



Magnétisme et transport polarisé en spin : de la couche mince aux dispositifs à électronique de spin

Michel Hehn

► To cite this version:

Michel Hehn. Magnétisme et transport polarisé en spin : de la couche mince aux dispositifs à électronique de spin. Matière Condensée [cond-mat]. Université Henri Poincaré - Nancy I, 2004. tel-00010062

HAL Id: tel-00010062

<https://theses.hal.science/tel-00010062>

Submitted on 7 Sep 2005

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.

Habilitation à Diriger des Recherches

en Physique et Chimie de la Matière et des Matériaux

Magnétisme et transport polarisé en spin : de la couche mince aux dispositifs à électronique de spin

Michel HEHN
Université Henri Poincaré, Nancy I

Soutenue le 19 Octobre 2004 devant le jury

Claude CHAPPERT
Jean-Pierre NOZIERES
Jean-François BOBO
Albert FERT
Alain SCHUHL

Avant propos

Ce document présente un résumé des activités de recherche que j'ai menées durant ces 10 dernières années. Elles se sont largement focalisées depuis mon embauche au CNRS en Octobre 1998 autour de thématiques qui s'intègrent dans le cadre plus large de **l'électronique de spin**. Ce rapport s'articule autour de 4 chapitres qui synthétisent le travail réalisé dans chaque thématique.

Dans un **premier chapitre**, le magnétisme macroscopique et microscopique de systèmes à dimensions latérales réduites est évoqué. Les propriétés magnétiques de couches minces, de réseaux de plots submicroniques et de structures auto-organisées nanoscopiques de cobalt hexagonal (0001) ont été étudiées à l'échelle macroscopique et microscopique. L'étude des structures d'aimantation a révélé les effets liés au confinement de l'aimantation entraînant une redistribution des domaines et la stabilisation de nouvelles structures magnétiques, ainsi que le rôle des imperfections morphologiques sur les instabilités et singularités des domaines. La stabilisation de domaines à aimantation perpendiculaire sous forme de bulles, bandes ou labyrinthes dans un matériau métallique a ouvert de nouveaux champs d'études. Ces structures ont permis de montrer pour la première fois une résonance de paroi dans un matériau métallique ainsi que d'alimenter le thème controversé de la magnétorésistance de parois. Dans ce même chapitre, dans un registre un peu différent mais toujours dans le domaine des couches minces magnétiques, j'ai rassemblé des résultats récents que nous avons pu obtenir sur l'étude du couplage d'échange entre une couche ferromagnétique et une couche antiferromagnétique. Malgré les nombreux faits rapportés dans la littérature, nous avons montré qu'outre la qualité cristallographique, la rugosité ou la taille de grain, l'histoire magnétique et notamment la chiralité des domaines dans la couche antiferromagnétique peut expliquer des différences importantes dans la constante d'échange interfaciale.

Dans un **second chapitre**, le transport tunnel dans les jonctions magnétiques planaires sera évoqué avec un intérêt tout particulier et novateur pour la corrélation entre distributions d'aimantations dans les électrodes magnétiques et propriétés de transport. Dans cette thématique globale, plusieurs axes de recherche ont été menés de front :

- la mise au point de la croissance de barrières tunnel alternatives de faible hauteur de barrière (inférieure à 1eV).
- le développement de méthodes alternatives d'analyse de jonctions tunnel.
- la corrélation entre structures en domaines et transport tunnel polarisé en spin.
- les jonctions tunnel épitaxiées : effet de structure de bandes et forte magnétorésistance, étude du couplage antiferromagnétique induit par effet tunnel d'électrons polarisés en spin.

Dans un **troisième chapitre**, l'utilisation des propriétés du transport tunnel dans les jonctions magnétiques planaires et l'utilisation de couches minces antiferromagnétiques pour des applications seront exposées. Dans cette thématique globale, plusieurs axes de recherche se dégagent :

- la jonction tunnel magnétorésistive à réponse magnétique hystérétique comme magnétomètre bidimensionnel.
- la bicouche couche antiferromagnétique/couche ferromagnétique comme système sensible pour la détection de champs magnétiques.
- la configuration d'aimantations croisées avec une aimantation perpendiculaire au plan des couches d'une jonction tunnel comme élément sensible et linéaire à la détection de forts champs magnétiques.

Dans un **quatrième chapitre**, le transport électronique dépendant du spin dans des structures métalliques à barrières multiples sera plus largement présenté. L'intérêt fondamental de ces multicouches hybrides est l'étude du comportement des électrons chauds lors de la traversée du dispositif. Cette activité a été développée tant du point de vue expérimental que théorique sur la base d'une modélisation du transport tunnel polarisé en spin dans l'approche des électrons libres. En guise de conclusion du chapitre, un dispositif est proposé comme projet de recherche à court terme combinant toute l'expertise acquise dans les chapitres 2, 3 et 4.

Enfin, j'ai rassemblé à la suite de la conclusion de ce document mon curriculum vitae, ainsi que les responsabilités scientifiques (encadrement de travaux de recherches, jury de thèse), les actions de valorisation (brevets, organisation de réunions, prix), les productions scientifiques et une sélection d'articles.

Chapitre 1

La couche mince : magnétisme et mésostructures

pages

1	De l'aimantation planaire à l'aimantation perpendiculaire : exemple de films minces de cobalt	2
2	De la couche continue au réseau de plots : exemple de réseaux de plots de cobalt	3
3	Du réseau de plots organisé à l'auto-organisation d'îlots	6
4	De la couche unique à l'association ferromagnétique/antiferromagnétique : exemple du système IrMn/Co et IrMn/Py	8
5	Conclusion du chapitre 1	11

Chapitre 2

La jonction tunnel : magnétisme et transport tunnel polarisé en spin

1	Une nouvelle méthode d'élaboration des jonctions tunnel	14
2	De nouveaux matériaux pour les jonctions tunnel	15
2.1	<i>La barrière d'alumine</i>	15
2.2	<i>La barrière d'oxyde de tantale</i>	17
2.3	<i>La barrière d'oxyde de magnésium</i>	19
2.3.1	Les jonctions Fe/MgO/Fe épitaxiées	19
2.3.2	Les jonctions Co/MgO/Co déposées par pulvérisation cathodique	22
2.4	<i>Conclusion</i>	24
3	Les couplages magnétiques dans les jonctions tunnel	25
3.1	<i>Couplage ferromagnétique direct</i>	25
3.2	<i>Couplage par effet tunnel</i>	25
3.3	<i>Les couplages magnétostatiques</i>	25

4	Couplage ferromagnétique de type ‘peau d’orange’ et duplication de domaines magnétiques	27
5	Couplage antiferromagnétique par effet tunnel	34
6	Couplage ferromagnétique et fluctuations d’aimantation	36
7	Conclusion du chapitre 2	42

Chapitre 3

La jonction tunnel : application aux capteurs de champ magnétique

1	Capteur bas champ utilisant les propriétés hystérétiques des matériaux magnétiques	44
2	Propriétés réversibles et capteur mi et haut champ	48
2.1	<i>Une bicouche antiferromagnétique/ferromagnétique comme couche sensible</i>	49
2.1.1	Principe de fonctionnement	49
2.1.2	Sensibilité magnétique en fonction des paