'élaborer une JTM à aimantations croisées, à partir des résultats sur les jonctions à aimantations planaires et perpendiculaires.

4.4.1 Élaboration et caractéristiques

L'échantillon est élaboré par pulvérisation cathodique, suivant le même principe que celui déjà détaillé dans la section précédente. La composition de la jonction est la suivante : *Verre // Ta 5nm / Co 10nm / IrMn 7.5nm / CoFeB 6nm / MgO 3nm / CoFeB 2nm / ($Co_{0.84}Tb_{0.16}$) 40nm / Cu 3.5nm / Pt 3nm.*

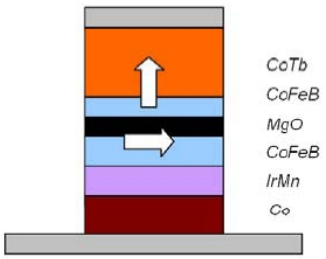


FIG. *4.17 – Schéma de principe de la JTM à aimantations croisées.*

La structure à aimantation perpendiculaire est obtenue par une couche de CoFeB de 2nm associée à une couche de $Co_{0.84}Tb_{0.16}$ de 40 nm d'épaisseur. Les résultats de la section précédente ont montré que cette couche, de petit coercitif, reste perpendiculaire même après recuit. Ces résultats ont aussi mis en évidence une saturation incomplète de l'aimantation dans la direction perpendiculaire. Ce point reste encore en suspens, et il devra être amélioré. En l'état, il est toutefois possible d'assembler la jonction, au moins pour confirmer la faisabilité du dispositif.

L'électrode inférieure de la jonction perpendiculaire est remplacée par l'empilement à aimantation planaire utilisé dans les jonctions du chapitre 3. En l'occurence, il s'agit d'une couche de CoFeB dont l'aimantation est biaisée par décalage d'échange, en y adjoignant une couche de l'antiferromagnétique IrMn bloquée. Remarquons au passage qu'ici, puisque la couche de CoTb inférieure est remplacée par la structure à aimantation planaire, on ne retrouve pas les difficultés d'élaboration rencontrées dans la section précédente. On constate notamment un taux de réussite de presque 100 % dans la réalisation technologique, ce qui souligne qu'une partie des difficultés précédemment rencontrées provient de la couche de CoTb inférieure.

Pour le reste, le procédé d'élaboration reprend ceux déjà exposés dans les parties concernés, notamment pour le dépôt de la barrière. L'échantillon est recuit postérieurement au dépôt, sous vide, à une température de 300˚C pendant une heure. Le but est cette fois-ci double : il sert à favoriser la cristallisation de la jonction, mais aussi à bloquer magnétiquement la couche d'échange ; on applique en plus un champ magnétique de +200 Oe, suivant la direction de facile aimantation de la couche planaire, pendant le refroidissement de la jonction.

La figure 4.18 présente les cycles d'hystérésis de chacune des deux couches, mesurés par magnétométrie VSM, avant la structuration de l'échantillon. Le champ magnétique y est appliqué suivant chacune des deux directions (dans le plan, perpendiculairement au plan des couches de l'échantillon).

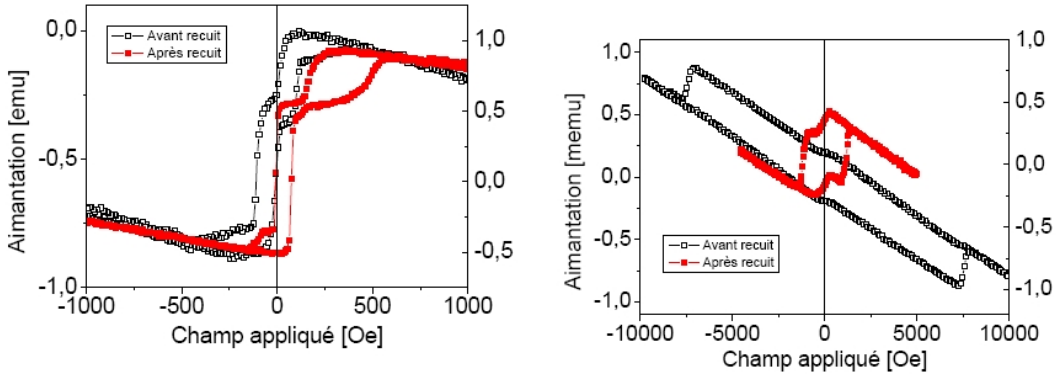


FIG. *4.18 – Cycles d'hystérésis, mesurés par magnétométrie VSM, de la multicouche avec le champ appliqué dans le plan [a] et perpendiculaire au plan [b]. La courbe en pointillés correspond au cycle avant recuit, celle en trait plein au cycle après recuit à 300˚C. On observe bien la réduction du champ coercitif de la couche à anisotropie perpendiculaire, après recuit.*

Le cycle d'hystéresis mesuré dans le plan, permet bien, après recuit, d'observer les champs coercitifs de la couche de Co et la couche de CoFeB (toutes deux biaisées par la couche d'IrMn, ce qui explique leur décalage). Pour l'électrode à anisotropie perpendiculaire au plan, le cycle après recuit montre un champ coercitif du CoFeB/CoTb de 900 Oe. Le petit saut parasite observable à bas champ sur les deux cycles résulte de l'inclusion (involontaire) d'impuretés magnétiques dans la couche tampon de Ta déposée sur le substrat (et qui forme la couche d'accroche de l'ensemble de la multicouche).

4.4.2 Propriétés de magnéto-transport

La figure 4.19 présente les mesures de magnétorésistance effectuées sur la jonction *Verre // Ta 5nm / Co 10nm / IrMn 7.5nm / CoFeB 6nm / MgO 3nm / CoFeB 2nm /($Co_{0.84}Tb_{0.16}$) 40nm / Cu 3.5nm / Pt 5nm* (échantillon 1594), après structuration et recuit. Le champ magnétique est appliqué suivant l'axe d'anisotropie de la couche à aimantation planaire. Comme précédemment, les mesures sont réalisées en configuration deux-points, à température ambiante, à une tension de polarisation V_p = + 10 mV.

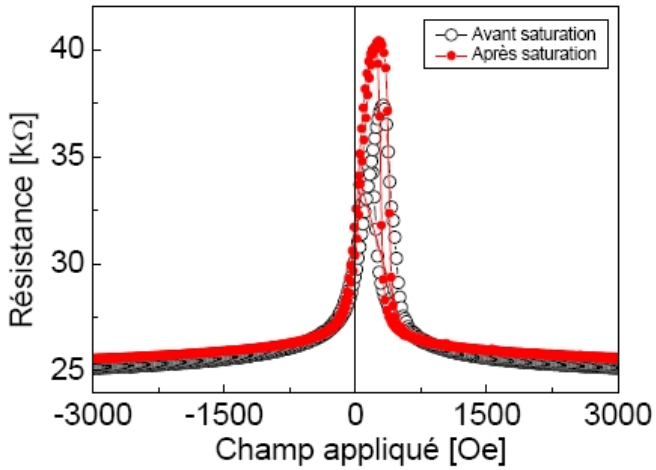


FIG. *4.19 – Cycles de magnétorésistance, mesurés à température ambiante sur la jonction 45a, montrant l'évolution de la résistance R en fonction du champ magnétique appliqué. Le champ est appliqué dans le plan, afin de limiter les effets de non- saturation de la couche dure.*

Le cycle R(H) a l'allure de celui caractéristique d'une jonction tunnel à aimantation croisées [55]. On mesure 60 % de TMR à température ambiante. On voit que l'aimantation de la couche à anisotropie planaire se retourne avant que la couche à aimantation perpendiculaire ne soit complètement saturée. Nous n'avons donc pas accès à l'amplitude totale de la TMR autrement permise. La caractéristique courant-tension (figure 4.20) présente un aspect non-linéaire, et la conductance dynamique est parabolique, comportement attendu pour du transport tunnel. On notera la résistance surfacique élevée, qui vaut ici $2,5 M\Omega.\mu m^2$.

Ces résultats sont un premier pas encourageant : ils valident la faisabilité de la jonction à anisotropies croisées proposée. Nous arrivons déjà à obtenir, de manière reproductible, des JTM qui présentent une TMR relativement élevée (60 %). Le problème de magnétisme de l'électrode perpendiculaire de CoFeB/CoTb limite encore cette valeur. Une fois qu'il sera réglé, on peut espérer obtenir des valeurs de TMR plus importantes. Nous disposerons alors de la dernière brique de base nécessaire à l'élaboration de la double jonction tunnel. En dehors de leur intérêt pour ce projet, ces structures à aimantations croisées peuvent trouver des applications en tant que capteur de champ magnétique [124].

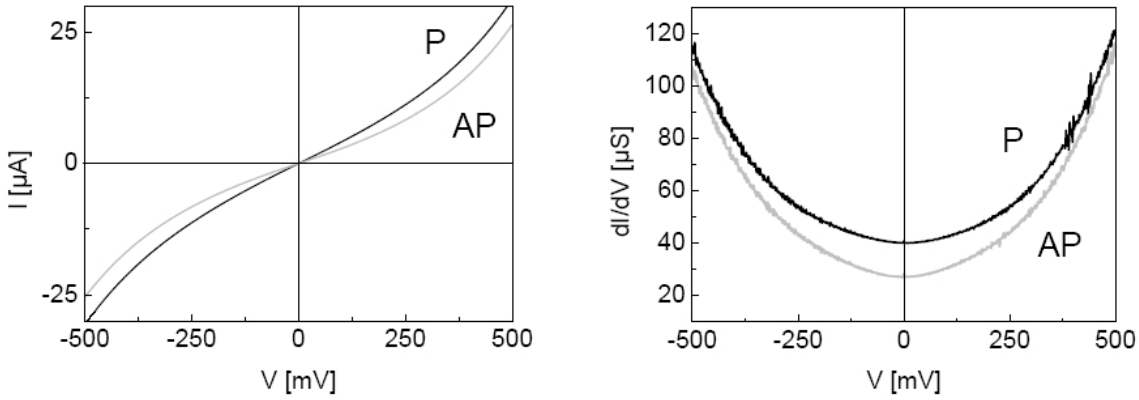


FIG. *4.20 – Caractéristique courant-tension [a] et conductance dynamique [b] mesurés sur l'échantillon 1594-45a, à température ambiante. L'état P est obtenu après saturation de la couche supérieure dans le plan, en appliquant un champ de + 4 kOe.*

4.5 Conclusion

Le travail de ce chapitre a été motivé par la nécessité de disposer de jonctions tunnel magnétiques à anisotropies magnétiques croisées (avec une direction alignée dans le plan des couches, l'autre étant perpendiculaire aux couches), en vue de réaliser les doubles jonctions tunnel magnétiques. Ces jonctions devaient utiliser des matériaux magnétiques qui permettent l'obtention d'anisotropies perpendiculaires et de valeurs de TMR élevées, mais aussi qui soient compatibles avec l'utilisation des barrières tunnel de MgO élaborées par pulvérisation cathodique magnétron.

Ce n'était pas le cas des empilements Co/Pt utilisés dans les doubles jonctions tunnel à barrières d'alumine ; ceux-ci entraînent une texturation parasite de la barrière de MgO, problème qui ne se posait pas dans le cas des barrières amorphes d'alumine. Il a donc fallu, là encore, partir de zéro pour mettre en place un procédé d'élaboration de JTM qui répondent aux critères demandés.

Le choix des matériaux magnétiques perpendiculaires s'est porté sur des couches minces amorphes de CoTb, systèmes par ailleurs étudiés au laboratoire pour des travaux sur les vannes de spin (thèse en cours de Matthias Gottwald). Une partie importante du travail a consisté à obtenir des JTM incorporant ce matériau.

Pour ce faire, nous avons d'abord obtenu des jonctions CoTb / CoFeB / MgO / CoFeB / CoTb. Elles présentent une TMR de 60 % à température ambiante, valeur proche de l'état de l'art sur ce type de systèmes, mais qui reste inférieure à ce qui peut être espéré théoriquement. Nous avons identifié un facteur susceptible d'expliquer cette limitation de TMR, à savoir la non-continuité des électrodes de CoFeB en-deçà d'une certaine épaisseur. L'augmentation de l'épaisseur de ces électrodes devrait permettre de bénéficier pleinement des effets de filtrage en symétrie, et donc conduire à une TMR plus élevée. Ces effets n'ont toutefois pas pu être confirmés avec certitude dans notre cas, puisque l'augmentation de l'épaisseur de CoFeB a conduit à une dégradation des propriétés magnétiques (non saturation de la couche dure) qui a masqué

une éventuelle hausse de TMR. L'origine précise de ce problème n'est pas encore complètement comprise, et un complément d'étude devra être mené afin de régler ce contretemps.

Sur la base de ces résultats, l'empilement ainsi obtenu a tout de même été repris pour élaborer des JTM Ta / Co / IrMn / CoFeB / MgO / CoFeB / CoTb à anisotropies croisées. Celles-ci présentent 60 % de TMR à température ambiante. La levée du problème de magnétisme de la couche dure identifié dans le cas précédent, permettra là aussi l'obtention de TMR plus élevée.

En dehors de son intérêt pour les études de précession, ce système peut avoir une utilité et servir de base dans le cadre des études pour le spin-torque transfer dans des JTM perpendiculaires. Ses performances en termes de TMR sont tout à fait convenables, puisque, comme on l'a vu, le record actuel de TMR (tous matériaux confondus) est actuellement à 200 %. Notre approche est donc potentiellement intéressante, à condition d'arriver à lever le problème de magnétisme et de confirmer l'augmentation de TMR attendue. Cela dit, ce travail n'a pas été mené avec la STT à l'esprit, et les JTM souffrent de quelques problèmes rédhibitoires (résistance surfacique très élevée, ...). Qui plus est, certains des systèmes concurrents ont récemment fait des avancées très significatives, comme les travaux très récemment publiés par Yuasa et coauteurs [120].

En tout état de cause, ces travaux ont permis de valider l'approche choisie. Ce chapitre s'est conclu avec l'obtention de JTM fonctionnelles, quoique perfectibles. La brique de base proposée permet d'obtenir des propriétés supérieures à celles obtenues avec les barrières d'alumine ; elle sera très prochainement améliorée, puis intégrée dans la double jonction tunnel magnétique.

Chapitre 5

Élaboration de multicouches ferromagnétiques sur une jonction métal / oxyde / semi-conducteur

5.1 Introduction

5.1.1 Objectifs du chapitre

Ce chapitre est consacré à l'élaboration de structures magnétiques (filtre à spin ou vannes de spin) déposées sur une jonction métal/oxyde/semi-conducteur. Ces travaux constituent l'approche complémentaire l'approche « tout-solide » précédemment discuté. Le but est ici de parvenir à élaborer un morceau du dipositif « tout-solide » nécessaire pour l'étude de la précession du spin, en utilisant une approche alternative à l'utilisation d'une jonction tunnel magnétique. Dans ce chapitre, on s'attachera à élaborer ces empilements, pour montrer la faisabilité de l'approche, puis à optimiser leurs propriétés (magnétisme, propriétés électriques et structurelles). Des mesures de transport d'électrons chauds seront ensuite effectuées sur ces systèmes, afin d'étuduer la transmission polarisée en spin. Ces études sont réalisées en partenariat avec le laboratoire Physique de la Matière Condensée, de l'Ecole Polytechnique, à Palaiseau.

Dans un contexte plus large, ces jonctions ferromagnétique/semi-conducteur sont étudiées depuis de nombreuses années, dans l'espoir de parvenir à injecter, de manière efficace, un courant polarisé en spin dans un semi-conducteur, notamment le silicium ou l'arsenure de gallium. L'enjeu est important : il rendrait possible la réalisation de composants magnétiques hybrides, compatibles avec les technologies CMOS sur lesquelles sont basées une bonne partie des dispositifs contemporains de la microélectronique.

Le principe du dispositif à réaliser est le suivant : un faisceau d'électrons I_0, polarisés en spin, est injecté dans une structure composée d'un empilement de plusieurs couches ferromagnétiques. Cet empilement peut être une vanne de spin, ou une jonction tunnel magnétique. En tirant profit des effets de polarisation et de magnéto-résistance observés dans ces structures (respectivement magnétorésistances géante (GMR) et tunnel (TMR)), on pourra assurer une

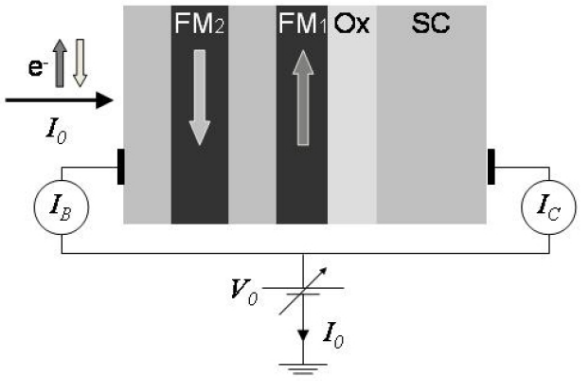


FIG. *5.1 – Schéma de principe du dispositif étudié. Un faisceau d'électrons I_0, polarisés en spin, est injecté dans une structure composée d'une vanne de spin (couches ferromagnétiques FM1 et FM2, séparées par un espaceur métallique non-magnétique), déposée sur un substrat semi-conducteur (SC) recouvert d'une couche d'oxyde (Ox). Le dispositif expérimental donne accès aux courants de base et de collecteur de la structure (I_B et I_C), permettant ainsi d'étudier la transmission des électrons chauds dans l'échantillon.*

sélectivité du courant collecté en fonction de l'état de spin des électrons chauds.

L'étude sera ici menée avec des vannes de spin. Selon les résultats, les travaux pourront être étendus à des empilements comportant des jonctions tunnel magnétiques. En fait, dans un premier temps, nous travaillerons sur des échantillons ne comportant qu'une seule couche ferromagnétique (effet de filtre à spin), afin de vérifier la dépendance en spin du courant d'électrons transmis. Le faisceau d'électrons polarisés en spin est injecté dans la couche simple ; suivant l'orientation de la polarisation des électrons par rapport à l'aimantation de cette couche magnétique unique, les électrons sont diffusés de manière différente, et il apparaît un magnéto-courant d'électrons chauds. Il en sera de même pour la précession si la configuration des aimantations n'est pas colinéaire, ou avec une vanne de spin, comme c'est le cas sur le schéma de la figure 5.1 : deux couches ferromagnétiques, FM1 et FM2, sont séparées par un espaceur métallique non-magnétique).

Le filtrage en énergie peut soit être assuré par une jonction Schottky (jonction métal/semi-conducteur), soit par une jonction MOS (métal/oxyde/semi-conducteur). La seconde option est préférable, car la couche d'oxyde intemédiaire permet de limiter la diffusion des métaux de transition (provenant de la couche ferromagnétique) dans le semi-conducteur. Concernant la nature de l'oxyde, nous avons le choix entre du silicium oxydé, de l'aluminium oxydé, mais aussi l'oxyde de magnésium, comme celui qui est utilisé pour les barrières tunnel de nos JTM, ou encore une combinaison de ces matériaux.

Les mesures de transmission seront effectuées sur le dispositif expérimental mis en œuvre par l'équipe PMC de l'école Polytechnique, qui a déjà fait l'objet de plusieurs travaux pour l'étude du transport dans des jonctions métal / semi-conducteur [125], [126]. Le dispositif expérimental donne accès aux courants de base et de collecteur de la structure (I_B et I_C), permettant

ainsi d'étudier la transmission des électrons chauds dans l'échantillon.

5.1.2 Plan de travail

Dans un premier temps, le travail porte sur l'élaboration de structures multicouches qui possèdent toutes les propriétés requises pour cette étude. En effet, les échantillons doivent satisfaire à un certain nombre de contraintes :

- Les propriétés électriques de la jonction métal/(oxyde)/semi-conducteur doivent permettre la mesure. Notamment, la résistance électrique dynamique (R) de la jonction métal / oxyde / semi-conducteur doit être suffisamment grande par rapport à la résistance d'accès de la multicouche métallique (r). En effet, c'est le ratio r/R entre ces deux grandeurs qui fixe la limite de détection du courant transmis. Or, les coefficients de transmission attendus sont très faibles, de l'ordre de 10^{-6} à 10^{-5} [126]. Vu les valeurs de r usuelles, (quelques dizaines d'ohms), il est préférable que R soit de l'ordre du méga-ohm.
- Du point de vue structurel, il est impératif que l'empilement des couches minces présente la plus faible rugosité possible. Dans le cas contraire, on pourra voir apparaître des couplages magnétiques entre les couches ferromagnétiques, ce qui aura une incidence sur leurs propriétés. Bien évidemment, les couches (notamment celle d'oxyde) doivent d'être suffisamment bonne qualité pour ne pas présenter de défauts susceptibles de donner lieu à des courts-circuits. Le tout doit également avoir une épaisseur totale la plus faible possible. En effet, plus l'épaisseur de l'empilement sera grande, plus les électrons chauds seront susceptibles de se thermaliser lors de leur parcours, ce qui diminuera d'autant le courant collecté.
- La multicouche magnétique (qui dans un premier temps est à anisotropie planaire) doit présenter des couches découplées avec une aimantation rémanente à champ nul et, pour les vannes de spin, une magnétorésistance la plus grande possible. Les besoins de l'étude nous conduiront par la suite à élaborer des vannes de spin à anisotropies magnétiques croisées (une orientée dans le plan de la couche, et l'autre dans le plan normal à la couche). Il faudra donc parvenir à stabiliser une telle configuration magnétique.

Ce travail d'élaboration a été découpé en plusieurs étapes : d'abord, nous avons travaillé sur l'élaboration de la jonction oxyde / semi-conducteur en optimisant la texture de la couche d'oxyde. Une fois cette étape validée, nous avons travaillé à l'élaboration de la couche (et des multicouches) magnétique(s) et à optimisation des propriétés magnétiques.

Dans un second temps, les échantillons qui répondaient aux critères énoncés plus haut ont été sélectionnés pour y effectuer les mesures de transmission d'électrons chauds. Nous présentons les premiers résultats issus des campagnes de mesures menées au laboratoire PMC. Ce chapitre est consacré à l'élaboration des structures, et n'a donc pas vocation à analyser en détail la physique du transport d'électrons chauds dans ces structures. Aussi, pour une étude plus approfondie, on pourra se rapporter aux travaux de thèse de Xiaoxin Li, actuellement en cours au laboratoire PMC. Nous montrerons cependant que du transport d'électrons chauds a pu être observé sur des structures de type filtre à spin et vanne de spin, et nous discuterons ces résultats.

5.2 Propriétés du substrat semi-conducteur

Les multicouches ont été déposées sur deux types de substrats : des substrats de silicium (Si) d'orientation (111) et (100) d'orientation (100), avec des dopages de type n et de type p. Les dopages sont tels que les résistivités se situent dans une gamme de 1 à 10 Ω.cm (la densité de dopage vaut 10^{15} cm^{-3}). Les substrats sont polis sur une face. Pour éliminer le contact redresseur arrière, le contact électrique est pris via un contact InGa.

L'essentiel du travail s'est déroulé sur des substrats Si, principalement pour des raisons de coût, vu le nombre important d'échantillons à réaliser. Pour commencer, des tests ont été menés sur les substrats Si(111) et Si(100), car ces derniers présentent des rugosités de surface différentes. Par la suite, pour la croissance du MgO, nous avons travaillé uniquement sur les substrats de Si(100).

5.3 Jonctions MOS à barrière d'Al_2O_3

5.3.1 Caractéristiques des échantillons

Conditions d'élaboration

Les empilements sont déposés sur les substrats de silicium, après une étape de décapage (ou *etching*). Cette étape consiste à décaper la surface du substrat à l'aide d'un plasma « RF » d'argon, pour éliminer les divers contaminants (eau, couche d'oxyde natif...) qui auraient pu s'y adsorber avant l'insertion dans le bâti. Cette pulvérisation est faite à une puissance plasma de 100 W, sous une pression d'argon de 2.10^{-2} mbar.

On peut ensuite ajouter sur le substrat une couche supplémentaire d'oxyde, en sus de la barrière d'Al_2O_3. En effet, cette dernière doit être élaborée en deux temps, en déposant d'abord une couche métallique d'aluminium, qui est ensuite oxydée par un plasma d'oxygène. Or, en déposant directement le métal Al sur la surface du semi-conducteur, on risque de promouvoir une interdiffusion entre le Si et le métal, et ce même si le dépôt est réalisé à température ambiante.

Pour se prémunir contre ce problème, une solution est d'intercaler une couche de SiO_2 de faible épaisseur (2 à 3 nm). Pour cela, après le décapage, la surface du semi-conducteur est soumise à un plasma d'Ar+O_2 (d'une durée 60 s, avec une puissance de 20 W et une pression d'argon de 10^{-2} mbar) afin de l'oxyder de manière contrôlée. Dans ce cas, la réactivité avec le métal déposé est moindre. Mais comme le métal est déposé sur un isolant, il y a un risque de formation d'une couche rugueuse, en raison de la différence des tensions de surface des deux matériaux.

Pour synthétiser la barrière d'Al_2O_3, on dépose une couche d'aluminium de 2 nm d'épaisseur, que l'on oxyde par plasma d'Ar+O_2 (paramètres expérimentaux : durée 80 s, puissance 20 W, pression d'argon de 10^{-2} mbar). Le choix des paramètres expérimentaux, issu de l'expérience dans l'élaboration des jonctions tunnel magnétiques vues au chapitre 5, est optimisé de sorte à oxyder entièrement toute la couche d'aluminium.

Couplage magnétique et rugosité des couches déposées

Les études de précession nécessitent des structures dans lesquelles les différentes configurations de l'aimantation à champ nul sont stabilisées. En effet, tout champ externe appliqué viendra se rajouter au champ d'échange dans la couche ferromagnétique, ce qui entraînera un effet de précession supplémentaire (même si l'amplitude de cet effet sera petite devant celle de la précession induite par le champ d'échange). Pour assurer la stabilité des configurations, il est donc nécessaire de diminuer au maximum les couplages entre les couches magnétiques.

On trouve de nombreuses sources de couplage dans des empilements de couches minces magnétiques. Outre le couplage direct de deux couches en contact, il existe plusieurs mécanismes de couplage magnétostatique, qui sont aujourd'hui bien connus : le champ démagnétisant dû à la forme de la couche, les interactions de parois de domaines... [103]. Le cas qui nous intéresse ici est lié à la topographie de surface des couches magnétiques, et plus particulièrement au niveau de leurs interfaces avec les couches voisines non-magnétiques : c'est le couplage dit de peau d'orange (ou *orange peel coupling*), initialement décrit par Louis Néel en 1962 [127]. Il se produit dans un système de deux couches minces séparées par une couche non-magnétique. Si l'interface n'est pas parfaitement plane, la modulation irrégulière des interfaces entre ces couches conduit à l'accumulation locale de « charges magnétiques ». De là, il naît un champ dipolaire, qui tend à coupler les deux couches entre elles. Ce couplage peut être ferromagnétique ou antiferromagnétique, selon la façon dont est corrélée la rugosité des deux couches.

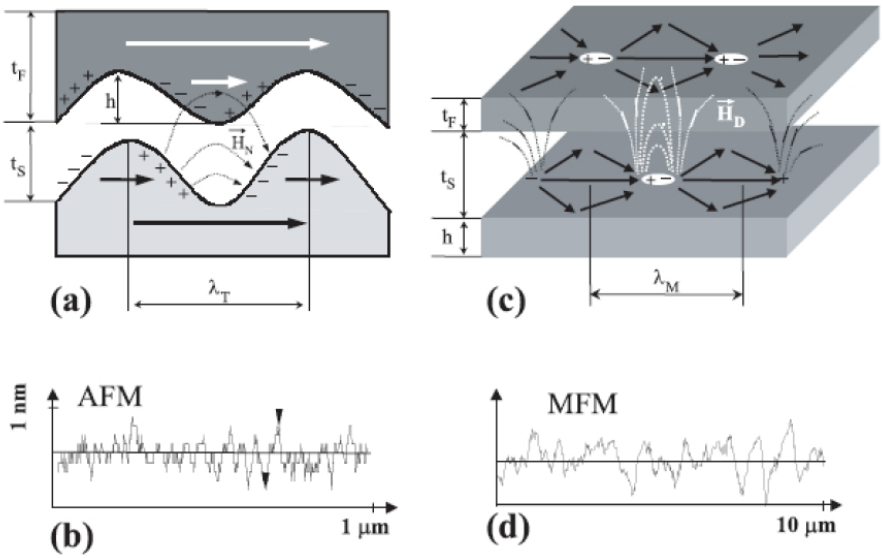


FIG. *5.2 – Schéma de principe illustrant les deux types de rugosité qui pouvant conduire à un couplage magnétostatique des deux couches de la vanne de spin. Extrait de [128].*

Cette accumulation de charges peut résulter d'une rugosité topographique de la surface, comme Néel l'a montré, mais aussi d'une rugosité « magnétique », qui provient alors d'une distribution non uniforme de l'aimantation à champ nul (voir l'illustration figure 5.2). Ce dernier

cas a été observé dans des jonctions tunnel magnétiques [128].

Cela souligne donc l'importance de contrôler la rugosité de la structure semiconducteur/isolant sur laquelle on dépose la multicouche magnétique.

5.3.2 Contrôle de la rugosité d'empilements oxyde/semi-conducteur

Nous avons commencé par travailler sur une simple structure oxyde/semi-conducteur, utilisant des substrats de Si d'orientation (111) ou (100). Afin de limiter l'interdiffusion entre l'aluminium et le silicium, la surface de Si est préalablement au dépôt de la barrière oxydée par plasma, suivant la procédure décrite plus haut. Notre préoccupation est avant tout d'obtenir une structure présentant une surface aussi plane que possible, pour éviter tout couplage magnétique entre les deux couches. Nous avons commencé par essayer de réduire la rugosité de la barrière amorphe d'alumine, sur laquelle est déposée la multi-couche magnétique. La topologie de la surface dépend de plusieurs paramètres expérimentaux, comme le traitement de décapage plasma (*etching*) du substrat, l'oxydation de la couche d'aluminium, ou encore l'orientation cristallographique du substrat de Si. L'oxydation de la couche d'aluminium étant contrôlée, nous avons considéré l'influence des deux autres paramètres.

Une première tentative pour réduire la rugosité de l'empilement consiste à modifier le temps de décapage plasma de la surface de Si, (noté t_{etch}), effectué préalablement au dépôt des couches supérieures. Les échantillons étudiés sont de type *Substrat // décapage(durée t_{etch}) / oxydation / Al 2nm / oxydation*, déposés sur des substrats de Si(100) et Si(111).

Nous avons caractérisé la rugosité de la surface par microscopie à force atomique (*atomic force microscopy*, ou AFM) la surface d'Al_2O_3 n'étant que peu modifiée par un rapide passage à l'air. Les figures 5.3 et 5.4 présentent les images AFM de la surface des échantillons réalisés sur Si (100) et sur Si (111). De ces résultats, on détermine la rugosité RMS (*root mean square*) de la surface d'alumine. Elle est tracée sur la figure 5.5 en fonction des propriétés du substrat et de la durée du traitement plasma.

On constate que la rugosité RMS est plus importante sur le substrat d'orientation (100) et va croissant en augmentant le temps d'oxydation. Pour ce qui est du substrat d'orientation (111), le minimum de rugosité est atteint pour un temps de décapage de t = 1350 secondes. De même, on constate que la rugosité pic à pic est plus importante sur le substrat d'orientation (111) que d'orientation (100) et décroit quand on augmente la durée du décapage.

A ce stade de l'étude, il est prématuré de trancher entre l'un ou l'autre des substrats. Pour la suite, nous retiendrons une valeur de temps de décapage fixée à 900 s, pour être sûr d'avoir enlevé tout l'oxyde natif et afin d'avoir des rugosités RMS voisines pour les deux types de substrats.

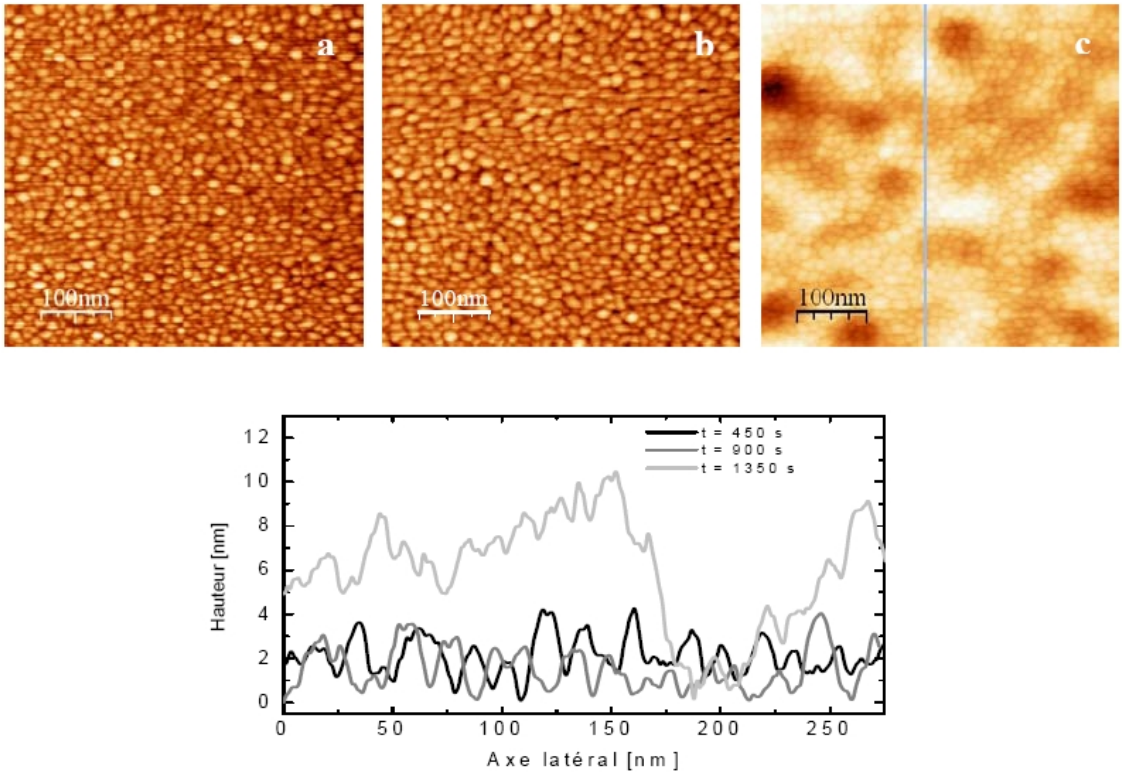


FIG. *5.3 – Évolution de la rugosité de la surface de la barrière en fonction des conditions de décapage du substrat de Si(100). Temps d'etching respectifs de [a] 450s, [b] 700s et [c] 1350 s. Le profil de rugosité est directement mesuré sur l'image AFM (trait gris vertical).*

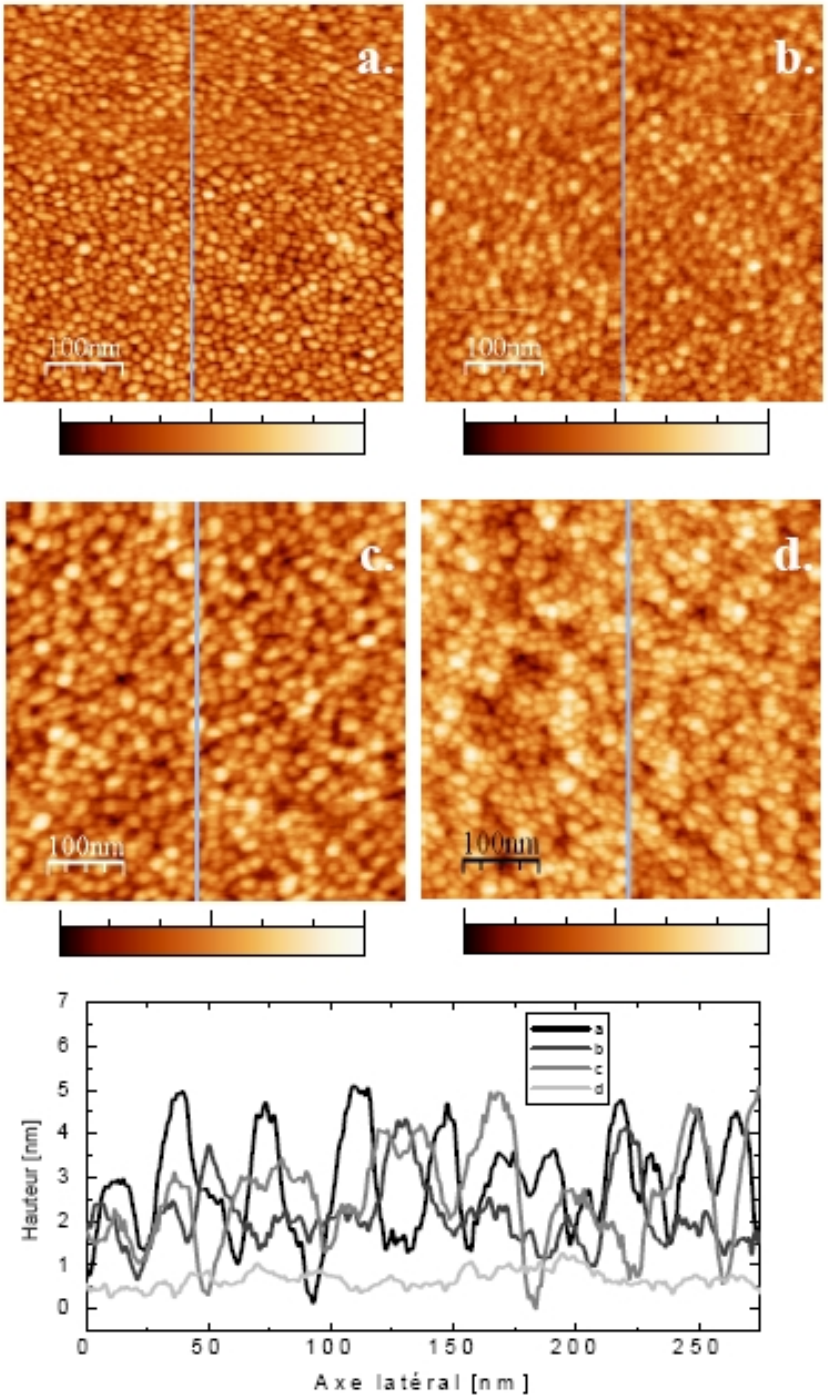
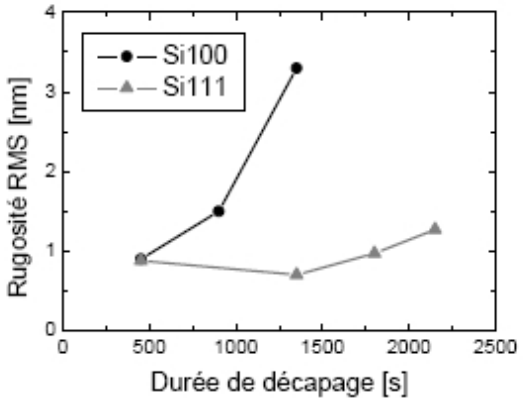


FIG. *5.4 – Évolution de la rugosité de la surface de la barrière en fonction des conditions de décapage du substrat de Si(111). Temps d'etching respectifs de [a] 450s, [b] 1350s, [c] 1750s et [d] 2150 s. Le profil de rugosité est directement mesuré sur l'image AFM (trait gris vertical).*



durée d'oxydation (s)	rugosité RMS de l'échantillon Si (100) (nm)	rugosité RMS de l'échantillon Si (111) (nm)
450	0,9	0,88
900	1,5	x
1350	3,3	0,7
1750	x	0,97
2150	x	1,27

FIG. *5.5 – Évolution de la rugosité en fonction de la durée de décapage du substrat.*

5.3.3 Propriétés magnétiques

Magnétisme et magnétorésistance géante

Nous avons ici étudié plusieurs configurations de vannes de spin, afin de tester la combinaison de différents matériaux pour les couches douce/dure. Nous avons utilisé CoFeB, NiFe, Co et une association Co/IrMn, de champs coercitifs qui vont de 1 Oe pour le CoFeB à 30 Oe pour le Co, et un champ de bias compris entre 100 et 300 Oe pour le système Co/IrMn après recuit sous champ. A chaque fois, l'épaisseur de Cu est fixée à 3,5 nm ; celle des couches de NiFe, CoFeB et Co sont inférieures à 5nm, en prévision des futures expériences de précession pour lesquelles l'épaisseur des couches doit être minimale si l'on veut conserver un courant d'électrons chauds. Les structures réalisées sont du type *Si // décapage 900s / SiO_2 / Al_2O_3 2nm / (vanne de spin) / (couche de protection)*. L'étude des propriétés magnétiques a été faite par magnétométrie VSM (*vibrating sample magnetometer*) à température ambiante.

On observe que, presque systématiquement, les couches sont couplées sur substrat Si, alors qu'elles avaient les propriétés désirées lorsqu'elles étaient déposées sur des substrats de verre (voir par exemple figure 5.6). Le phénomène est beaucoup plus marqué dans le cas du substrat Si(111) que pour le substrat Si(100).

La raison de ce couplage est la rugosité pic à pic du substrat. En effet, dans le cas du verre, elle est bien inférieure à 1 nm alors que sur les substrats Si(111), les valeurs mesurées dépassent 4 nm. Avec le Si(100), la rugosité est moindre, et le couplage est souvent moins prononcé (figure 5.7).

Notons au passage la valeur élevée de la magnétorésistance géante (GMR), qui atteint 8 %, alors que la même structure déposée sur un substrat de verre ne présentait qu'une GMR de 3 %.

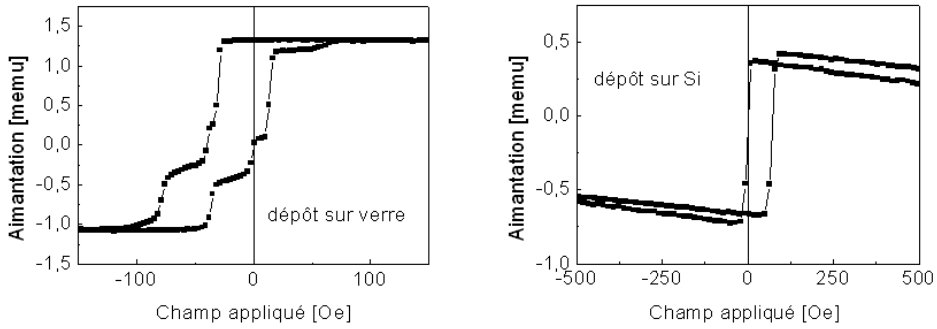


FIG. *5.6 – Cycles d'aimantation de la même structure,* Al_2O_3 / Co 5nm / Cu 3.5nm / Co 3nm / Ta 0.5nm / Co 3nm / IrMn 10nm / Pt 3nm*, à gauche déposée sur un substrat de verre recouvert de 5 nm de Ta, à droite sur* Si(111) / SiO_2.

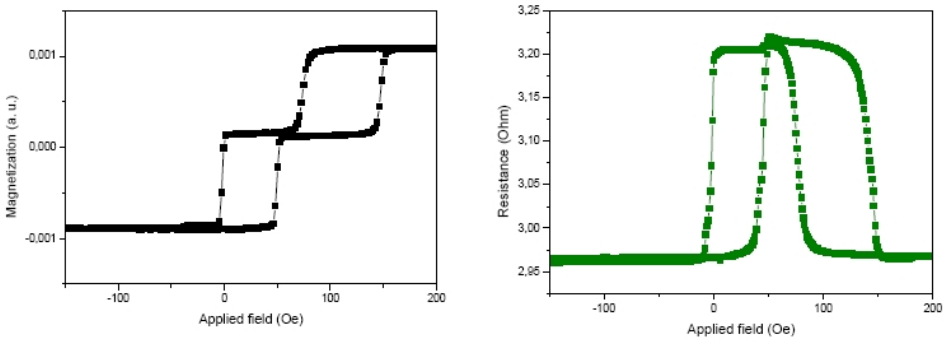


FIG. *5.7 – Cycle d'aimantation et mesure de GMR d'une structure Si(100) // décapage 900s / SiO_2 / Al_2O_3 2nm / Co 4nm / Cu 3.5nm / Co 4nm / IrMn 7.5nm / Pt 3nm.*

Influence de l'oxydation de l'espaceur de cuivre

La rugosité de l'empilement peut également provenir d'une importante rugosité de la couche de cuivre que l'on utilise ici comme espaceur de la vanne de spin. En effet, le cuivre déposé par pulvérisation cathodique a naturellement tendance à croître sous forme de gros grains, ce qui induit une rugosité à grande échelle. Un moyen de s'affranchir de ce problème est d'introduire un flux d'oxygène pendant le dépôt. Il a été montré que cela permet de réduire la taille de ces grains, ce qui aplanit l'interface entre les couches [129].

Pour vérifier cette hypothèse, nous avons fabriqué une série d'échantillons *Si(100) décapage 900s / SiO_2 / Al_2O_3 2nm / Ta 3nm / NiFe 5nm / Cu 3.5nm oxydé / Co 3nm / IrMn 7.5nm / Ru 3nm*, pour lesquels la couche de cuivre est déposée dans un plasma mixte d'argon mélangé à de l'oxygène. La figure 5.8 présente deux cycles d'hystéresis, mesurés par magnétométrie VSM, sur deux échantillons où la couche de Cu a été déposée dans un plasma d'Ar+O_2 avec un flux respectivement de 2 et 5 sccm (*standard cubic centimeters per minute*).

On constate une diminution du couplage ferromagnétique lorsque l'oxydation du cuivre est augmentée lors du dépôt. Cela tend à confirmer que l'on a bien réduit la rugosité de l'empilement. Cette technique, bien qu'utile pour réaliser des couches tampon à base de cuivre, est

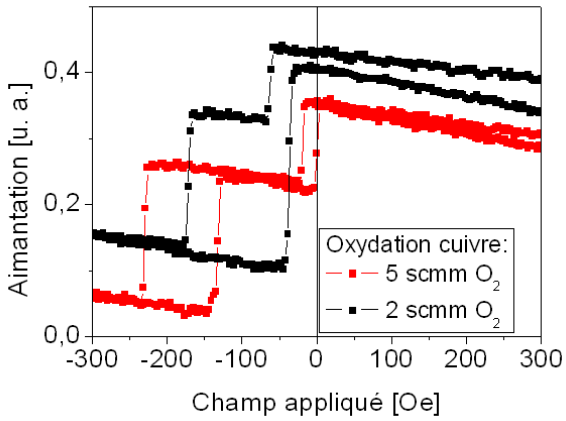


FIG. *5.8 – Cycles d'aimantation de la multicouche* NiFe/Cu/Co/IrMn *déposée sur* $Si/SiO_2/Al_2O_3$*, pour deux valeurs du flux d'*O_2 *ajouté pendant le dépôt de l'espaceur de cuivre.*

malheureusement inutilisable dans notre cas, où le Cu est intégré dans la vanne de spin. En effet, les mesures de magnéto-transport sur ces multicouches découplées ont montré qu'il n'y a plus du tout de magnétorésistance géante (GMR). Nous supposons que la couche de CuO est responsable de la dépolarisation du spin des électrons, détruisant ainsi l'effet de magnétorésistance. Cette piste a donc dû être abandonée.

5.3.4 Influence de l'insertion d'une couche de tantale

Un autre moyen d'atténuer les problèmes de rugosité est d'insérer une fine couche de tantale dans la structure. Ce dernier, pour de faibles épaisseurs (4-5 nm), est amorphe lorsqu'il est préparé par pulvérisation cathodique. Il permet d'atténuer, voire d'éliminer complètement la rugosité provenant des grains développés dans les couches inférieures, mais aussi de faciliter la croissance sur un matériau isolant. Le dépôt du Ta sur une surface rugueuse permet d'obtenir une surface lisse sur laquelle on peut faire croître les couches supérieurs.

Pour essayer de minimiser la rugosité de l'empilement magnétique, nous avons élaboré des échantillons avec une couche de Ta qui était intercalée à deux endroits différents : soit directement sur le substrat semi-conducteur, soit sur la barrière. Dans tous les cas, l'épaisseur de Ta doit être optimisée afin de conserver une épaisseur totale de multicouche qui soit la plus petite possible. Dans chaque cas, nous présentons des clichés de coupes de microscopie électronique en transmission (MET), ainsi que les propriétés magnétiques de la multicouche.

Insertion du Ta entre l'oxyde et la multicouche métallique

Dans cet échantillon, du Ta a été inséré entre l'oxyde d'aluminium Al_2O_3 et la multicouche magnétorésistive. L'échantillon a pour structure *Si(100)/ décapage 900s / SiO_2 / Al_2O_3 2nm / Ta 5nm / Co 4nm / Cu 3.5nm / Co 4nm / IrMn 7.5nm / Pt 3nm.*

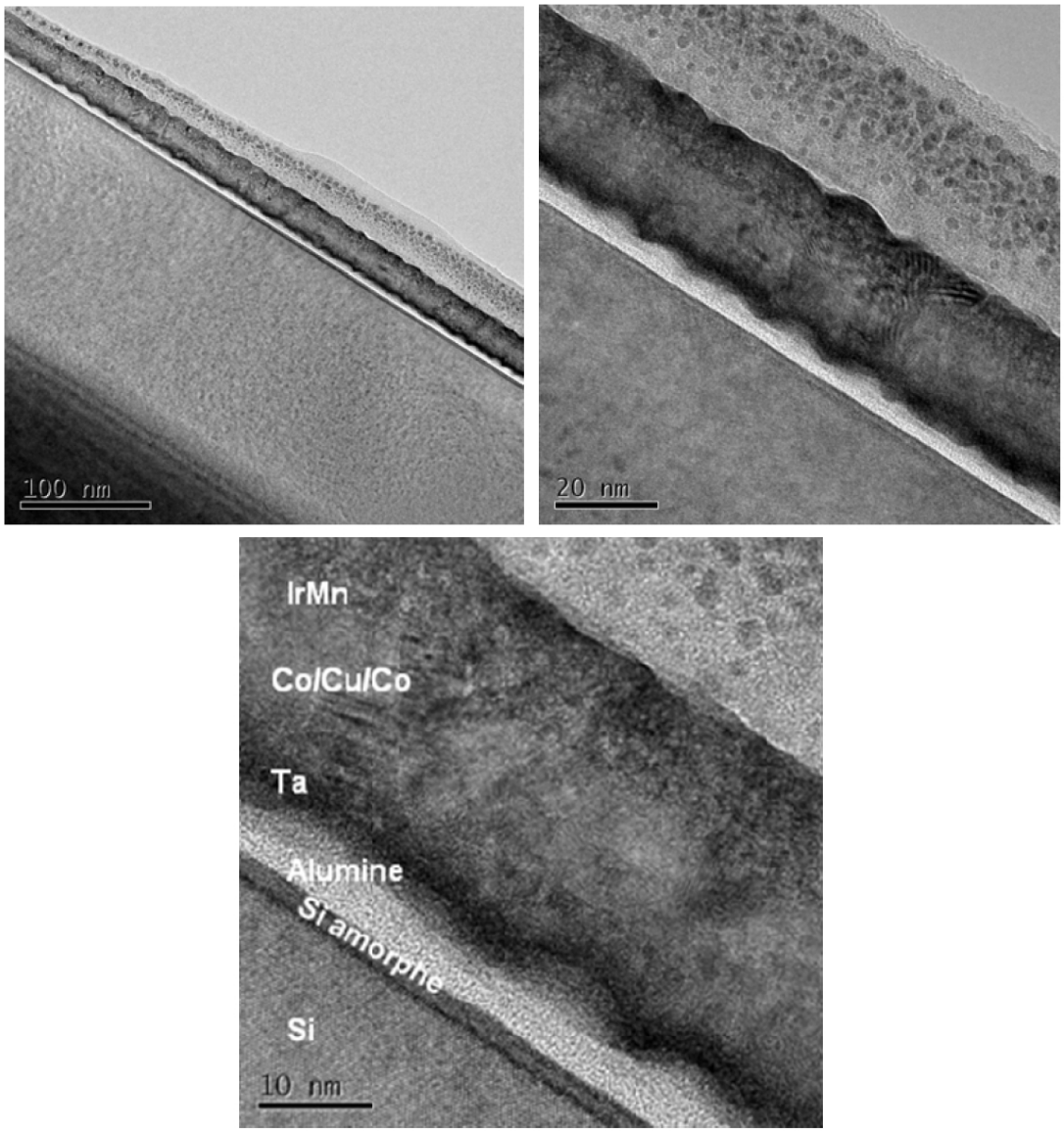


FIG. *5.9 – Clichés en microscopie électronique en transmission de l'échantillon sur Si/Si-a/SiO_2/Al_2O_3/Ta.*

Les images de microscopie MET (figure 5.9) montrent que la couche d'Al_2O_3 (couche de couleur blanche sur l'image) est continue mais présente une importante ruguosité. Il est difficile d'en estimer une valeur à cause de l'effet de moyenne dans l'épaisseur. Cependant, une valeur de 2 nm, en accord avec les mesures AFM, est tout à fait raisonnable. La présence de la couche de Ta au-dessus de celle d'Al_2O_3 permet cependant de réduire quelque peu la rugosité de la multocouche magnétique, ce qui permet un léger découplage magnétique (Figure 5.9) des couches magnétiques de la vanne de spin.

On constate aussi qu'entre la couche d'Al_2O_3 et le substrat de Si, se trouve une couche de Si amorphe de 2 nm d'épaisseur. Des mesures de EELS (*electron energy loss spectroscopy*) (figure 5.10) ont montrée qu'elle n'est pas oxydée. Ainsi, la couche apparaissant en blanc sur la coupe TEM, d'épaisseur 3.1 nm, est composée de 1.1 nm de SiO_2 et 2 nm d'Al_2O_3. Les autres mesures EELS confirment la position des différents éléments dans la multicouche sans interdiffusion notable.

Concernant la GMR, celle-ci est rarement observée lorsque le Ta est déposé sur Al_2O_3, même si certains échantillons présentent une variation relative de résistance de 3 % à température ambiante. Les mesures de magnétométrie montrent que cela n'est pas lié à un mauvais découplage entre les électrodes (figures 5.11 et 5.12). Ce point reste pour l'instant inexpliqué.

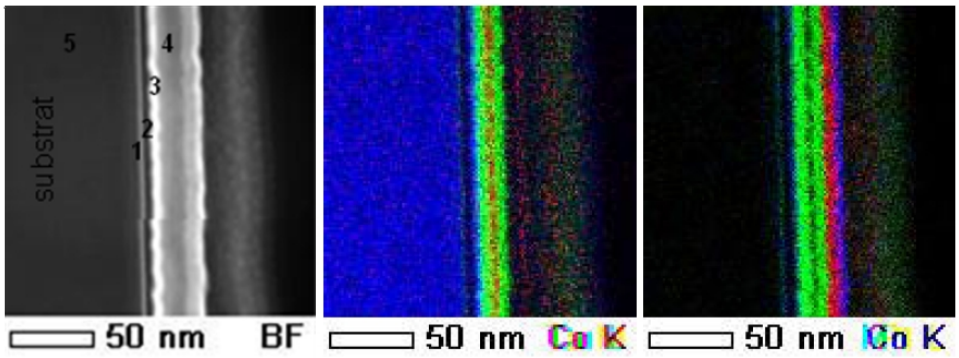


FIG. *5.10 – Analyse EELS de la multicouche. Á gauche, image physique obtenue par microscopie électronique. Au milieu, image chimique : le Co apparaît en vert et le Cu en rouge. Á droite, image chimique : le Co apparaît en vert, l'IrMn en rouge et le Pt en bleu.*

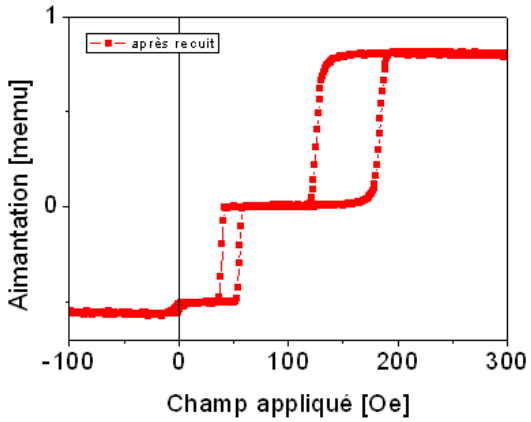


FIG. *5.11 – Cycle d'aimantation et mesure de GMR d'une structure Si(100) décapé 900s / SiO_2 / Al_2O_3 2nm / Ta 3nm / NiFe 5nm / Cu 3.5nm / Co 3nm / IrMn 7.5nm / Ru 3nm.*

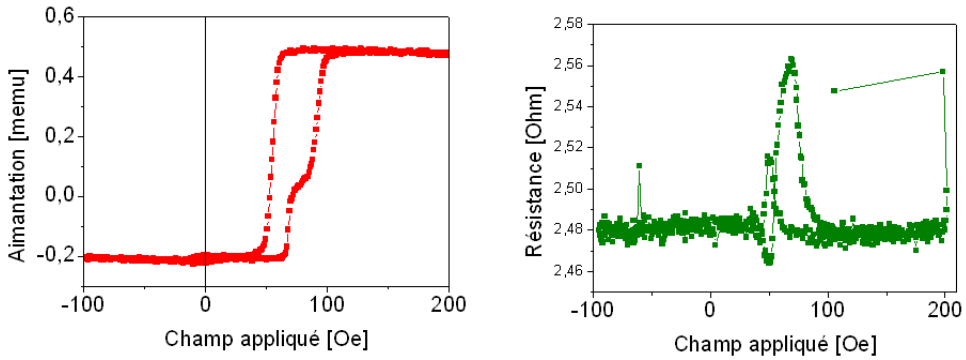


FIG. *5.12 – Cycle d'aimantation et mesure de GMR d'une structure Si(100) décapé 900s / Al_2O_3 2nm / Ta 3nm / NiFe 5nm / Cu 3.5nm / Co 3nm / IrMn 7.5nm / Ru 3nm.*

Insertion du Ta entre l'oxyde et le silicium

Dans cet échantillon, du Ta a été inséré entre le SiO_2 et l'alumine. La structure de l'échantillon est *Si(100)/ décapage 900s / SiO_2 / Ta 5nm / Al_2O_3 2nm / Co 4nm / Cu 3.5nm / Co 4nm / IrMn 7.5nm / Pt 3nm.*

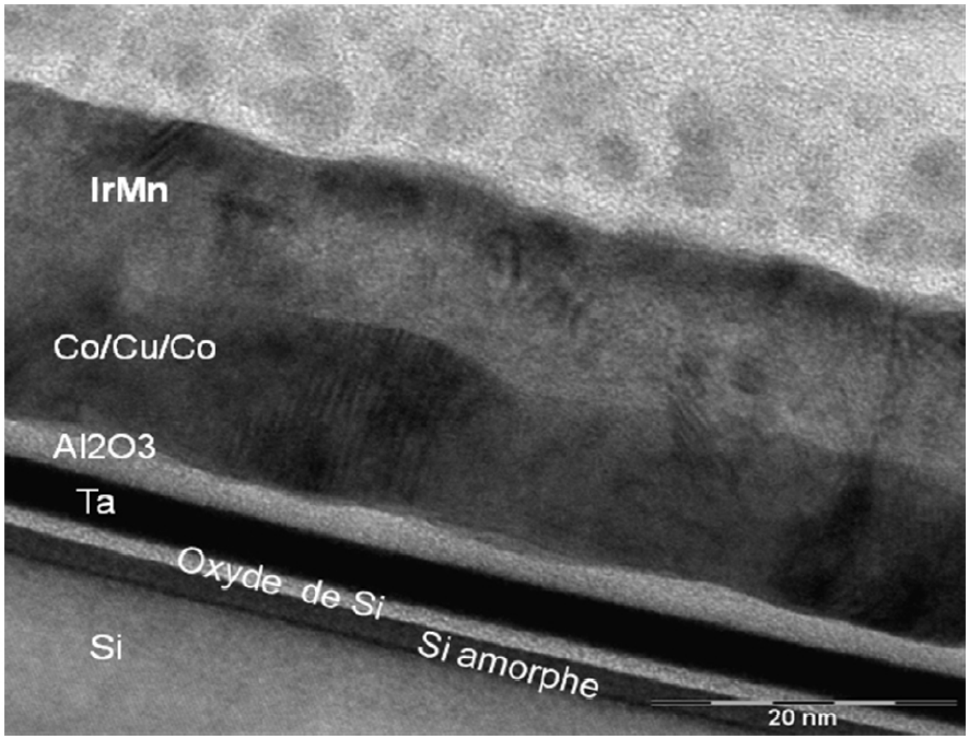


FIG. *5.13 – Cliché en microscopie électronique en transmission de l'échantillon sur Si/Si-a/SiO/Ta/Al_2O_3/.*

Les clichés de microscopie (figure 5.13) montrent que l'empilement *Si/Si-amorphe/SiO/Ta* est très plat, ce qui entraine la formation d'une couche d'oxyde d'aluminium (en blanc sur l'image) continue et très peu rugueuse, ce qui amène une faible rugosité de la multicouche magnétique et donc un découplage magnétique de la vanne de spin. On retrouve à nouveau la couche de Si amorphe (en noir) ; nous verrons d'ailleurs dans la section suivante qu'elle joue un rôle important pour la croissance de la couche de MgO.

Du fait de la faible rugosité, toutes les vannes de spin sont découplées (on présente quelques cycles d'hystéresis dans les figures 5.14 et 5.15), aussi bien pour les substrats de Si(100) que ceux de Si(111). Nous retrouvons également une magnétorésistance géante de 7.8 %, alors que la même structure sur substrat de verre présente une GMR de 3%.

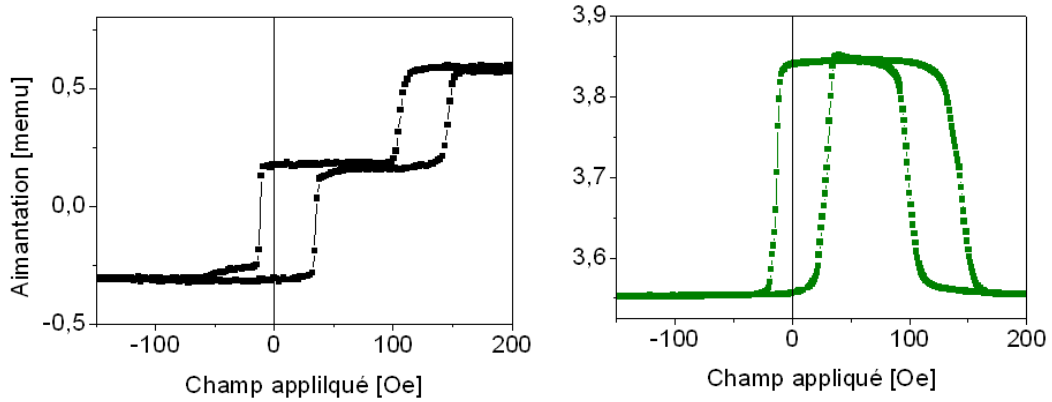


FIG. *5.14 – Cycle d'aimantation et mesure GMR d'une structure Si(100) décapé 900s puis oxydé / Ta 3nm / Al_2O_3 2nm / Co 4nm / Cu 3.5nm / Co 4nm / IrMn 7.5nm / Pt 3nm.*

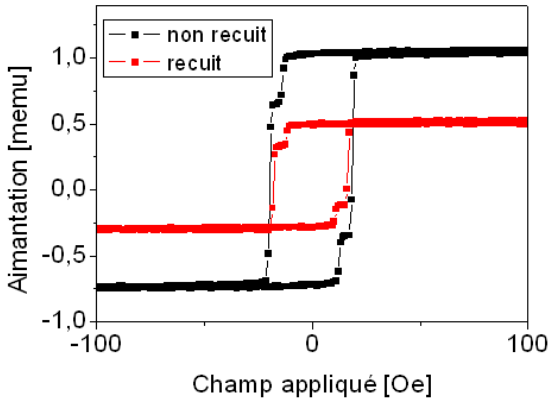


FIG. *5.15 – Cycle d'aimantation et mesure GMR d'une structure Si(100) décapé 900s puis oxydé / Ta 5nm / Al_2O_3 2nm / Co 5nm / Al_2O_3 2nm / NiFe 4nm / Ru 2nm, avant et après recuit à 200˚C.*

5.3.5 Propriétés électriques

Pour les structures possédant ses couches magnétiques découplées, des mesures des caractérisatiques courant/tension ont été effectuées afin de s'assurer que la jonction métal/(oxyde)/semi-conducteur réalisée répond bien au cahier des charges énoncé en début de chapitre. Au vu des résultats exposés précédemment, nous n'avons pas continué l'étude sur les structures *Si/ SiO_2 / Al_2O_3 / Ta*.

Les caractéristiques des diodes MOS ou MOMS sont des qualité suffisante pour réaliser des mesures de transport d'électrons chauds (figure 5.16). Cependant, aucun courant d'électrons chauds transmis n'a pas être mesuré. De plus, les caractéristiques I-V ne présentent pas de photocourant. Plusieurs raisons peuvent être avancées :

– L'ensemble des échantillons a été déposé sur des substrats de Si de type p. L'extension

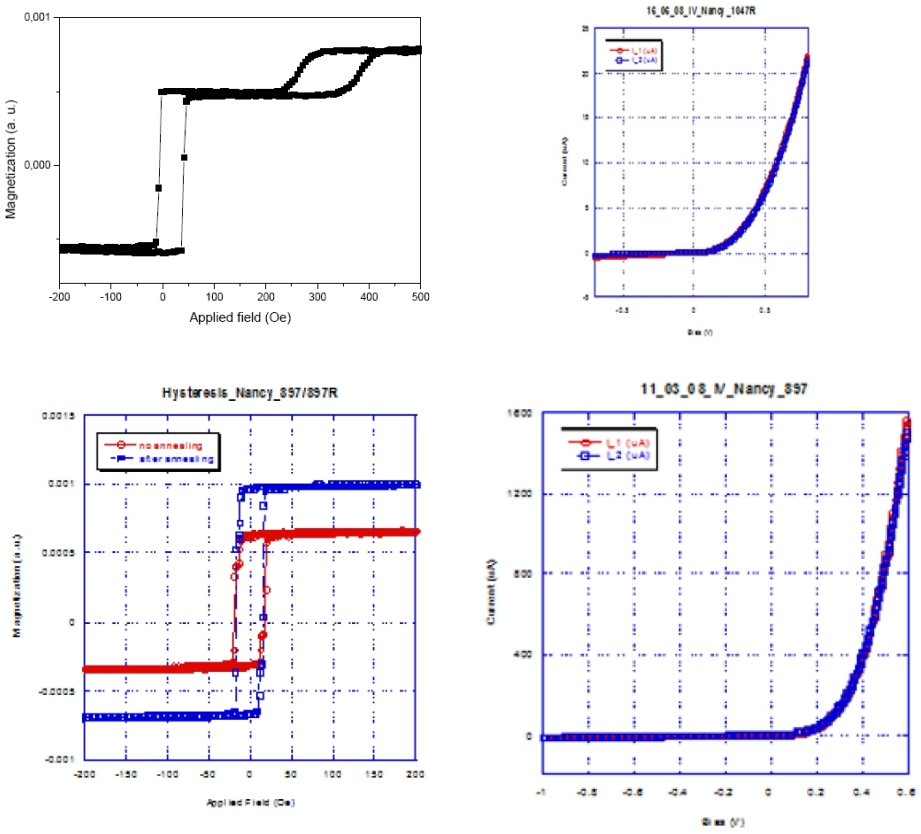


FIG. *5.16 – En haut, cycle d'aimantation et caractéristique I-V d'une structure Si(100) décapé 900s puis oxydé / Al_2O_3 2nm / Co (4nm) / Cu (3.5nm) / Co (4nm) / IrMn (7.5nm) / Pt (3nm). En bas, cycle d'aimantation avant et après recuit et caractéristique I-V d'une structure Si(111) décapé 900s / Ta 5nm / Al_2O_3 2nm / Co 5nm / Al_2O_3 2nm / Ox 65s / NiFe 4nm / Ru 2nm.*

de la barrière Schottky est grande, ce qui limite le transfert d'électrons chauds. De plus, les trous voient également une barrière de potentiel, ce qui limite le photocourant (voir le schéma figure 5.17). Une étude complémentaire, avec des substrats Si de type n, va être prochainement menée afin de tester cette hypothèse.

– Les électrons chauds doivent traverser une double barrière de potentiel : la barrière d'alumine de 2nm d'épaisseur, puis ensuite la barrière de SiO_2 (dont on rappelle qu'elle est nécessaire pour limiter la diffusion du Si dans la barrière d'alumine). Au total, les couches d'oxyde ont une épaisseur de 4 à 5 nm, ce qui est important. Il sera intéressant de poursuivre cette étude en supprimant la couche de SiO_2, tout en limitant la diffusion du Si dans l'alumine par l'interposition d'une barrière de diffusion de Ta.

5.3.6 Bilan

Les structures utilisant une couche d'oxyde d'aluminium ont posé de multiples problèmes de qualité structurelle, ce qui a compliqué l'obtention des propriétés magnétiques désirées et qui a nécessité de longs travaux d'optimisation de la multicouche. D'un point de vue électrique, les

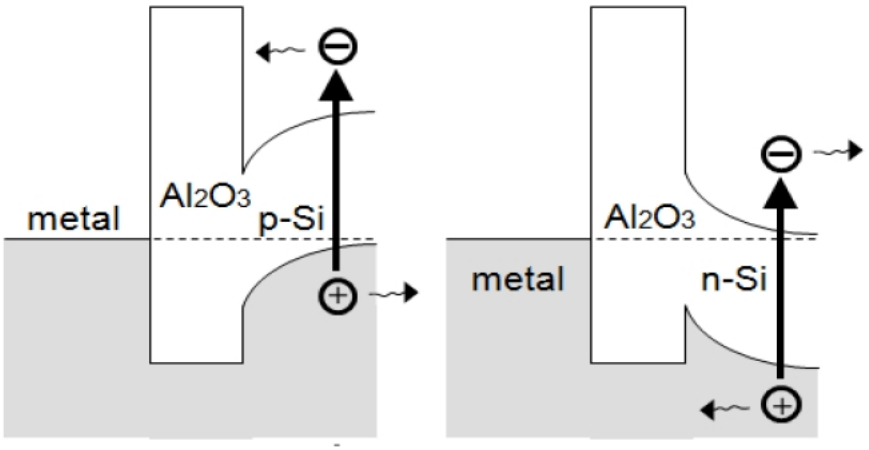


FIG. *5.17 – Diagrammes de bandes dans une structure MOS-p et MOS-n.*

diodes MOS ou MOMS sont de bonne qualité, peut être même trop, puisqu'elles filtrent tous les électrons chauds. Des mesures complémentaires sont à réaliser, afin de remédier à ce problème.

Ce travail va se poursuivre car *in fine* il nous permettra de disposer de structures MOS avec des isolants de gaps différents : l'oxyde d'aluminium possède une hauteur de barrière de 1 à 3 eV, valeur inférieure à celle de l'oxyde de magnésium (4 eV).

5.4 Jonctions MOS à barrière de MgO

5.4.1 Caractéristiques et élaboration des échantillons

Comme cela a été rappelé au début du rapport, une alternative à la barrière alumine est la barrière MgO. Cette dernière est étudiée au laboratoire depuis plus de 5 ans, aussi bien par épitaxie par jets moléculaires que par pulvérisation cathodique. De plus, en pulvérisation cathodique, elle présente une meilleure qualité cristallographique que la barrière alumine, et possède une tension de claquage plus importante. Utilisée dans des jonctions tunnel magnétiques, elle permet d'obtenir une TMR bien plus élevée que les jonctions à varrière d'oxyde d'aluminium (à ce sujet, on se rapportera au chapitre 3). Dans le cas présent, son utilisation est intéressante car elle possède intrinsèquement une hauteur de barrière plus grande (de 4 eV dans les jonctions tunnel épitaxiées) que celle d'alumine.

La couche de MgO est directement déposée par pulvérisation cathodique, à partir d'une cible de MgO, dans un plasma d'argon pur. Il n'est donc plus nécessaire de réaliser une oxydation d'une couche métallique pré-déposée, comme on le faisait pour l'alumine. Cela élimine le risque d'interdiffusion à l'interface métal/semi-conducteur. Aussi, on pourra se dispenser d'oxyder le silicium après décapage.

Les structures étudiées ont essentiellement été réalisées sur le substrat Si(100). Il était initialement prévu une épitaxie du MgO(100). Mais, ce dernier cristallise dans une structure de type NaCl (maille cubique), avec un paramètre de maille $a = 0.421$ nm. Le désaccord de maille

important (22,5 %) rend quelque peu délicate la croissance épitaxiale du MgO(100) sur du Si(100).

Pour y remédier, un certain nombre de stratégies pu être mises en place. On citera par exemple le dépôt épitaxial de MgO (100) directement sur Si(100) avec des interfaces diffuses, ou avec la stabilisation d'un composé interfacial d'oxyde de silicium [130] [131] [132]. Pour ce qui est du dépôt par pulvérisation, Kohn et coauteurs [133] ont montré que jusqu'à 3 nm d'épaisseur, le MgO préfère une orientation (100) lorsqu'il est déposé sur une fine couche (épaisseur < 2 nm) de Si oxydé thermiquement. En revanche, lorsque le MgO est déposé directement sur du Si(100), la couche est amorphe sur presque 2 nm d'épaisseur à partir de l'interface avec le Si.

Nous avons donc testé ces deux cas de figures, avec ou sans couche tampon de SiO_2, afin de voir lequel permettra d'obtenir des échantillons de meilleure qualité. Les dépôts sont finalement effectués par pulvérisation cathodique.

Tout comme pour les structures MOS réalisées à partir d'Al_2O_3, une première étape, dite d'*etching*, consiste à décaper la surface du substrat avec d'un plasma RF d'argon, pour éliminer les divers contaminants (eau, oxyde natif...) qui auraient pu s'y adsorber avant l'insertion dans le bâti. Cette étape est identique à celle utilisée dans le cas de la barrière Al_2O_3 ; en particulier, on conserve la durée de décapage de 900 secondes. Son augmentation au delà de cette valeur n'a montré aucune incidence sur les propriétés de l'empilement.

Comme indiqué précédemment, nous pouvons ici soit déposer le MgO (suivi du reste de la multicouche) sur le substrat décapé, soit oxyder le silicium avant le dépôt du MgO. Dans ce cas, la surface du semi-conducteur est soumise à un plasma d'Ar+O_2 (suivant les mêmes paramètres que ceux présentés dans la section 5.1) de sorte à obtenir une couche de SiO_2 de 2 à 3 nm d'épaisseur. Dans la foulée, le MgO est ensuite déposé sur le SiO_2, suivi du dépôt de la multicouche.

Suite à cette préparation du substrat, le MgO est déposé à partir d'une cible céramique dans un plasma RF d'Ar pur avec une puissance de 25 W et une pression d'argon de 10^{-2} mbar. La couche a une épaisseur comprise entre 2 et 3nm, comme nous avons pu le faire pour les jonctions tunnel magnétiques.

Les figures 5.18 et 5.19 présentent des images de microscopie électronique en transmission (MET) à haute résolution, sur des coupes transverses d'échantillons, avec et sans oxydation du Si, et après un recuit à 300°C.

Dans le cas où le silicium est oxydé par plasma (figure 5.18), les images de microscopie montrent successivement, à partir du substrat de Si, la présence des couches suivantes : une couche de Si amorphe non-oxydé (bande noire) de moins de 2 nm d'épaisseur, puis une couche de SiO_2 (couleur blanche) d'environ 2,3 nm d'épaisseur, surmontée d'une couche de MgO de 2 nm d'épaisseur. L'identification de la couche de silicium amorphe non oxydé se base sur les résultats des analyses EELS, effectuées dans la section précédente, sur les échantillons à barrière d'alumine, où cette couche était également présente.

En changeant de zone d'observation, on voit que le MgO est très mal cristallisé, voire presque amorphe. Ces observations vont à l'opposé des conclusions de l'étude de Kohn *et al.* [133]. L'origine de cette disparité peut s'expliquer par une différence de qualité du SiO_2 entre les deux études, ce qui rend difficile la transposition de leurs conclusions à notre cas.

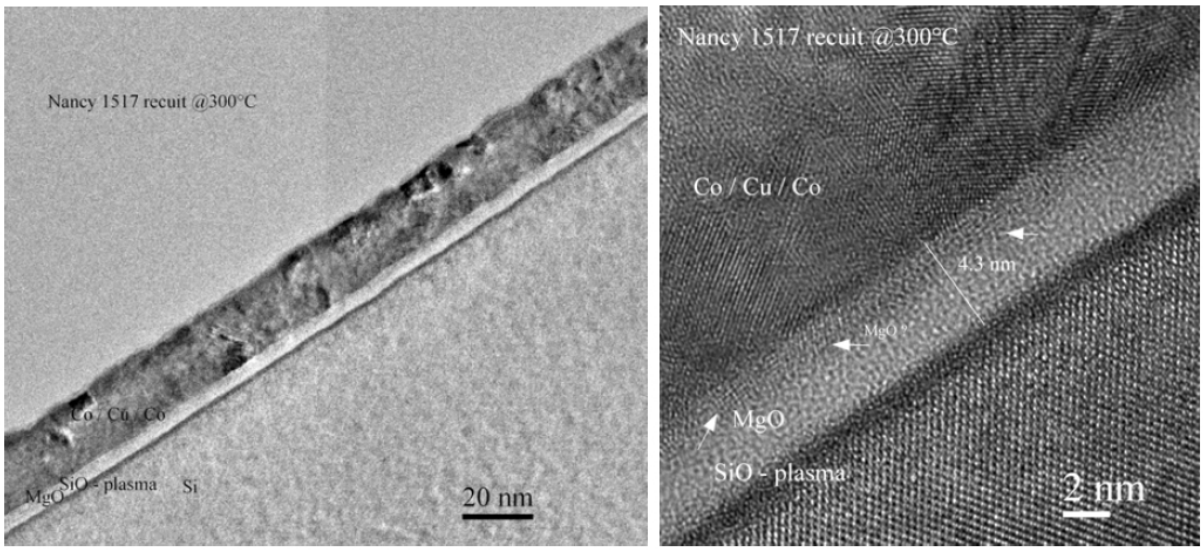


FIG. *5.18 – Cliché de microscopie électronique en transmission d'une coupe d'un échantillon de structure Si / Si-a / SiO_2 / MgO / Co / Cu / Co.*

Dans le cas du dépôt direct du MgO après le décapage du Si, les choses sont tout à fait différentes (voir la figure 5.19 et un agrandissement figure 5.20). En partant du substrat de Si(100), les clichés montrent un empilement qui se compose comme suit : une couche de couleur noire, identifiée comme étant du Si amorphe non-oxydé (noté Si-a sur les clichés), suivi d'une fine couche blanche d'épaisseur estimée à 2,1 nm. Cette dernière correspond à la couche de MgO (2 nm d'épaisseur nominale). On voit également que le MgO est très bien texturé, avec une texture oriéntée (100). Les conclusions vont ici dans le sens de l'étude de Kohn précédemment mentionnée ; bien qu'il n'y ait ici pas de SiO_2, la couche de silicium amorphe non oxydé sert de couche tampon, permettant la cristallisation du MgO(100).

Ce type de dépôt permet donc d'obtenir des rugosités de surface très faibles, mais aussi, et surtout, une couche de MgO de très bonne qualité cristallographique. C'est celui-ci que l'on utilisera par la suite. Les résultats étant satisfaisants pour les besoins de l'étude sur la précession, nous n'avons pas mené plus loin cette partie de l'étude.

Cela confirme en tout cas l'importance d'une couche amorphe pour obtenir du MgO(100) avec nos conditions de dépôt. On se rappellera que c'est la base même de la réalisation des jonctions tunnel CoFeB / MgO / CoFeB, comme on l'a expliqué dans le chapitre 3. Le fait de déposer le MgO sur les électrodes amorphes de CoFeB permet à celui-ci d'acquérir sa texture (100). Les recuits en température effectués après le dépôts conduisent ensuite, à continuer sa cristallisation, ainsi que celle du matériau utilisé pour les électrodes. Ici, on retrouve bien la planarité et la texture du MgO déposé sur une couche amorphe, mais nous n'avons pas observé de fortes modifications de la structure cristallographique entre le recuit à 200˚C et 300˚C (figure 5.19) ; nous suspectons que ceci est lié à la non recristallisation du Si amorphe sous jacent.

En conclusion, nous sommes parvenus à élaborer un empilement oxyde / semi-conducteur,

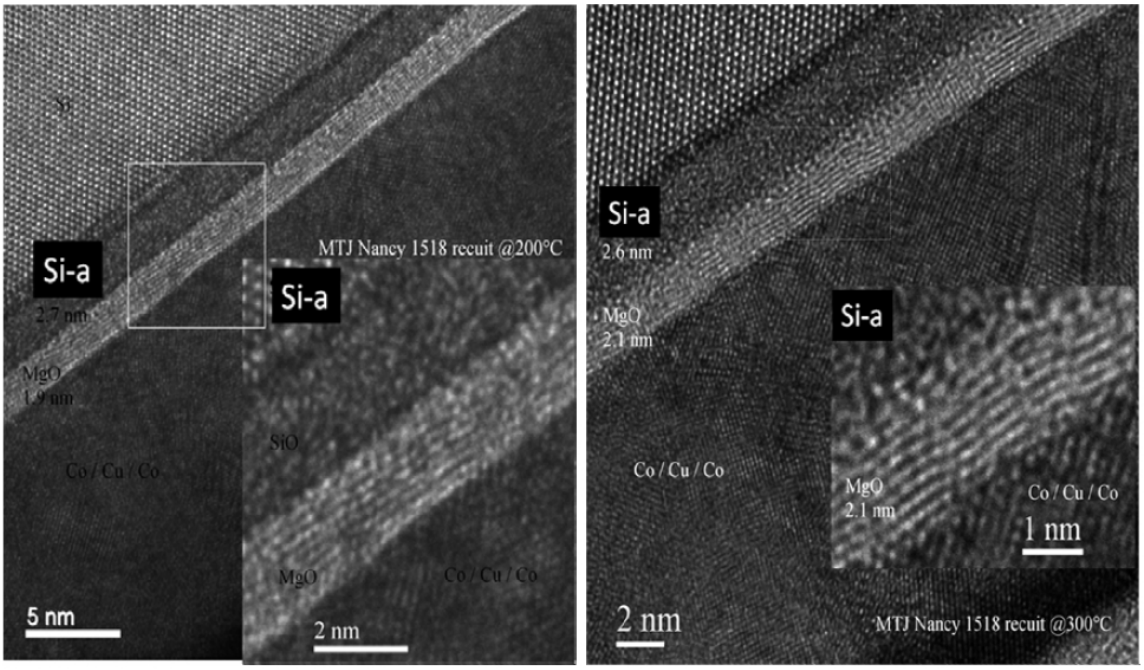


FIG. *5.19 – Cliché de microscopie électronique en transmission d'une coupe d'un échantillon de structure Si/Si-a/MgO/Co/Cu/Co à gauche après recuit à 200°C et à droite après recuit à 300°C.*

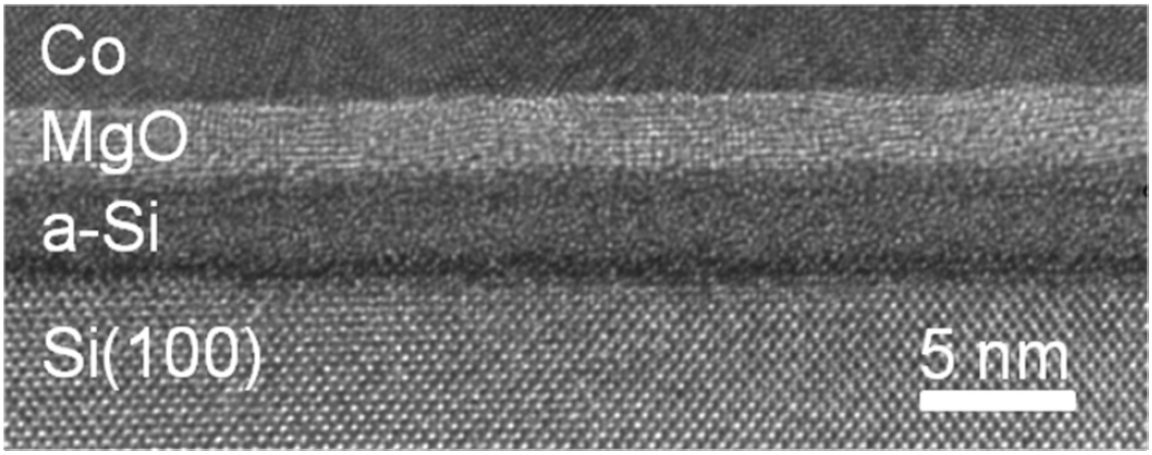


FIG. *5.20 – Zoom sur la zone d'intérêt de la multicouche Si/Si-a/MgO/Co/Cu/Co.*

qui satisfait aux critères demandés : une barrière d'oxyde cette fois-ci fine (d'épaisseur nominale qui peut être variée, de manière contrôlée, entre 1 et 3 nm) et une très faible rugosité. Cette jonction Si(100)/MgO va donc pouvoir servir de base de travail pour la suite de l'étude, qui consiste à y déposer toutes sortes d'empilements de couches minces ferromagnétiques et métalliques.

Cette stucture peut également trouver un intérêt en dehors du présent projet. En effet, des travaux complémentaires menés dans l'équipe (et non présentés ici) ont permis d'épitaxier du Fe(100) sur un empilement Si(100)/Si-a/MgO ainsi préparé par pulvérisation. L'intérêt est de pouvoir réaliser des jonctions tunnel magnétiques épitaxiées en se passant des substrats de MgO, extrêmement coûteux, habituellement utilisés pour de tels travaux. Ces travaux sont appelés à se poursuivre dans la thèse d'Amandine Duluard.

5.4.2 Propriétés magnétiques

Couches uniques

Les premiers types d'échantillons testés sur MgO sont de type filtre à spin : ils sont constitués d'une simple couche magnétique, ici du cobalt de 5 nm d'épaisseur, déposée sur la jonction. L'échantillon est nécessaire pour les premières mesures de transmission, afin de s'assurer que le courant d'électrons chauds traverse bien la barrière.

Les figures 5.21 et 5.22 présentent les cycles d'aimantation de la couche de Co seule, sur Si/SiO/MgO et Si/MgO pour différentes épaisseurs de MgO.

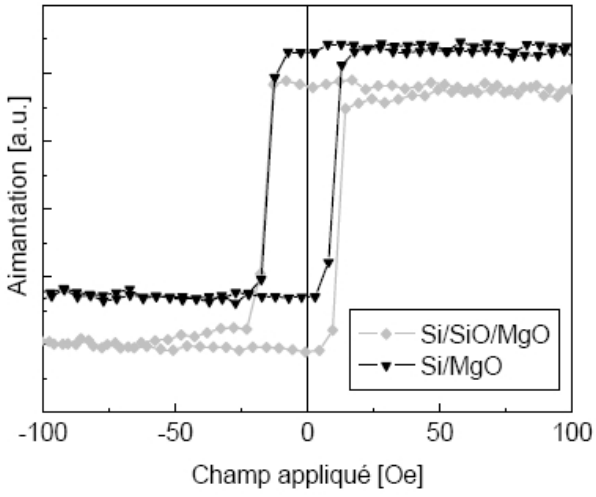


FIG. *5.21 – Cycles d'hystérésis pour une couche de Co de 5nm d'épaisseur sur Si/SiO/MgO 2nm et Si/MgO 2nm.*

On constate bien, dans tous les cas, que la valeur du champ coercitif est la même (environ 20 Oe) et que la rémanence est toujours unitaire. Ce type d'échantillon est donc, du point de

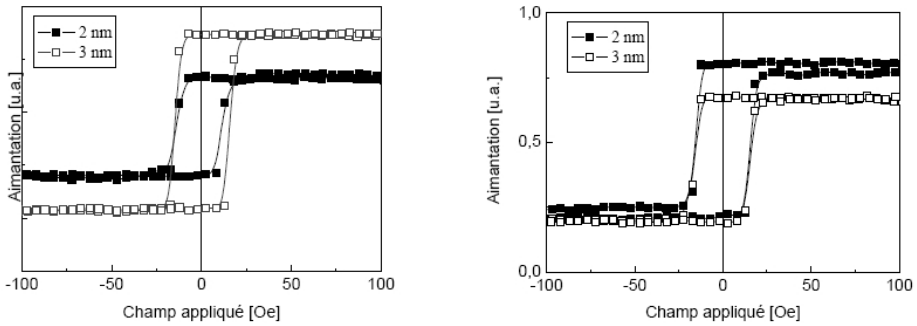


FIG. *5.22 – Cycle d'hystérésis en fonction de l'épaisseur de MgO pour des échantillons avec une couche d'oxyde (à gauche) et sans oxyde (à droite).*

vue magnétique, tout à fait adapté à la mesure de la transmission d'électrons chauds.

Multicouches magnétiques à aimantations planaires

Une fois acquise la structure de base, nous avons déposé une vanne de spin, à anisotropies planaires et colinéaires. Nous avons directement retenu la multicouche magnétique qui avait donné les propriétés les plus satisfaisantes, à savoir celle *Co/Cu/Co/IrMn*, où la couche dure est durcie par décalage d'échange grâce à la couche de IrMn.

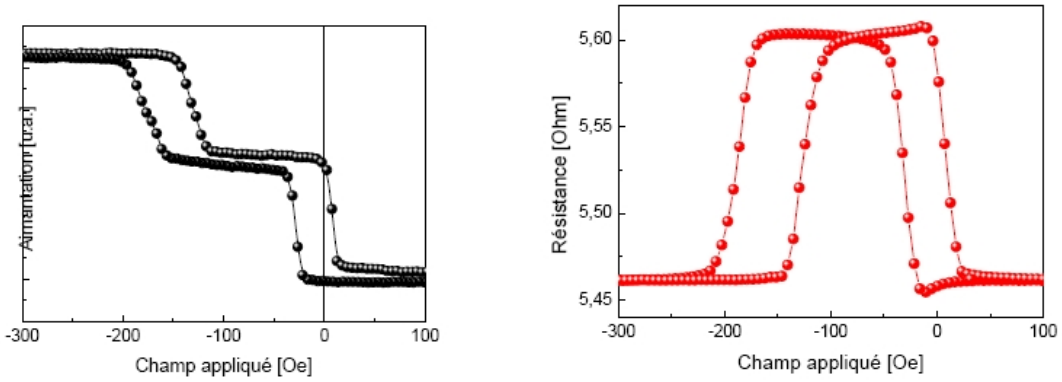


FIG. *5.23 – Cycle d'hystéresis mesuré par VSM, et cycle de GMR, sur l'échantillon Si(100)-n décapé / MgO 3nm / Co 5nm / Cu 3,5nm / Co 5nm / IrMn 7,5nm / Pt.*

La figure 5.23 présente le cycle d'hystérésis et la mesure de GMR de l'échantillon de composition *Si(100)-n décapé / MgO 3nm / Co 5nm / Cu 3,5nm / Co 5nm / IrMn 7,5nm / Pt*. Le cycle d'aimantation est mesuré par VSM (vibrating sample magnometer). La magnétorésistance géante (GMR) est mesurée sous pointes, en configuration deux-points, à une tension de +10 mV. Pour cet empilement, la GMR vaut 2,7 %.

La figure 5.24 présente le cycle d'hystérésis et la mesure de GMR de l'échantillon de composition *Si(100)-n oxydé / MgO 3nm / Co 4nm / Cu 3.5nm / Co 4nm / IrMn 7.5 / Pt*. On remarquera

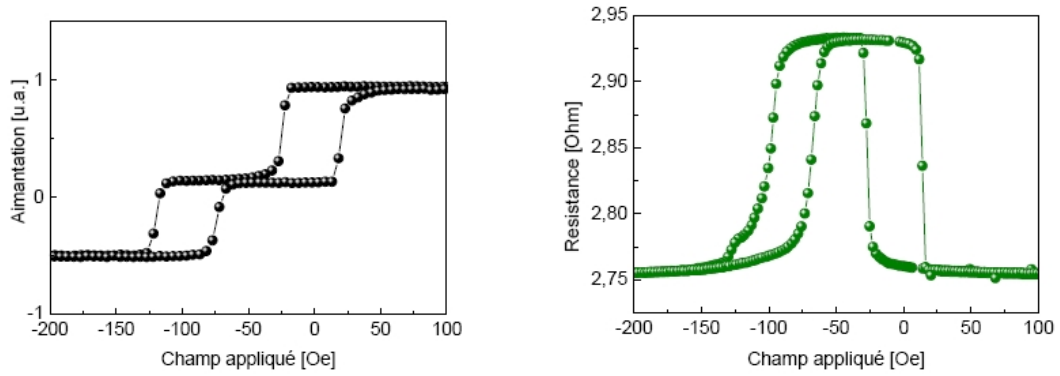


FIG. *5.24 – Cycle d'hystéresis mesuré par VSM, et cycle de GMR, sur l'échantillon Si(100)-n oxydé / MgO 3nm / Co 4nm / Cu 3.5nm / Co 4nm / IrMn 7.5 / Pt.*

que la GMR présente une valeur élevée, atteignant 6 %.

Multicouches magnétiques à aimantations croisées

Nous avons enfin travaillé sur la structure à aimantations croisées. Celle-ci est composée d'une couche de cobalt, d'anisotropie planaire, et d'une multicouche à anisotropie perpendiculaire au plan de la couche. Cette dernière est constituée d'un empilement de bicouches de cobalt/platine (Co/Pt), empilement répété n fois. Les propriétés magnétiques d'anisotropie non-planaire de ce type de structure sont bien connues [105]. Contrairement aux travaux du chapitre 4, nous n'aurons pas ici à nous préoccuper des problèmes de texturage du MgO, ce qui nous autorise à utiliser cet empilement.

La couche à aimantation perpendiculaire sera mise en contact avec la structure MOS. Ainsi, elle assurera la mesure de la précession des électrons obtenue dans la couche ferromagnétique planaire, après injection à partir d'un faisceau externe. On retrouve l'architecture proposée dans l'introduction. Avec cette architecture, nous pourrons utiliser n'importe quelle couche ferromagnétique à aimantation planaire. On pourra ainsi étudier la précession pour différents matériaux et différentes épaisseurs, ce qui permettra de voir l'influence de la valeur des champs moléculaires, des longueurs de thermalisation…

Il est toutefois difficile de déposer une telle couche directement sur une surface isolante qui, on le rappelle, favorise la formation de clusters métalliques plutôt que d'une couche continue. Ici, les multicouches ont été déposées par pulvérisation cathodique, sur un substrat Si(100) dopé n et décapé, puis recouvert d'une couche de MgO de 2nm d'épaisseur. Les mesures d'aimantation sont réalisées soit par magnétométrie VSM, soit par mesure électrique d'effet Hall extraordinaire (EHE) [134]. Le tableau 5.1 récapitule les structures étudiées.

La figure 5.25 présente les cycles d'aimantation hors du plan. On constate que, pour une épaisseur de Co :

– supérieure à 0,4 nm, l'aimantation passe dans le plan de la couche (échantillons 1879 et

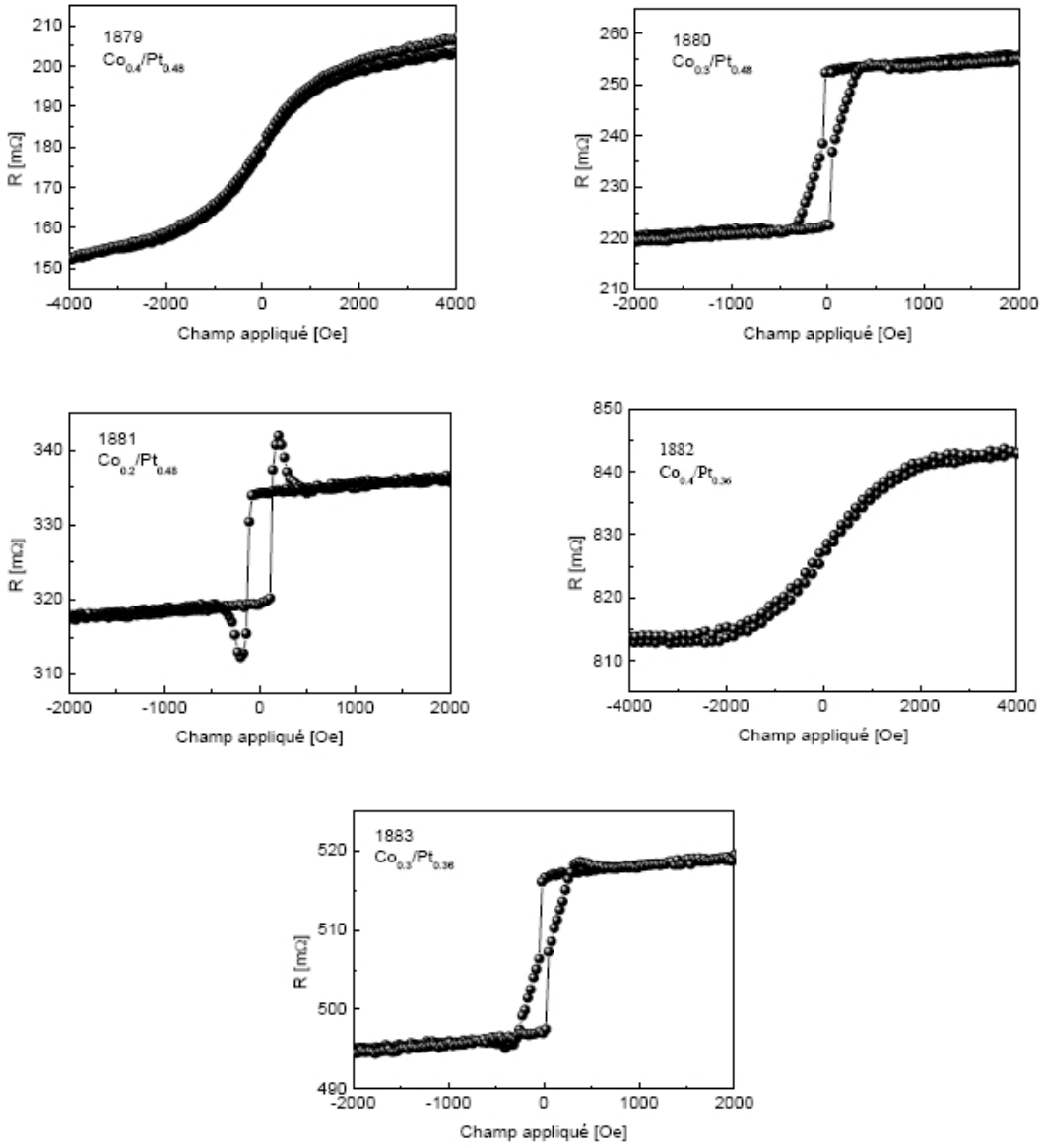


FIG. *5.25 – Cycles d'aimantation (mesurés par EHE) des échantillons Co/Pt avec le champ appliqué perpendiculairement au plan des couches.*

Échantillon	Structure
1879	Si(100)/MgO2/Pt5/(Co0.4|Pt0.48)x5/Co0.4/Cu/Pt
1880	Si(100)/MgO2/Pt5/(Co0.3|Pt0.48)x5/Co0.3/Cu/Pt
1881	Si(100)/MgO2/Pt5/(Co0.2|Pt0.48)x5/Co0.2/Cu/Pt
1882	Si(100)/MgO2/Pt5/(Co0.3|Pt0.36)x5/Co0.3/Cu/Pt
1883	Si(100)/MgO2/Pt5/(Co0.3|Pt0.36)x5/Co0.3/Cu/Pt
1889	Si(100)/MgO2/Pt5/(Co0.2|Pt0.48)x5/Co0.3/Cu/Pt
1890	Si(100)/MgO2/Pt3/(Co0.2|Pt0.48)x5/Co0.3/Cu/Pt
1891	Si(100)/MgO2/Pt2/(Co0.2|Pt0.48)x5/Co0.3/Cu/Pt
1892	Si(100)/MgO2/(Co0.2|Pt0.48)x5/Co0.3/Cu/Pt
1893	Si(100)/MgO2/Pt2/(Co0.2|Pt0.48)x5/Co0.2/Cu/Co5/Pt
1895	Si(100)/MgO2/Pt2/(Co0.2|Pt0.48)x5/Co0.2/Cu/Co5/Pt

TAB. *5.1 – Tableau récapitulatif de la composition des multicouches étudiées.*

1882)

- égale à 0,3 nm, en champ négatif, une structure en domaines se développe (ces structures ont été visualisées par microscopie Kerr ; la taille des domaines est supérieure au micromètre).
- égale à 0,2 nm, le renversement de l'aimantation est brutal et la rémanence en champ nul est égale à 1. Ces propriétés sont conservées même après un recuit à 300°C.

Les pics qui sont visibles dans les mesures d'EHE proviennent d'un mauvais alignement accidentel des 4 pointes utilisées pour la mesure d'EHE. Ils disparaissent lorsque les contacts sont pris proprement, par exemple après définition par lithographie. Dans tous les cas, ils ne remettent pas en cause l'interprétation des données. Pour notre étude, les meilleures propriétés sont obtenues lorsque la couche de Co possède une épaisseur n'excédant pas 0,2 nm. C'est cette épaisseur que nous conservons par la suite.

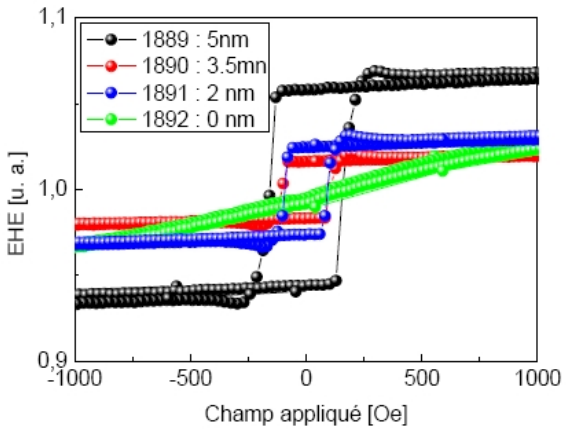


FIG. *5.26 – Cycles d'EHE mesurés avec le champ magnétique appliqué hors du plan pour les échantillons 1889 à 1892.*

Dans un second temps, nous avons varié l'épaisseur de la couche tampon de Pt, qui aide à l'obtention de l'aimantation perpendiculaire. Encore une fois, le but est l'étude du transport des électrons chauds. Il est donc nécessaire de diminuer au maximum l'épaisseur des couches. En variant l'épaisseur de la couche de Pt de 0 nm à 5 nm (échantillon 1889 à 1892, figure 5.26), il apparaît qu'on ne peut pas se passer de la couche de Pt inférieure. Une épaisseur minimale de 2 nm est nécessaire.

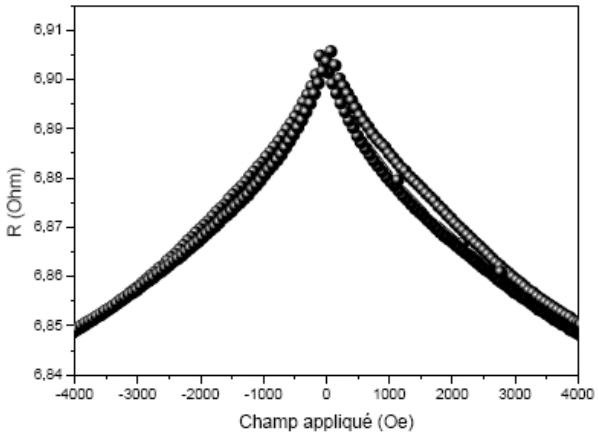


FIG. *5.27 – Mesure de GMR, avec application du champ magnétique dans le plan de la multicouche Si(100)-n décapé / MgO 3nm / Pt 2nm / (Co 0.2nm/Pt 0.48nm)x5 /Cu 3,5nm / Co 5nm / Pt.*

La figure 5.27 présente la mesure de GMR faite sur une vanne de spin à aimantations croisées de composition *Si(100) décapé / MgO 3nm / Pt 2nm / (Co 0.2nm/Pt 0.48nm)x5 /Cu 3,5nm / Co 5nm / Pt*. Elle présente bien les caractéristiques d'une vanne de spin à aimantations croisées.

5.4.3 Propriétés électriques

La multicouche magnétique étant découplée, nous avons effectué des mesures des caractéristiques courant/tension afin de s'assurer que la jonction métal/oxyde/semi-conducteur réalisée répond bien au cahier des charges énoncé en début de chapitre.

Les caractéristiques de ces diodes MOS montrent (figure 5.28) une qualité suffisantes pour réaliser des mesures de transmission d'électrons chauds. De plus, la présence de photocourant a pu être observée sur les caractéristiques courant/tension dans le cas d'échantillons réalisées sur substrat dopé n.

L'ajustement des caractéristiques courant/tension dans le régime bloqué à l'aide de la formule

$$J = A^* T^2 \exp \frac{-\phi_B}{k_B T} \exp \frac{qV}{nk_B T} \left[1 - \exp \frac{-qV}{k_B T}\right]$$

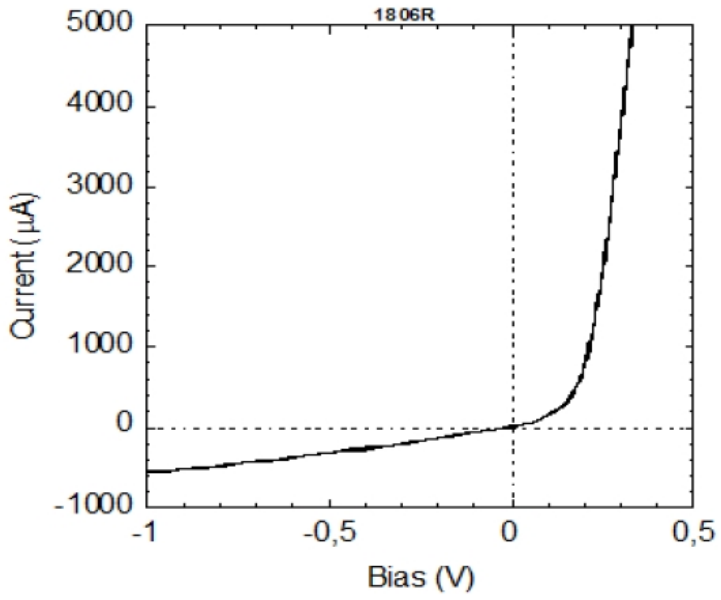


FIG. *5.28 – Caractéristique courant/tension de la multicouche Si(100)-n décapée / MgO 2nm / Co 5nm / Pt 2nm (échantillon 1806).*

où $A^* = 4\pi q k_B^2 m^*/h^3$, nous permet de déterminer un coefficient d'idéalité n = 1.03. La résistance dynamique de la jonction est de l'ordre du MΩ. Ceci montre que la barrière MOS est de bonne qualité pour la suite des études du transport d'électrons chauds.

5.5 Transmission d'électrons chauds

5.5.1 Dispositif expérimental

Les mesures de transport d'électrons chauds à l'aide d'une source d'électrons externes ont été réalisées par l'équipe Electrons Photons Surfaces du laboratoire PMC de l'école Polytechnique.

L'échantillon est monté dans une enceinte maintenue sous ultravide, à une pression inférieure à 10^{-11} torr. Un courant d'électrons chauds (I_0) est photoémis par une photocathode d'arséniure de gallium (GaAs) ; la polarisation en spin de ces électrons est assurée en polarisant circulairement la lumière du laser envoyée sur le GaAs. Leur énergie E_0, définie par rapport au niveau de Fermi de la couche métallique, est contrôlable en modifiant le potentiel de l'échantillon. Au cours de cette étude, les mesures ont été effectuées sur une plage d'énergies allant de 1 eV à 3 keV.

Le faisceau est ensuite injecté depuis le vide vers la couche métallique de l'échantillon étudié. Un ensemble d'optiques électroniques permet de guider et de focaliser le faisceau sur l'échantillon. Pour déterminer la transmission, on mesure l'intensité du courant collecté sur

la face arrière de la structure (I_C) et celle du courant collecté sur l'électrode métallique de l'échantillon (I_B). La transmission étant généralement très faible (rapport de l'ordre de 10^{-4} à 10^{-6}), une chaîne de mesure électrique à bas bruit permet de mesurer des courants de l'ordre du pico-ampère. Un électroaimant permet, si nécessaire, d'appliquer des impulsions de champ magnétique de l'ordre de 160 Oe, ce qui permet de retourner l'aimantation des couches magnétiques des échantillons. Dans le cas des échantillons magnétiques, la dépendance en spin de la transmission peut être mise en évidence de deux façons : soit en renversant l'aimantation de la couche ferromagnétique douce de l'échantillon, soit en inversant la polarisation du faisceau incident.

5.5.2 Mesures sur un filtre à spin

Des mesures de transmission ont été effectuées sur un filtre à spin, l'échantillon 1806R, de structure *Si(100)) / MgO 2nm / Co 5nm / Pt 2nm*. L'effet de filtre à spin est la transmission dépendante en spin d'un courant d'électrons chauds au travers d'une couche mince ferromagnétique. Ses propriétés (dépendance en énergie / polarisation) vont dans le sens des études précédentes sur de tels systèmes ce qui montre l'intérêt de nos dépôts et les perspectives à venir de notre étude.

On présente ici rapidement les travaux passés et le modèle mis en place dans [135] pour décrire la transmission dans un filtre à spin de structure similaire. On présente ensuite les résultats récents sur notre échantillon, et leur interprétation. Pour une description plus détaillée du dispositif expérimental, et des expériences passées, on invite le lecteur à consulter [126].

La transmission (notée T) est habituellement définie comme le rapport entre le courant d'électrons chauds collecté I_C et le courant émis I_E : $I_C/I_E = I_C/(I_B+I_C)$. Lorsque le faisceau d'électrons incidents est polarisé en spin (comme c'est le cas ici), on distingue les courants d'électrons chauds pour une polarisation des électrons incidents, I_{C+}, et pour la polarisation inverse des électrons incidents, I_{C-}. On introduit donc la différence de transmission (notée ΔT) lorsque la polarisation du faisceau est modifiée, et qui traduit la dépendance en spin de la transmission. Elle est définie comme : $\Delta T = \Delta I_C/I_E = (I_{C+} - I_{C-}) / I_E$. Un autre facteur important est l'asymétrie de transmission, définie comme suit : $A = (I_{C+} - I_{C-})/(I_{C+} + I_{C-}) = \Delta T / 2T$.

Résultats passés et modèle

L'étude de Rougemaille a porté sur le filtre à spin *GaAs (oxydé par passivation UVOCS) / Fe / (couche de protection)*. Les auteurs ont mis en évidence trois régimes de transmission en fonction de l'énergie (voir figure 5.29). A basse énergie d'injection (environ 10-100 eV), la transmission augmente proportionnellement à l'énergie, comme le prévoit la théorie. Pour des énergies d'injection moyennes (100-500 eV), T et ΔT augmentent en suivant une loi de puissance avec l'énergie d'injection. A plus haute énergie (au-dessus de quelques centaines d'eV), on observe une augmentation brutale de la transmission. Elle est le résultat d'une part de l'excitation en cascade des électrons secondaires du niveau de fermi de la couche métallique, et d'autre part d'une augmentation de l'énergie moyenne des électrons atteignant la barrière de la

jonction. Rougemaille et coauteurs ont élaboré un modèle prenant en compte ces phénomènes, et qui parvient à expliquer quantitativement l'évolution de la transmission [135].

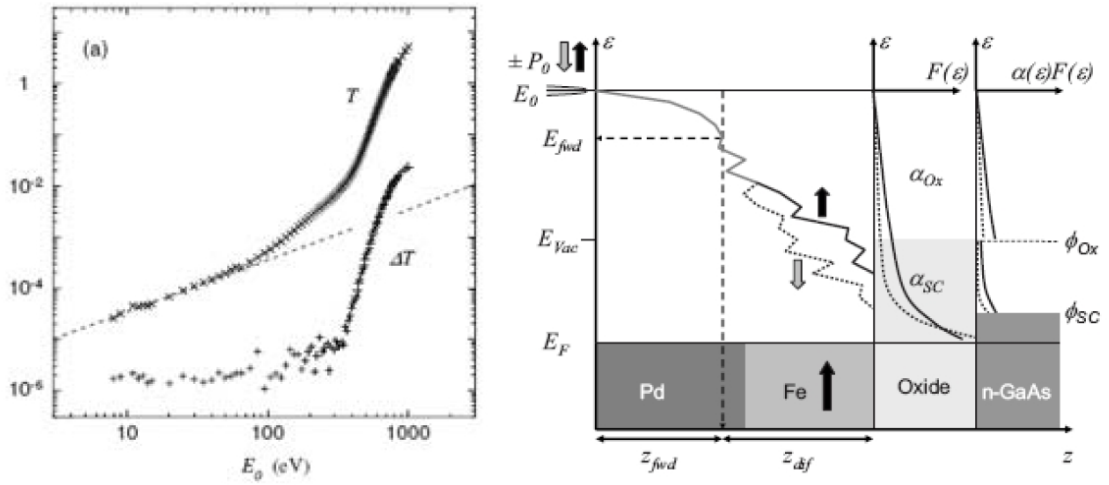


FIG. *5.29 – Documents tirés de [135]. A gauche, évolution de E et de ΔT en fonction de l'énergie d'injection E. On distingue clairement les trois régimes de transmission. A droite, schéma du profil de potentiel de la structure, et schéma du processus de relaxation des électrons chauds le long de leur parcours.*

Premières mesures sur nos filtres à spin

La figure 5.30 représente la transmission T et la différence de transmission ΔT, en fonction de l'énergie d'injection, pour l'échantillon 1806R. Les électrons sont injectés avec une polarisation de +25 %. On observe deux régimes : le premier, pour une gamme d'énergies allant de 1 à environ 350 eV, pour lequel il y a une très faible transmission, par ailleurs constante. (ΔT reste elle aussi constante). Puis un second régime, d'environ 500 eV jusqu'à 3 keV (on peut difficilement aller au-dessus), pour lequel on observe une forte augmentation de T et de ΔT avec l'énergie.

Le comportement à haute énergie est normal, cohérent avec ce qui a été observé dans les travaux précédents : la transmission et la transmission dépendant du spin suivent toutes deux une loi de puissance avec l'énergie. L'augmentation brutale, constatée pour une énergie d'injection de 500 eV, laisse penser qu'à partir de ce seuil, la transmission des électrons se fait au-dessus de la barrière de MgO. Cela signifie donc qu'il n'y a que peu ou pas de transmission par processus tunnel au travers de la barrière, contrairement à ce qui était observé dans l'étude citée ci-dessus. Cela pourrait venir du fait que la barrière de GaAs oxydé par UV était de moins bonne qualité que le MgO. La transmission alors observée aurait été la conséquence de défauts dans la barrière.

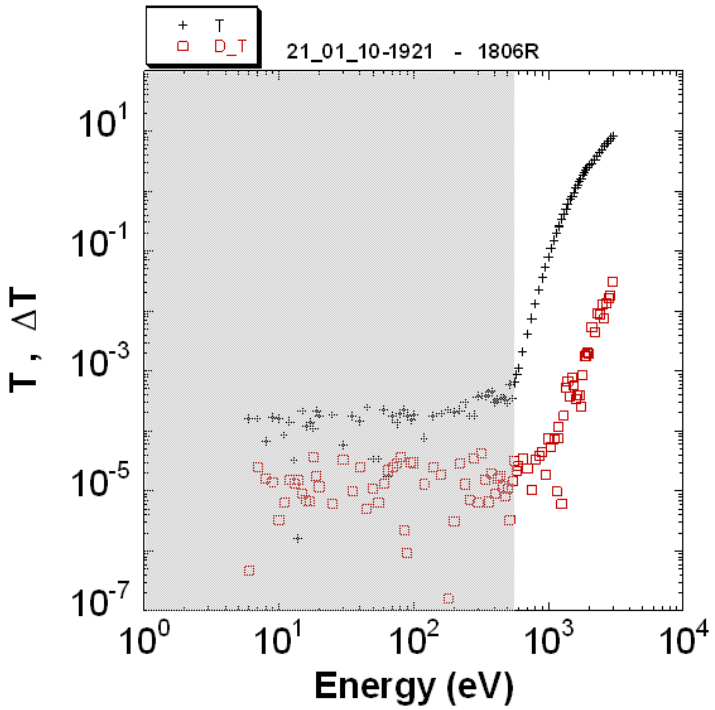


FIG. *5.30 – Evolution de la transmission d'électrons chauds, en fonction de l'énergie d'injection des électrons, dans un échantillon de type filtre à spin (*Si(100) / MgO 2nm / Co 5nm / Pt 2nm*). Les courbes représentent la transmission T et la différence ΔT de transmission entre les deux polarisations.*

L'ensemble de ces mesures confirme la qualité des dispositifs élaborés. Mais tout n'est pas parfait : on s'attend à observer une transmission dépendant de l'énergie d'injection dans la gamme d'énergies intermédiaire (comme c'était le cas dans l'étude précitée). Ici, on ne mesure pas de transmission dans toute la gamme d'énergies inférieures à 500 eV (c'est la zone grisée sur la figure 5.30). Plus exactement, la transmission reste constante, à une valeur d'environ 10^{-4}. Ce comportement, et cette valeur non-nulle proviennent d'une transmission parasite, causée par la résistance d'accès que constitue la couche métallique déposée sur Si/MgO. En effet, à cause du courant d'électrons thermalisés dans la couche métallique, une différence de potentiels s'instaure sur la diode Si/MgO, entraînant un courant de fuite I_{C_0}. Celui-ci est d'autant plus petit que la résistance r de la couche métallique est petite. Une bonne estimation de I_{C_0} est donné par I_{C_0}=(r/R)I_B, où r est la résistance d'accès, et R est la résistance dynamique de la jonction MOS.

Comme on l'a dit en introduction, c'est donc ce rapport r/R qui limite l'observation de la transmission. Pour avoir accès aux régimes de transmission à basse énergie, il faut diminuer ce rapport, soit en augmententant R ou en diminuant r. On pourra diminuer r en jouant sur les propriétés de la couche métallique. Augmenter R demandera plus de travail : il faudrait réduire la surface de la jonction, ou encore travailler sur des substrats de propriétés différentes. Le GaAs serait un candidat (en effet, la masse effective des électrons dans ce matériau est plus basse que dans le silicium), et des tests sont prévus sur ce matériau.

5.5.3 Mesures sur une vanne de spin

Enfin, des mesures préliminaires ont été effectuées sur des vannes de spin à aimantation planaire. La figure (figure 5.31) présente les caractéristiques I-V, avec et sans photocourant.

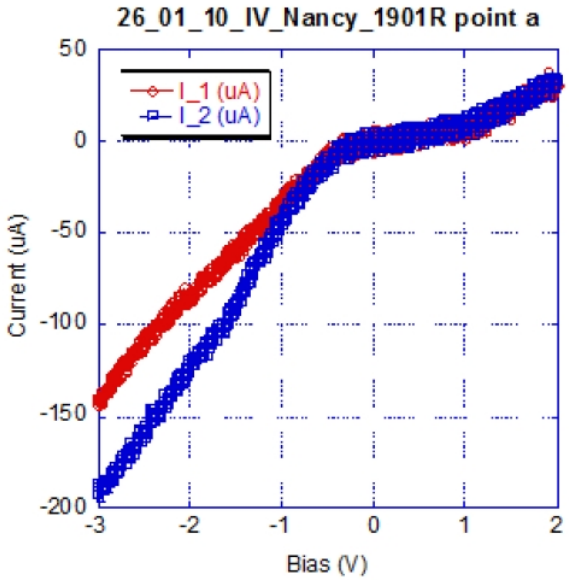


FIG. *5.31 – Caractéristique I-V de la vanne de spin n-Si(100) / MgO 3nm / Co 5nm / Cu 3.5nm / Co 5nm / InMn 7.5nm / Pt 2nm (échantillon 1901).*

Les mesures de transmission (figure 5.32) font apparaître deux régimes : le premier, pour une gamme d'énergies allant de 1 à environ 1200 eV, pour lequel il y a une très faible transmission qui est constante. Puis un second régime, de 1200 eV jusqu'à 3 keV (on peut difficilement aller au-dessus), pour lequel on observe une forte augmentation de T avec l'énergie. La quasi-absence de transmission à basse énergie s'étend sur une gamme d'énergies plus importante que dans le cas du filtre à spin : jusqu'à 1200 eV contre 350 eV. Cela peut se comprendre par le fait que l'épaisseur totale de l'échantillon est plus importante que pour le filtre à spin (26 nm contre environ 10 nm). Les électrons chauds ont à parcourir une plus grande distance avant d'être collectés, ce qui fait que, pour une même énergie d'injection, une proportion plus importante d'entre eux sera thermalisée et ne pourra pas franchir la barrière de potentiel.

Notons enfin qu'aucun effet vanne de spin n'a pu être mesuré, ce qui est quelque peu surprenant, car les échantillons, mesurés sous pointes, présentent de la GMR. Qui plus est, la section précédente a bien mis en évidence l'effet de filtre à spin dans les échantillons basés sur le même empilement. A l'heure actuelle, nous n'avons aucune explication de ce phénomène. Des études complémentaires sont encore en cours afin de comprendre cette absence d'effet dépendant du spin.

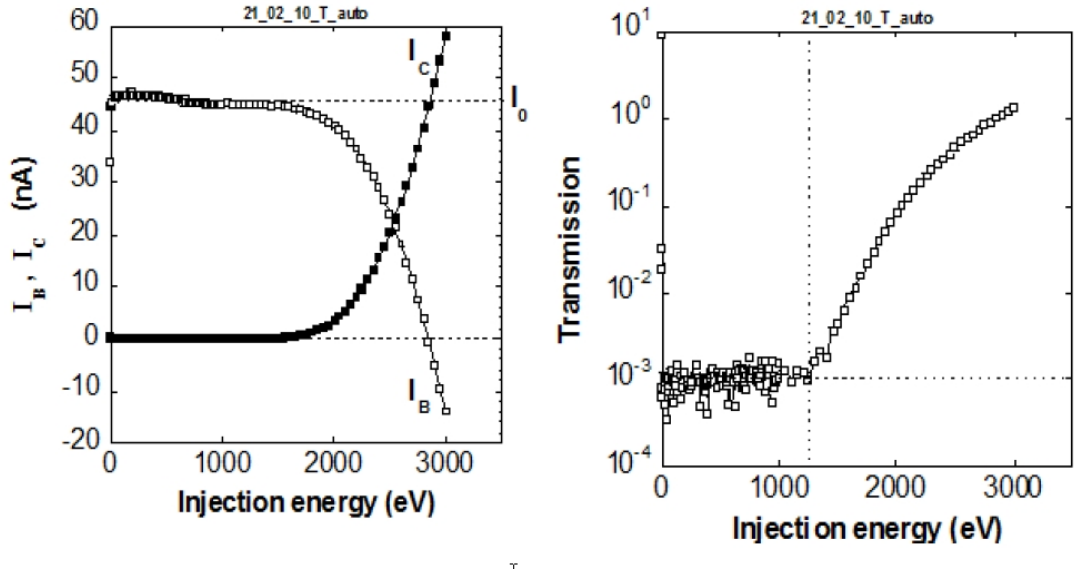


FIG. *5.32 – A gauche, courants I_C et I_B mesurés en fonction de l'énergie d'injection des électrons. A droite, mesure de la transmission (T) des électrons chauds dans la vanne de spin n-Si(100) / MgO 3nm / Co 5nm / Cu 3.5nm / Co 5nm / InMn 7.5nm / Pt 2nm.*

5.6 Conclusion

Les travaux menés ont permis d'obtenir des structures ferromagnétique/oxyde/semi-conducteur, qui remplissent les conditions demandées. Nous avons pu élaborer des empilements de type vanne de spin, à aimantations planaires et à aimantations croisées. Des mesures d'injection d'électrons à haute énergie, réalisées sur un filtre à spin *Co/MgO/Si*, puis sur une vanne de pin, ont mis en évidence qu'il y a bien de la transmission d'électrons chauds dans la structure. Malgré ces résultats, il reste encore certains points défaillants, comme la résistance d'accès trop importante, ou encore une trop faible magnéto-résistance des vannes de spin, qu'il faudra corriger.

Ces prémices de résultats valident néanmoins l'approche suivie. Les échantillons pouvant désormais être obtenus de manière reproductible, ces travaux ouvrent la voie à une étude plus systématique de l'injection et de la transmission d'électrons chauds. Celle-ci permettra d'optimiser les propriétés de l'empilement, en vue de son intégration dans le dispositif tout solide. Des mesures vont également être entreprises pour tenter d'observer directement la précession du spin des électrons injectés dans les structures à vannes de spin à aimantations croisées.

Conclusion et perspectives

Bilan

L'objectif de cette thèse était de parvenir à contrôler la précession de la polarisation du spin d'électrons chauds injectés dans une couche mince ferromagnétique. Pour ce faire, nous avons étudié un dispositif orignial, à base de jonctions tunnel magnétiques (JTM), permettant l'injection, la précession et la collecte des électrons avec un dispositif tout-solide. S'attaquant à un sujet presque vierge, il a fallu dans de nombreux cas partir de zéro (expérimentalement, mais aussi théoriquement), et adapter le travail au gré des premiers retours d'expérience.

L'étude a débuté par l'élaboration d'une telle structure de doubles jonctions tunnel magnétiques (DJTM), à partir de jonctions tunnel magnétiques à barrières d'oxyde d'aluminium. Des premières mesures de transport électronique ont donné des esquisses de résultats sur la précession de spin. Mais leur interprétation reste trop ambigüe. Un facteur important est la qualité des échantillons, et plus particulièrement celle des barrières tunnel, qui s'est révélée être insuffisante (TMR trop faible, tension de claquage trop faible...) pour obtenir des résultats reproductibles et fiables.

La thèse a donc été réorientée vers le développement d'une structure multicouches plus adaptée, suivant deux axes. Le premier porte sur le développement de jonctions tunnel à barrière tunnel de MgO capables (en termes de TMR, d'anisotropies magnétiques...) de remplacer celles à barrières d'alumine. Le second axe porte sur l'élaboration de structures de type multicouche magnétique déposée sur une jonction métal / oxyde / semi-conducteur. Celles-ci peuvent à la fois servir de brique de base alternative au dispositif de collecte initialement envisagé pour notre dispositif, mais peuvent aussi permettre d'observer directement la précession d'électrons chauds. L'injection des électrons chauds polarisés en spin se ferait depuis une source externe, et la précession pourrait être induite et détectée grâce à une vanne de spin à aimantations croisées.

Le premier axe de recherche, sur les JTM à barrière de MgO, a donné lieu à plusieurs résultats. Nous avons tout d'abord mis en place un procédé d'élaboration des JTM CoFeB / MgO / CoFeB à aimantations planaires. Leur TMR atteint 130 % à température ambiante. Ce résultat, quoique suffisant pour nos travaux, reste toutefois en-deçà de l'état de l'art (le procédé utilisé ne permet pas une cristallisation complète des électrodes de CoFeB).

Ces travaux ont été l'occasion de mener une étude annexe sur les propriétés de transport tunnel de ces jonctions, afin de mieux cerner l'origine de l'anomalie de conductance observée à basse température. Nous avons ainsi mis au jour un mécanisme jusqu'alors ignoré, lié à des interactions électron-électron causé par le désordre structurel aux interfaces électrode/barrière. Il s'agit d'un résultat nouveau et intéressant, car aucun groupe ne s'était jusqu'alors intéressé à l'influence que peut avoir l'utilisation d'un matériau amporphe (utilisation délibérée, pour les raisons exposées au chapitre 3) sur le transport tunnel, alors que l'on sait que ces matériaux peuvent présenter des propriétés électroniques particulières.

Un autre résultat porte sur le développement des JTM à anisotropies perpendiculaires, utilisant un alliage de CoTb. Partant de zéro, nous avons obtenu une TMR est proche de l'état de l'art. Des mesures complémentaires ont mis en lumière le rôle décisif de la qualité de la couche de CoFeB supérieure pour l'obtention de TMR plus élevées.

Cette étape a ensuite permis de réaliser des JTM à anisotropies croisées, présentant elles aussi une TMR élevée.

Le second axe de recherche a été mené dans le cadre du contrat ANR *SpinPress*, en collaboration notamment avec le laboratoire PMC de l'école Polytechnique. Le travail a porté sur l'élaboration des multicouches magnétiques déposées sur un substrat de semi conducteur oxydé. Nous sommes parvenus à élaborer trois types d'échantillons : (i) des filtres à spin, ainsi que des vannes de spin à anisotropies (ii) planaires et (iii) croisées. La méthode de dépôt mise au point a permis d'obtenir des structures combinant de bonnes propriétés magnétiques, structurelles et électriques. Les premières mesures de transmission d'électrons chauds ont mis en évidence un effet de filtre à spin dans les jonctions Co/MgO/Si. Ce résultat n'est pas fondamentalement novateur en soi, mais il a permis de reproduire des résultats antérieurs observés sur des structures similaires. Ils confirment également que l'on observe un courant d'électrons chauds, condition nécessaire pour envisager des mesures de précession.

Perspectives

Ce travail a permis de poser quelques jalons sur un sujet jusqu'alors peu exploré. Les briques de base nécessaires à la poursuite du travail expérimental sont désormais, individuellement, opérationnelles. Elles peuvent cependant être améliorées, si l'on veut atteindre les performances record présentés récemment dans la littérature. Les résultats obtenus peuvent donc servir de point de départ à d'autres études, notamment pour les JTM à anisotropie perpendiculaire. Leurs performances sont tout à fait honorables par rapport à l'état de l'art à ce jour.

Pour ce qui est de la précession, le travail de développement exposé dans ce manuscrit n'a pas laissé le temps de mener cette étude à son terme. Il reste en effet à proposer un modèle théorique plus élaboré, et aussi à réaliser la double jonction tunnel à partir des briques de base. Nous avons cependant pu poser quelques jalons pour la suite.

En effet, des tests ont permis d'assembler des DJTM à aimantation planaire, à partir des JTM MgO individuelles. Un exemple en est donné sur la figure 6.33, qui présente quelques résultats pour un échantillon de composition *Ta 5nm / Co 10nm / IrMn 7.5nm / CoFeB 4nm / MgO 3nm / CoFeB 10nm / MgO 3nm / CoFeB 1.5nm / Co 4nm / IrMn 10nm / Pt 3nm*. On y trouve le cycle d'hystérésis (mesuré au VSM, avant structuration) et la résistance en fonction du champ magnétique, mesurée sous pointes, à tension constante.

On distingue bien, sur la figure de droite, les différents plateaux de résistance, correspondant aux trois configurations magnétiques (saturation, retournement de la couche intermédiaire, puis de la couche douce). Ces propriétés magnétiques sont satisfaisantes, mais les mesures de magnéto-transport révèlent quelques problèmes.

En effet, la TMR relevée sur ce graphe pour chacune des barrières n'est que de l'ordre de quelques pourcents, ce qui est très faible devant les 130 % de TMR obtenus sur les JTM individuelles. De plus, la résistance surfacique de ces doubles jonctions est largement inférieure à la valeur attendue. Ainsi, la résistance surfacique de la jonction double présentée ci-dessus

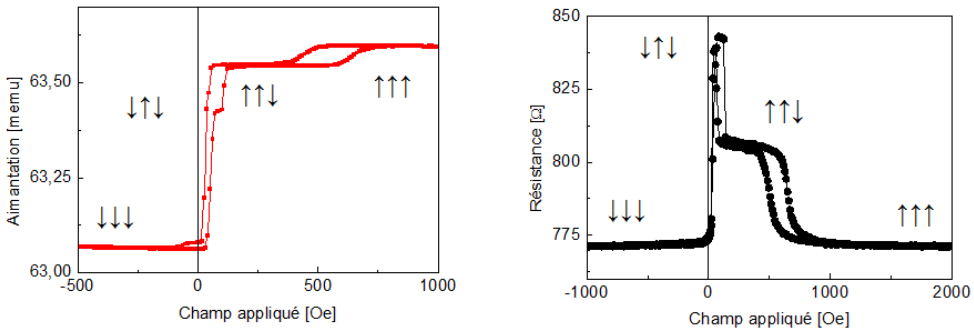


FIG. *6.33 – Cycle d'hystérésis mesuré par VSM, et résistance en fonction du champ magnétique appliqué, pour une structure Ta 5nm / Co 10nm / IrMn 7.5nm / CoFeB 4nm / MgO 3nm / CoFeB 10nm / MgO 3nm /CoFeB 1.5nm / Co 4nm / IrMn 10nm / Pt 3nm, après recuit à 300˚C. Mesures à température ambiante. Les flèches indiquent la configuration de l'aimantation des trois couches ferromagnétiques (échantillon 1750).*

n'est que de $RA_{DJTM} = 7.7\ 10^{-8}\ \Omega.m^2$, ce qui est supérieur de deux ordres de grandeur à la résistance surfacique d'une jonction tunnel magnétique simple (environ $10^{-4}\ \Omega.m^2$). Or, on s'attend à ce que cette valeur soit le double de la RA mesurée pour une jonction seule résistance surfacique d'une jonction simple (de composition équivalente et élaborée dans les mêmes conditions). On peut interpréter ces résultats comme étant la manifestation de la dégradation d'une, voire des deux barrières tunnel lors de la structuration des jonctions par lithographie.

Une parade serait de se passer d'une étape de microstucturation en salle blanche. Les contacts électriques, nécessaires à la mesure, seraient alors définis pendant le dépôt en utilisant un jeu de masques. Mais se pose alors le problème bien connu des effets d'ombrage, qui limiteront la résolution des motifs.

L'assemblage de la DJTM demandera donc, au delà de l'optimisation des briques de bases, un travail de développement à part entière.

Pour ce qui est de la seconde approche, menée en parallèle dans le cadre du projet ANR Spinpress, le travail mené sur les substrats Si/MgO permet désormais de déposer presque n'importe quelle multicouche métallique (magnétique ou non). Nous disposons ainsi de structures vanne de spin à aimantations planaire et croisées. En particulier, ces dernières vont permettre de réaliser directement des mesures de précession. Il reste à voir si le problème de résistance d'accès pourra être résolu. Des études complémentaires ont d'ores et déjà commencé, et devraient permettre d'apporter des réponses d'ici les prochains mois.

Annexes

Annexe A

Élaboration des échantillons

Le système MPGA (MBE, Pulvérisation, Gravure, Analyse), est un système d'interconnexion, développé au laboratoire, entre plusieurs appareils fonctionnant sous ultra-vide. Il relie entre elles un bâti de MBE (*molecular beam epitaxy*, ou épitaxie par jets moléculaires), un bâti de pulvérisation cathodique, une chambre de gravure et une chambre de dépôt de SiO_2. Un ensemble de sas et de cannes de transfert permet de déplacer les échantillons de l'une des chambres à l'autre, sans avoir à les sortir à l'air libre permettant la combinaison au sein d'une multicouche de divers matériaux (jusqu'à 26 matériaux différents).

L'intérêt du dispositif est qu'il ouvre la possibilité de combiner plusieurs techniques d'élaboration. Nous avons par exemple pu réaliser des échantillons hybrides, c'est à dire dont une partie de la multicouche est élaborée par pulvérisation cathodique, et le reste par MBE. Autre avantage, il permet d'avoir accès à plusieurs techniques de caractérisation et d'analyse *in situ* : spectroscopie d'électrons Auger, RHEED, SIMS.



FIG. *A.1 – À gauche, photo du complexe d'élaboration MPGA ; à droite, schéma du même montage vu du dessus.*

La plupart des échantillons étudiés dans cette thèse sont constitués de couches minces polycristallines qui ont été élaborées par pulvérisation cathodique. Pour certaines études, en revanche, une ou plusieurs couches des échantillons ont été élaborées par épitaxie, car nous avions besoin d'une qualité cristalline plus difficile à obtenir par pulvérisation.

A.1 Épitaxie par jets moléculaires

MPGA est équipée d'un bâti d'épitaxie par jets moléculaires. Le principe de cette technique consiste à évaporer un matériau dans une enceinte maintenue sous ultra-vide pour le déposer sur un substrat. Suivant les propriétés cristallines du substrat, le matériau va croitre de manière ordonnée, sous forme de monocristal.

Les matériaux peuvent être déposés grâce à deux techniques dont est équipé le bâti : cellules de Knudsen et canon à électrons.

Le tout est complété de plusieurs outils : un poste chaud pour recuire les échantillons, un spectromètre de masse pour l'analyse des éléments chimiques présents dans l'enceinte, et un canon RHEED (*reflexion high-energy electron diffraction*), qui permet d'obtenir des renseignements sur les propriétés structurales de l'échantillon ; on peut ainsi contrôler son état de croissance à diverses étapes de son élaboration.

A.2 Pulvérisation cathodique

Les empilements de couches minces constituant nos échantillons ont été élaborés principalement par pulvérisation cathodique magnétron. Nous allons ici brièvement rappeler le principe de fonctionnement de cette technique, et donner quelques caractéristiques du procédé utilisé.

A.2.1 Principe de fonctionnement

La pulvérisation cathodique est un procédé de dépôt physique en phase vapeur (PVD, ou *physical vapour deposition*). Il s'agit d'un procédé réalisé dans une enceinte sous vide, à l'aide d'un plasma froid.

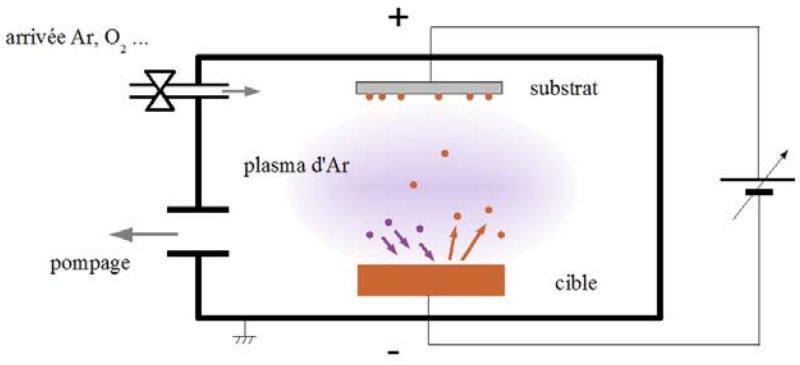


FIG. *A.2 – Principe du fonctionnement de la pulvérisation cathodique.*

Le matériau à déposer est placé dans l'enceinte sous la forme d'une cible. Le substrat sur lequel on veut déposer le matériau est monté sur un poste situé à environ 10 cm de la cible. Un gaz est introduit dans l'enceinte, à une faible pression. En pratique, un gaz neutre est utilisé pour le plasma. Il existe cependant la possibilité de travailler sous atmosphère réactive, avec un

gaz chimiquement actif, choisi en fonction des matériaux à déposer.

Un plasma luminescent est créé par décharge électrique, en polarisant négativement la cathode (reliée à la cible) à une tension continue de quelques V à plusieurs kV. Les ions du plasma, attirés par la cathode, bombardent la cible et en arrachent des atomes (ou des grappes d'atomes), qui vont ensuite se condenser sur le substrat.

Ce procédé n'est cependant valable que pour déposer des matériaux métalliques, conducteurs. Dans le cas où l'on veut déposer des matériaux isolants, on ne peut pas appliquer une tension constante car il y aurait accumulation de charges électriques apportées par les ions au niveau de la cible. On a donc recours à une technique de dépôt AC (*rf-sputtering*) : la cible est polarisée alternativement positivement et négativement, à haute fréquence. L'alternance du signe permet d'évacuer les charges électriques.

Afin d'augmenter la vitesse de dépôt, il existe un moyen de confiner les ions du plasma à l'aide d'un champ magnétique : c'est la technique de la pulvérisation cathodique magnétron. Un ou plusieurs aimants de forte aimantation sont installés sous la cible, de sorte à confiner le plasma à proximité de la cible. Cela a pour effet d'augmenter leur probabilité d'ionisation du gaz et donc la densité du plasma.

A.2.2 Système de pulvérisation utilisé

Le banc de pulvérisation du laboratoire est un appareil commercial Alliance Concept DP850. Il est composé d'une enceinte principale, maintenue sous ultra-vide (pression de base inférieure à 10^{-9} mbar), et d'un sas de transfert.

Les substrats sont introduits dans l'enceinte par ce sas, dans lequel un vide poussé (10^{-7} mbar) est établi, et ce afin de minimiser la contamination dans la chambre de dépôt lors de l'introduction de l'échantillon, et donc d'en diminuer le temps de pompage. Ce bâti offre la possibilité de charger automatiquement des masques pendant le dépôt, de sorte à déposer le matériau suivant un motif particulier. Dans notre cas, ces masques n'ont pas été utilisés puisque la structuration était assurée par des étapes de lithographie (voir l'annexe B).

L'enceinte principale du bâti de pulvérisation cathodique comporte dix cibles : 6 cibles d'un diamètre de 2 pouces (Co, Pt, $IrMn_3$, Cu, Tb, MgO) et 4 cibles de 3 pouces (Ta, Al, Co et Ni). Les alliages Co_xTb_{1-x} utilisés dans le cadre de cette thèse sont déposés par co-pulvérisation : les cibles de Tb et de Co sont en effet installées de sorte à être convergentes. Les dépôts ont été effectués avec un plasma de gaz argon, introduit à une pression de travail de 5.10^{-3} mbar.

Dans des conditions normales de fonctionnement, le flux d'atomes est constant ; l'épaisseur du matériau déposé ne dépend donc que du temps d'exposition du substrat. Pour connaître l'épaisseur des couches déposées, on se base sur un étalonnage des flux de matière. Celui-ci est réalisé *ex situ*, en mesurant l'épaisseur d'échantillons étalons à l'aide d'un micro-profilomètre *Dektak* ou bien par réflectométrie de rayons X.

A.2.3 Conditions de dépôt des JTM

L'essentiel des jonctions tunnel préparées dans cette thèse sont à barrière de MgO. Le matériau a été déposé directement depuis une cible de MgO commerciale. Quelques échantillons ont été élaborés avec barrière d'alumine (Al_2O_3). Pour ces dernières, on dépose de l'aluminium, que l'on oxyde ensuite par plasma.

Préalablement à chaque dépôt, les substrats sont décapés lors d'une étape de pré-pulvérisation, afin d'éliminer toute contamination de la surface (oxyde natif, vapeur d'eau, résidus du nettoyage chimique...). Pour cela, un plasma d'Ar RF est placé sur le substrat pendant une durée de 5 minutes, à 100 W avec une pression d'Ar de 10^{-2} mbar.

Le tableau A.1 récapitule quelques-uns des paramètres expérimentaux utilisés pour le dépôt des couches minces. Pour assurer une bonne homogénéité des couches, l'échantillon est balayé au-dessus de la cible avec un angle de balayage de 60°.

Matériau	diamètre *en pouces*	puissance *en watt*	vitesse balayage *en t/min*	polarisation plasma	flux *en A par balayage*
Pt	2	15	4	DC	1,2
IrMn	2	10	2	DC	1,2
Cu	2	15	4	DC	1,37
Al	3	30	4	RF	0,96
Ta	3	60	4	DC	2,64
Py	3	200	1	RF	1,095
Co - 3mm	3	100	2	RF	1
Co - 2mm	2	35	2	DC	1,85
Mg	2	10	4	RF	0,98
MgO	2	25	2	RF	0,137
CoFeB	3	150	1	RF	0,756
CoFeB (40%)	3	150	1	RF	1,13
Tb - 3mm	2	20	2	DC	2,52
idem	2	10	2	DC	1,39
idem	2	15	2	DC	1,987

TAB. *A.1 – Récapitulatif des conditions de dépôt des matériaux utilisés pour préparer les échantillons étudiés.*

Annexe B

Procédé de structuration

Afin de réaliser les mesures de magnéto-transport, il est nécessaire de structurer l'échantillon. Le but est de définir la taille de la jonction, mais aussi de prendre des contacts électriques et à isoler les électrodes inférieure et supérieure. Pour ce faire, nous avons utilisé un procédé de lithographie optique à lumière ultraviolette, associé à des étapes de gravure sèche par faisceau ionique (*ion beam etching*). Les échantillons ont tous été structurés dans la salle blanche du centre de compétences « Minalor » de l'Institut Jean Lamour.

On rappelle brièvement le détail des étapes du procédé de structuration utilisé. Celui-ci a été mis au point par François Montaigne et par Gwladys Lengaigne, du centre Minalor.

1. Une fois le dépôt PVD terminé, l'échantillon est nettoyé à l'aide d'un solvant (isopropanol), puis séché à l'azote.
2. Une première étape de lithographie permet de définir les électrodes supérieures. L'échantillon est enduit de résine photosensible positive, de type « Shipley 1813 », puis il est recuit sous étuve à 115°C pendant 1 minute. Il est ensuite placé devant le premier masque, et est insolé pendant 5 secondes par une source lumineuse UV (lampe à mercure). Un bain de 40 secondes dans le développeur, une solution chimique de type MF319, dissout les parties de la résine exposées à la lumière. L'échantillon est ensuite rincé à l'eau désionisée.
3. La gravure permet d'enlever le matériau des zones où il n'y a plus de résine, jusqu'à l'électrode sur laquelle on veut prendre le contact. Ici, on cherchera à s'arrêter juste après la barrière isolante, dans l'électrode inférieure. Nous utilisons une technique de gravure sèche, non réactive, par plasma d'ions argon. L'échantillon est placé dans un bâti maintenu sous ultra-vide. Pendant l'opération, un flux d'Ar est introduit dans l'enceinte avec une pression d'environ 10^{-4} mbar ; l'ionisation du gaz est assurée par un générateur RF (qui fournit une puissance de 50 W). Les ions Ar+ sont extraits et accélérés vers l'échantillon par deux grilles métalliques polarisées en tension. Le porte-échantillon est incliné d'un angle de 15° pendant la gravure, pour minimiser le re-dépôt d'atomes expulsés. Une rotation de l'ensemble permet d'assurer une gravure uniforme sur toute la surface. Enfin, un contact électrique est pris au niveau de l'échantillon pour mesurer le courant d'électrons collecté, de sorte à quantifier la quantité d'ions ayant gravé la mutlicouche.

4. Afin de déterminer quand arrêter la gravure, on doit avoir recours à un outil de caractérisation chimique de la surface exposée, afin de savoir à quelle profondeur de l'échantillon on se situe. Pour ce faire, le bâti est équipé de systèmes de spectroscopie SIMS (*secondary ion mass spectrometry*) et de spectrométrie d'électrons Auger. Cette étape de caractérisation est importante, car pour certains matériaux (en particulier les terres rares, comme CoTb) une sur-gravure trop importante peut causer des problèmes d'oxydation de l'électrode inférieure, ce qui a de fâcheuses conséquences pour les propriétés de l'échantillon.
5. Une fois la gravure terminée, l'échantillon est nettoyé pour enlever la résine résiduelle, puis il est soumis à une seconde étape de lithographie ; on utilise un deuxième masque, qui sert à définir l'électrode inférieure. La procédure de lithographie est la même qu'à l'étape 2. L'échantillon est ensuite gravé jusqu'au substrat de verre.
6. Vient ensuite un dépôt d'isolant, afin de séparer les électrodes l'une de l'autre et d'éviter les courts-circuits. On dépose préalablement une couche de résine de type « LOR3A », pour protéger les prises de contact sur les électrodes (motif de « casquette »). Pour définir les zones de contact sur le dessus et le dessous de la jonction tunnel, on utilise un troisième masque, et on procède comme à l'étape 2. Puis on dépose de l'isolant (SiO_2) par pulvérisation (bâti AC450 Alliance Concept du centre Minalor). On procède ensuite au *lift-off* final dans un bain de solvant : la résine protégeant les zones de contact est dissoute, et ouvre la couche de SiO_2 pour des prises de contacts.
7. Enfin, pour réaliser les contacts, on utilise un quatrième et dernier masque. Les motifs laissés par ce dernier, après dissolution de la résine, forment des tranchées. Elles sont remplies par le dépôt d'une couche d'aluminium, qui permet le report du contact électrique en dehors de la jonction tunnel.

Le masque utilisé pour la lithographie (figure B.2) sert à définir des jonctions tunnel, de forme carrée et de taille latérale allant de 10 à 200 μm. Il permet de prendre un contact sur chacune des deux électrodes de la jonction.

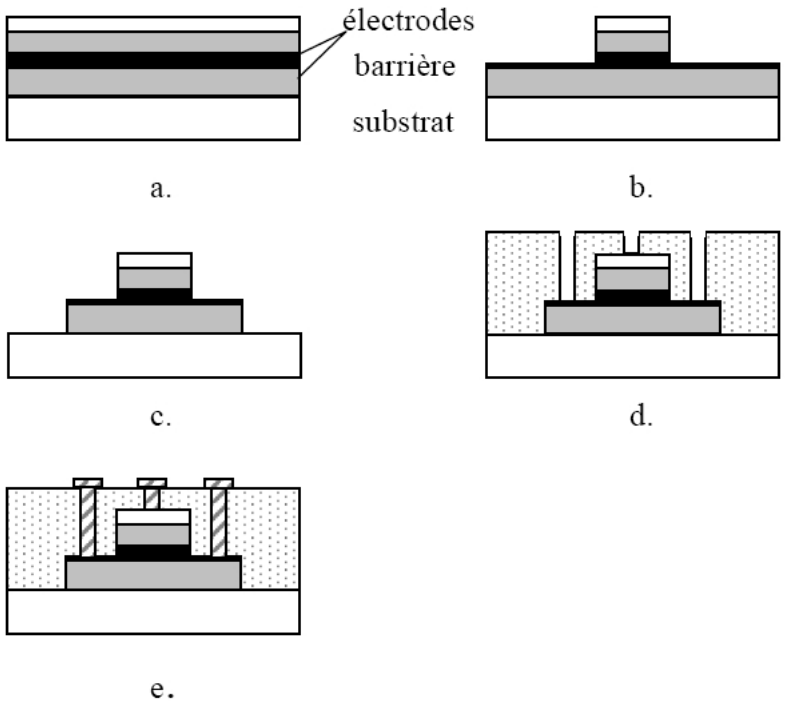


FIG. *B.1 – Schéma récapitulatif du processus de micro-structuration des JTM. Les dessins schématisent l'échantillon vu en coupe à différentes étapes du processus : [a] échantillon initial, après la première [b] puis la deuxième [c] étape de lithographie et de gravure, [d] après la formation des casquettes puis le dépôt de la couche d'isolant, et enfin [e] après la formation des contacts électriques en aluminium.*

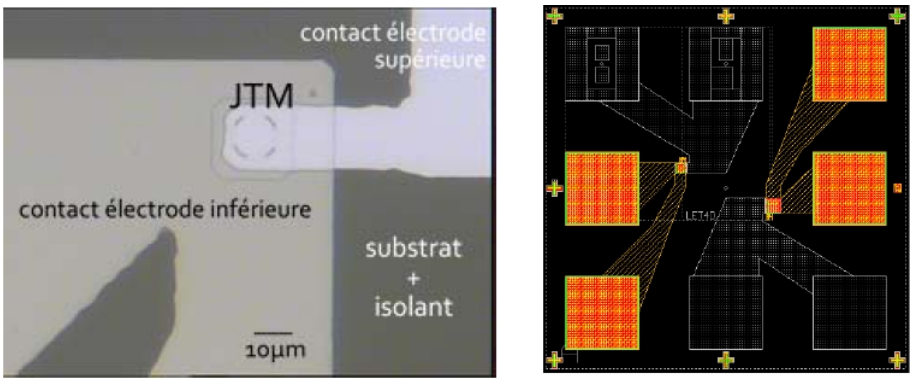


FIG. *B.2 – A gauche, photographie d'une jonction tunnel magnétique, après structuration avec le procédé RIS (pour* reduced insulator surface*). On distingue la JTM, de forme carrée, ainsi que les contacts pris sur chacune des électrodes. A droite, présentation du motif du masque.*

Bibliographie

[1] W. GERLACH et O. STERN : Das magnetische Moment des Silberatoms. *Zeitschrift für Physik*, 9, p. 353, 1922.

[2] M. N. BAIBICH, J. M. BROTO, A. FERT et al. : Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices. *Physical Review Letters*, 61, p. 2472, 1988.

[3] G. BINASCH, P. GRÜNBERG, F. SAURENBACH et al. : Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange. *Physical Review B*, 39, p. 4828, 1989.

[4] M. JULLIÈRE : Tunneling between ferromagnetic films. *Physics Letters*, 54A, p. 225, 1975.

[5] R. von HELMOLT, J. WECKER, B. HOLZAPFEL et al. : Giant negative magnetoresistance in perovskitelike $La_{2/3}Ba_{1/3}MnO_x$ ferromagnetic films. *Physical Review Letters*, 71, p. 2331, 1993.

[6] J. S. MOODERA, Lisa R. KINDER, Terrilyn M. WONG et al. : Large magnetoresistance at room temperature in ferromagnetic thin film tunnel junctions. *Physical Review Letters*, 74, p. 3273, 1995.

[7] F. GREULLET : *Les jonctions tunnel magnétiques épitaxiées à base de MgO(001) : de l'étude statique et dynamique à l'injection de spin dépendant des symétries.* Thèse de doctorat, Université Henri Poincaré – Nancy 1, 2009.

[8] S. A. WOLF, D. D. AWSCHALOM, R. A. BUHRMAN et al. : Spintronics : A spin-based electronics vision for the future. *Science*, 294, p. 1488, 2001.

[9] J. C. SLONCZEWSKI : Current-driven excitation of magnetic multilayers. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 159, p. L1, 1996.

[10] S. DATTA et B. DAS : Electronic analog of the electro-optic modulator. *Applied Physics Letters*, 665, p. 56, 1990.

[11] J. M. KIKKAWA et D. D. AWSCHALOM : Lateral drag of spin coherence in gallium arsenide. *Nature*, 397, p. 139, 1999.

[12] I. APPELBAUM, B. HUANG et D. J. MONSMA : Electronic measurement and control of spin transport in silicon. *Nature*, 447, p. 295, 2007.

[13] F. J. JEDEMA, M. V. COSTACHE, H. B. HEERSCHE et al. : Electrical detection of spin accumulation and spin precession at room temperature in metallic spin valves. *Applied Physics Letters*, 81, p. 5162, 2002.

[14] D. OBERLI, R. BURGERMEISTER, S. RIESEN et al. : Total scattering cross section and spin motion of low energy electrons passing through a ferromagnet. *Physical Review Letters*, 81, p. 4228, 1998.

[15] W. WEBER, D. OBERLI, S. RIESEN et al. : The electron analogue to the faraday rotation. *New Journal of Physics*, 1, p. 9.1, 1999.

[16] W. WEBER, S. RIESEN, C. H. BACK et al. : Spin motion of electrons during reflection from a ferromagnetic surface. *Physical Review B*, 66, p. 1004051, 2002.

[17] C. A. MEAD : Operation of tunnel-emission devices. *Journal of Applied Physics*, 32, p. 646, 1961.

[18] J. P. SPRATT, R. F. SCHWARZ et W. M. KANE : Hot electrons in metal films : Injection and collection. *Physical Review Letters*, 6, p. 341, 1961.

[19] C. R. CROWELL et S. M. SZE : Hot electron transport and electron tunneling in thin film structures. volume 4 de *Physics of thin films*. Academic Press, 1967.

[20] M. HEIBLUM : Tunneling hot electron transfer amplifiers (theta) : Amplifiers operating up to the infrared. *Solid-State Electronics*, 24, p. 343, 1981.

[21] G. SCHMIDT, D. FERRAND, L. W. MOLENKAMP et al. : Fundamental obstacle for electrical spin injection from a ferromagnetic metal into a diffusive semiconductor. *Physical Review B*, 62, p. R4790, 2000.

[22] D. J. MONSMA : *The spin-valve transistor*. Thèse de doctorat, Université de Twente, Pays-Bas, 1998.

[23] K. MIZUSHIMA, T. KINNO, K. TANAKA et al. : Strong increase of the effective polarization of the tunnel current in Fe/AlOx/Al junctions with decreasing fe layer thickness. *Physical Review B*, 58, p. 4660, 1998.

[24] S. van DIJKEN, X. JIANG et S. S. P. PARKIN : Room temperature operation of a high output current magnetic tunnel transistor. *Applied Physics Letters*, 80, p. 3364, 2002.

[25] G. RODARY : *Transport dépendant du spin dans des doubles jonctions tunnel magnétiques*. Thèse de doctorat, Université Paris 7, 2004.

[26] D. LACOUR : *L'effet tunnel dépendant du spin comme sonde du micromagnétisme et du transport d'électrons chauds : application aux capteurs*. Thèse de doctorat, Université Henri Poincaré - Nancy 1, 2002.

[27] T. NAGAHAMA, H. SAITO et S. YUASA : Hot electron transport in magnetic tunnel transistors with an epitaxial MgO tunnel barrier. *Applied Physics Letters*, 96, p. 112509, 2010.

[28] M. HEHN : *Magnétisme et transport polarisé en spin : de la couche mince aux dispositifs à électronique de spin*. Habilitation à diriger des recherches de l'Université Henri Poincaré - Nancy 1, 2004.

[29] D. HOUSSAMEDDINE, U. EBELS, B. DELAET et al. : Spin-torque oscillator using a perpendicular polarizer and a planar free layer. *Nature Materials*, 6, p. 447, 2007.

[30] E. L. WOLF : *Principles of Electron Tunneling Spectroscopy*. Oxford University Press, 1985.

[31] J. BARDEEN : Tunnelling from a many-particle point of view. *Physical Review Letters*, 6, p. 57, 1961.

[32] R. STRATTON : Volt-current characteristics for tunneling through insulating films. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 23, p. 1177, 1962.

[33] W. F. BRINKMAN, R. C. DYNES et J. M. ROWELL : Tunneling conductance of asymmetrical barriers. *Journal of Applied Physics*, 41, p. 1915, 1970.

[34] P. M. TEDROW et R. MESERVEY : Spin-dependent tunneling into ferromagnetic nickel. *Physical Review Letters*, 26, p. 192, 1971.

[35] R. MESERVEY et P. M. TEDROW : Spin-polarized electron tunneling. *Physics Reports*, 238, p. 173, 1994.

[36] P. M. TEDROW et R. MESERVEY : Spin polarization of electrons tunneling from films of Fe, Co, Ni, and Gd. *Physical Review B*, 7, p. 318, 1973.

[37] J. C. SLONCZEWSKI : Conductance and exchange coupling of two ferromagnets separated by a tunneling barrier. *Physical Review B*, 39, p. 6995, 1989.

[38] J. M. DE TERESA, A. BARTHÉLÉMY, A. FERT et al. : Inverse tunnel magnetoresistance in $Co/SrTiO_3/La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$: New ideas on spin-polarized tunneling. *Physical Review Letters*, 82, p. 4288, 1999.

[39] F. MONTAIGNE, M. HEHN et A. SCHUHL : Tunnel barrier parameters and magnetoresistance in the parabolic band model. *Physical Review B*, 64, p. 144402, 2001.

[40] A. H. DAVIS et J. M. MACLAREN : Spin dependent tunneling at finite bias. *Journal of Applied Physics*, 87, p. 5224, 2000.

[41] P. LECLAIR, J. T. KOHLHEPP, H. J. M. SWAGTEN et al. : Interfacial density of states in magnetic tunnel junctions. *Physical Review Letters*, 86, p. 1066, 2001.

[42] W. H. BUTLER, X.-G. ZHANG, T. C. SCHULTHESS et al. : Spin-dependent tunneling conductance of Fe|MgO|Fe sandwiches. *Physical Review B*, 63, p. 054416, 2001.

[43] J. MATHON et A. UMERSKI : Theory of tunneling magnetoresistance of an epitaxial Fe/MgO/Fe(001) junction. *Physical Review B*, 63, p. 220403, 2001.

[44] J. FAURE-VINCENT : *Transport tunnel polarisé en spin dans le système épitaxié Fe/MgO/Fe : Interactions magnétiques et Symétries électroniques*. Thèse de doctorat, Université Henri Poincaré - Nancy 1, 2004.

[45] P.-J. ZERMATTEN : *Etude du transport tunnel dépendant du spin dans des jonctions tunnel magnétiques épitaxiées Fe/MgO/Fe bcc*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier - Grenoble 1, 2008.

[46] A. M. TURNER et J. L. ERSKINE : Surface electronic properties of Fe(100). *Physical Review B*, 30, p. 6675, 1984.

[47] J. CALLAWAY et C. S. WANG : Energy bands in ferromagnetic iron. *Physical Review B*, 16, p. 2095, 1977.

[48] W. H. BUTLER, X.-G. ZHANG, T. C. SCHULTHESS et al. : Spin-dependent tunneling conductance of Fe|MgO|Fe sandwiches. *Physical Review B*, 63, p. 054416, 2001.

[49] Ph. MAVROPOULOS, N. PAPANIKOLAOU et P. H. DEDERICHS : Complex band structure and tunneling through ferromagnet /insulator /ferromagnet junctions. *Physical Review Letters*, 85, p. 1088, 2000.

[50] S. YUASA, T. NAGAHAMA, A. FUKUSHIMA et al. : Giant room-temperature magnetoresistance in single-crystal Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions. *Nature Materials*, 3, p. 868, 2004.

[51] S. S. P. PARKIN, C. KAISER, A. PANCHULA et al. : Giant tunnelling magnetoresistance at room temperature with MgO (100) tunnel barriers. *Nature Materials*, 3, p. 862, 2004.

[52] S. IKEDA, J. HAYAKAWA, Y. ASHIZAWA et al. : Tunnel magnetoresistance of 604 % at 300 K by suppression of Ta diffusion in CoFeB/MgO/CoFeB pseudo-spin-valves annealed at high temperature. *Applied Physics Letters*, 93, p. 082508, 2008.

[53] M. KLAUA, D. ULLMANN, J. BARTHEL et al. : Growth, structure, electronic, and magnetic properties of MgO/Fe(001) bilayers and Fe/MgO/Fe(001) trilayers. *Physical Review B*, 64, p. 134411, 2001.

[54] W. WEBER, S. RIESEN et H. C. SIEGMANN : The dynamic response of magnetization to hot spins. *In* B. HILLEBRANDS et K. OUNADJELA, éditeurs : *Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures II*, volume 87 de *Topics in Applied Physics*. Springer, 2003.

[55] G. MALINOWSKI : *Transport dépendant du spin et couplage d'échange : de la jonction tunnel au capteur magnétique intégré*. Thèse de doctorat, université Henri Poincaré - Nancy 1, 2004.

[56] M. HEHN, G. MALINOWSKI, M. SAJIEDDINE et al. : A high magnetic field sensor based on magnetic tunnel junctions. *European Physics Journal Applied Physics*, 28, p. 79, 2004.

[57] M. HEHN, C. de BUTTET, G. MALINOWSKI et al. : Low-height sputter-deposited magnesium oxide tunnel barriers : experimental report and free electron modeling. *European Physics Journal B*, 40, p. 19, 2004.

[58] D. LACOUR et al. : Magnetic properties of postoxidized Pt/Co/Al layers with perpendicular anisotropy. *Applied Physics Letters*, 90, p. 192506, 2007.

[59] M. KITADA, H. YAMAMOTO et H TSUCHIYA : Reaction between permalloy and several thin metal films. *Thin Solid Films*, 122, p. 173, 1984.

[60] R. VLUTTERS, O. M. J. van 't ERVE, R. JANSEN et al. : Modeling of spin-dependent hot-electron transport in the spin-valve transistor. *Physical Review B*, 65, p. 024416, 2001.

[61] F. MONTAIGNE : *Effet tunnel dépendant du spin : Des simples aux doubles jonctions*. Thèse de doctorat, Université Paris VII - Denis Diderot, 1999.

[62] J. NASSAR : *Magnétorésistance tunnel de jonctions à base de métaux de transition et oxydes ferromagnétiques*. Thèse de doctorat, École Polytechnique, 1999.

[63] D. D. DJAYAPRAWIRA, K. TSUNEKAWA, M. NAGAI et al. : 230 % room-temperature magnetoresistance in CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions. *Applied Physics Letters*, 86, p. 092502, 2005.

[64] S. YUASA, S. YOSHISHIGE, K. TOSHIKAZU et al. : Characterization of growth and crystallization processes in CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junction structure by reflective high-energy electron diffraction. *Applied Physics Letters*, 87, p. 242503, 2005.

[65] Y. LU, M. TRAN, H. JAFFRÈS et al. : Spin-polarized inelastic tunneling through insulating barriers. *Physical Review Letters*, 102, p. 176801, 2009.

[66] J. HAYAKAWA, S. IKEDA, Y. M. LEE et al. : Effect of high annealing temperature on giant tunnel magnetoresistance ratio of CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions. *Applied Physics Letters*, 89, p. 232510, 2006.

[67] W. H. MEIKLEJOHN et C. P. BEAN : New magnetic anisotropy. *Physical Review*, 102, p. 1413, 1956.

[68] S. YUASA : Giant tunnel magnetoresistance in magnetic tunnel junctions with a crystalline MgO(001) barrier. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 40, p. R337, 2007.

[69] R. MATSUMOTO, S. NISHIOKA, M. MIZUGUCHI et al. : Dependence on annealing temperatures of tunneling spectra in high-resistance CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions. *Solid State Communications*, 143, p. 574, 2007.

[70] D. V. DIMITROV, Z. GAO, X. WANG et al. : Transport properties of MgO magnetic tunnel junctions. *Journal of Applied Physics*, 105, p. 113905, 2009.

[71] S. IKEGAWA, H. AIKAWA, T. UEDA et al. : Temperature dependence of tunnel resistance for CoFeB/MgO/CoFeB magnetoresistive tunneling junctions : The role of magnon. *Journal of Applied Physics*, 101, p. 09B504, 2007.

[72] G. MALINOWSKI, M. HEHN, S. ROBERT et al. : Magnetic origin of enhanced top exchange biasing in Py/IrMn/Py multilayers. *Physical Review B*, 68, p. 184404, 2003.

[73] C. TIUSAN, F. GREULLET, M. HEHN et al. : Spin tunnelling phenomena in single-crystal magnetic tunnel junction systems. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 19, p. 165201, 2007.

[74] R. A. LOGAN et J. M. ROWELL : Conductance anomalies in semiconductor tunnel diodes. *Physical Review Letters*, 13, p. 404, 1964.

[75] A. F.G. WYATT : Anomalous densities of states in normal tantalum and niobium. *Physical Review Letters*, 13, p. 401, 1964.

[76] J. M. ROWELL et L. Y. L. SHEN : Zero-bias anomalies in normal metal tunnel junctions. *Physical Review Letters*, 17, p. 15, 1966.

[77] J. A. APPELBAUM : Exchange model of zero-bias tunneling anomalies. *Physical Review*, 154, p. 633, 1967.

[78] J. S. MOODERA, J. NOWAK et R. J. M. van de VEERDONK : Interface magnetism and spin wave scattering in ferromagnet-insulator-ferromagnet tunnel junctions. *Physical Review Letters*, 80, p. 2941, 1998.

[79] S. ZHANG, P. M. LEVY, A. C. MARLEY et al. : Quenching of magnetoresistance by hot electrons in magnetic tunnel junctions. *Physical Review Letters*, 79, p. 3744, 1997.

[80] C. B. DUKE, S. D. SILVERSTEIN et Alan J. BENNETT : Zero-bias tunnel-conductance minima due to the excitation of collective modes in the barrier. *Physical Review Letters*, 19, p. 315, 1967.

[81] R. JANSEN et J. C. LODDER : Resonant tunneling via spin-polarized barrier states in a magnetic tunnel junction. *Physical Review B*, 61, p. 5860, 2000.

[82] H. F. DING, W. WULFHEKEL, J. HENK et al. : Absence of zero-bias anomaly in spin-polarized vacuum tunneling in Co(0001). *Physical Review Letters*, 90, p. 116603, 2003.

[83] L. SHENG, D. Y. XING et D. N. SHENG : Theory of the zero-bias anomaly in magnetic tunnel junctions : Inelastic tunneling via impurities. *Physical Review B*, 70, p. 094416, 2004.

[84] A. C. HEWSON : *The Kondo Problem to Heavy Fermions*. Cambridge University Press, 1993.

[85] K. I. LEE, S. J. JOO, J. H. LEE et al. : Kondo effect in magnetic tunnel junctions. *Physical Review Letters*, 98, p. 107202, 2007.

[86] J. KLEIN, A. LÉGER, M. BELIN et al. : Inelastic-electron-tunneling spectroscopy of metal-insulator-metal junctions. *Physical Review B*, 7, p. 2336, 1973.

[87] G.-X. MIAO, K. B. CHETRY, A. GUPTA et al. : Inelastic tunneling spectroscopy of magnetic tunnel junctions based on CoFeB/MgO/CoFeB with Mg insertion layer. *Journal of Applied Physics*, 99, p. 08T305, 2006.

[88] K. TAMANOI, M. SATO, M. OOGANE et al. : Electrical conductance properties for magnetic tunnel junctions with MgO barriers. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 320, p. 2959, 2008.

[89] R. MATSUMOTO, Y. HAMADA, M. MIZUGUCHI et al. : Tunneling spectra of sputter-deposited CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions showing giant tunneling magnetoresistance effect. *Solid State Communications*, 136, p. 611, 2005.

[90] S. NISHIOKA, Y. V. HAMADA, R. MATSUMOTO et al. : Differential conductance measurements of low-resistance CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 310, p. e649, 2007.

[91] V. DREWELLO, M. SCHÄFERS, O. SCHEBAUM et al. : Inelastic electron tunneling spectra of MgO-based magnetic tunnel junctions with different electrode designs. *Physical Review B*, 79, p. 174417, 2009.

[92] P. A. THIRY, M. LIEHR, J. J. PIREAUX et al. : Infrared optical constants of insulators determined by high-resolution electron-energy-loss spectroscopy. *Physical Review B*, 29, p. 4824, 1984.

[93] S. ANDRIEU et P. MÜLLER : *Les surfaces solides : concepts et méthodes*. EDP Sciences, 2005.

[94] J. C. READ, P. G. MATHER et R. A. BUHRMAN : X-ray photoemission study of CoFeB/MgO thin film bilayers. *Applied Physics Letters*, 90, p. 132503, 2007.

[95] S. U. JEN, Y. D. YAO, Y. T. CHEN et al. : Magnetic and electrical properties of amorphous CoFeB films. *Journal of Applied Physics*, 99, p. 053701, 2006.

[96] W. L. MCMILLAN et J. MOCHEL : Electron tunneling experiments on amorphous $Ge1-xAux$. *Physical Review Letters*, 46, p. 556, 1981.

[97] W. L. MCMILLAN : Scaling theory of the metal-insulator transition in amorphous materials. *Physical Review B*, 24, p. 2739, 1981.

[98] N. F. MOTT : *Metal-Insulator Transitions, second edition*. Taylor & Francis, 1990.

[99] E.L. ALTSHULER, B.L. ALTSHULER et A.G. ARONOV : Quasielastic electron-electron scattering and anomalous magnetoresistance. *Solid State Communications*, 54, p. 617 – 620, 1985.

[100] R. C. DYNES et J. P. GARNO : Metal-insulator transition in granular aluminum. *Physical Review Letters*, 46, p. 137, 1981.

[101] Q. L. MA, S. G. WANG, J. ZHANG et al. : Temperature dependence of resistance in epitaxial Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions. *Applied Physics Letters*, 95, p. 052506, 2009.

[102] A.F. Md NOR, T. DAIBOU, M. OOGANE et al. : Boron effects on noise in magnetic tunnel junctions. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 310, p. 1917, 2007.

[103] E. du Trémolet de LACHEISSERIE : *Magnétisme - Tome I : Fondements*. EDP Sciences, 1999.

[104] L. NÉEL : Anisotropie magnétique superficielle et surstructures d'orientation. *Journal de Physique et le Radium*, 15, p. 225, 1954.

[105] W. B. ZEPER, F. J. A. M. GREIDANUS, P. F. CARCIA et al. : Perpendicular magnetic anisotropy and magneto-optical kerr effect of vapor-deposited Co/Pt-layered structures. *Journal of Applied Physics*, 65, p. 4971, 1989.

[106] F. J. A. den BROEDER, H. C. DONKERSLOOT, H. J. G. DRAAISMA et al. : Magnetic properties and structure of Pd/Co and Pd/Fe multilayers. *Journal of Applied Physics*, 61, p. 4317, 1987.

[107] Y. DING, J. H. JUDY et J.-P. WANG : $[CoFe/Pt]_{xn}$ multilayer films with a small perpendicular magnetic anisotropy. *Journal of Applied Physics*, 97, p. 10J117, 2005.

[108] S. IWASAKI : Perpendicular magnetic recording. *IEEE Transactions on Magnetics*, 16, p. 71, 1980.

[109] S. N. PIRAMANAYAGAM : Perpendicular recording media for hard disk drives. *Journal of Applied Physics*, 102, p. 011301, 2007.

[110] T. SEKI, T. SHIMA, K. TAKANASHI et al. : $L1_0$ ordering of off-stoichiometric FePt (001) thin films at reduced temperature. *Applied Physics Letters*, 82, p. 2461, 2003.

[111] P. HANSEN, C. CLAUSEN, G. MUCH et al. : Magnetic and magneto-optical properties of rare-earth transition-metal alloys containing Gd, Tb, Fe, Co. *Journal of Applied Physics*, 66, p. 756, 1989.

[112] S. MANGIN, D. RAVELOSONA, J. A. KATINE et al. : Current-induced magnetization reversal in nanopillars with perpendicular anisotropy. *Nature Materials*, 5, p. 210, 2006.

[113] N. NISHIMURA, T. HIRAI, A. KOGANEI et al. : Magnetic tunnel junction device with perpendicular magnetization films for high-density magnetic random access memory. *Journal of Applied Physics*, 91, p. 5246, 2002.

[114] M. NAKAYAMA, T. KAI, N. SHIMOMURA et al. : Spin transfer switching in TbCoFe/CoFeB/MgO/CoFeB/TbCoFe magnetic tunnel junctions with perpendicular magnetic anisotropy. *Journal of Applied Physics*, 103, p. 07A710, 2008. Proceedings of the 52nd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials.

[115] H. OHMORI, T. HATORI et S. NAKAGAWA : Perpendicular magnetic tunnel junction with tunneling magnetoresistance ratio of 64% using MgO (100) barrier layer prepared at room temperature. *Journal of Applied Physics*, 103, p. 07A911, 2008.

[116] K. NISHIYAMA, T. NAGASE, M. NAKAYAMA et al. : Large tunnel magnetoresistance of over 200% in MgO-based tunnel junction with perpendicular magnetic anisotropy. *In 11th Joint MMM-Intermag Conference*, 2010.

[117] S. IKEDA, K. MIURA, H. YAMAMOTO et al. : A perpendicular-anisotropy CoFeB-MgO magnetic tunnel junction. *Nature Materials*, 9, p. 721, 2010.

[118] M. GOTTWALD : *Exchange coupling and domain wall formation in bilayer systems with perpendicular anisotropy*. Mémoire de D.E.A., Université Henri Poincaré - Nancy I, 2008.

[119] M. GRADHAND, C. HEILIGER, P. ZAHN et al. : Tunneling magnetoresistance with amorphous electrodes. *Physical Review B*, 77, p. 134403, 2008.

[120] K. YAKUSHIJI, K. NOMA, T. SARUYA et al. : High magnetoresistance ratio and low resistance–area product in magnetic tunnel junctions with perpendicularly magnetized electrodes. *Applied Physics Express*, 3, p. 053003, 2010.

[121] J. C. DENARDIN, A. L. BRANDL, M. KNOBEL et al. : Thermoremanence and zero-field-cooled/field-cooled magnetization study of $Co_x(SiO_2)_{1-x}$ granular films. *Physical Review B*, 65, p. 064422, 2002.

[122] J. KORECKI, M. PRZYBYLSKI et U. GRADMANN : Thermal variation and spatial distribution of local magnetization in ultrathin Fe(110) films. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 89, p. 325, 1990.

[123] K. WAGNER, N. WEBER, H. J. ELMERS et al. : Magnetization of free Fe(110) surfaces from thin film magnetometry. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 167, p. 21, 1997.

[124] H. X. WEI, Q. H. QIN, Z. C. WEN et al. : Magnetic tunnel junction sensor with Co/Pt perpendicular anisotropy ferromagnetic layer. *Applied Physics Letters*, 94, p. 172902, 2009.

[125] T. WIRTH : *Etude du transport d'électrons polarisés en spin dans les hétéro-structures métal ferromagnétique / semi-conducteur pour l'obtention de nouveaux composants électroniques*. Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique, 2000.

[126] N. ROUGEMAILLE : *Transmission d'électrons chauds, polarisés de spin, dans des jonctions Schottky métal ferromagnétique / semiconducteur*. Thèse de doctorat, École Polytechnique, 2003.

[127] L. NÉEL : Sur un nouveau mode de couplage entre les aimantations de deux couches minces ferromagnétiques. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences*, 255, p. 1676, 1962.

[128] C. TIUSAN, M. HEHN et K. OUNADJELA : Magnetic-roughness-induced magnetostatic interactions in magnetic tunnel junctions. *European Physical Journal B*, 26, p. 431, 2002.

[129] W. L. PRATER, E. L. ALLEN, W.-Y. LEE et al. : Microstructural comparisons of ultrathin Cu films deposited by ion-beam and DC-magnetron sputtering. *Journal of Applied Physics*, 97, p. 093301, 2005.

[130] D. K. FORK, F. A. PONCE, J. C. TRAMONTANA et al. : Epitaxial MgO on Si(001) for Y-Ba-Cu-O thin-film growth by pulsed laser deposition. *Applied Physics Letters*, 58, p. 2294, 1991.

[131] M. NING, Y. Y. MI, C. K. ONG et al. : Growth studies of (220), (200) and (111) oriented MgO films on Si(001) without buffer layer. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 40, p. 3678, 2007.

[132] G. X. MIAO, J. Y. CHANG, M. J. van VEENHUIZEN et al. : Epitaxial growth of MgO and Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions on (100)-Si by molecular beam epitaxy. *Applied Physics Letters*, 93, p. 142511, 2008.

[133] A. KOHN, A. KOVÁCS, T. UHRMANN et al. : Structural and electrical characterization of SiO_2/MgO(001) barriers on Si for a magnetic transistor. *Applied Physics Letters*, 95, p. 042506, 2009.

[134] C. L. CANEDY, X. W. LI et G. XIAO : Extraordinary hall effect in (111) and (100)-orientated Co/Pt superlattices. *Journal of Applied Physics*, 81, p. 5367, 1997.

[135] N. ROUGEMAILLE, D. LAMINE, G. LAMPEL et al. : Injection energy dependence of spin-polarized hot-electron transport through a ferromagnetic metal/oxide/semiconductor junction. *Physical Review B*, 77, p. 094409, 2008.

Résumé

Ce travail porte sur la précession du spin d'électrons chauds polarisés en spin. Celle-ci est induite par le champ d'échange d'une couche mince ferromagnétique dans une structure multicouche. Deux approches ont été testées. La première nécessite des jonctions tunnel magnétiques (JTM) doubles à forte magnéto-résistance tunnel (TMR). Nous avons obtenu des JTM CoFeB/MgO/CoFeB à aimantations planaires avec 130 % de TMR. Une étude du transport tunnel dans ces systèmes a mis en évidence l'impact du désordre structurel des interfaces électrode/barrière sur le transport des électrons. Un travail sur les couches minces d'alliages de TbCo a permis d'élaborer des JTM (i) à anisotropies magnétiques perpendiculaires au plan de la couche et (ii) à anisotropies croisées. Toutes deux présentent une TMR de l'ordre de 60 %. Dans les cas des jonctions à aimantations perpendiculaires, cette TMR est limitée par la non-continuité de la couche de CoFeB supérieure. La seconde approche nécessite d'élaborer des multicouches magnétiques (filtre à spin, vannes de spin) sur des jonctions métal/oxyde/semiconducteur, en vue de mesures de transmission d'électrons chauds. La méthode de dépôt mise au point a permis d'élaborer des structures combinant les propriétés magnétiques, structurelles et électriques nécessaires pour l'étude. Des mesures préliminaires ont mis en évidence un effet de filtre à spin sur une jonction n-Si/MgO/Co.

Mots-clés: Electronique de spin ; Films magnétiques ; Transport des électrons, Théorie du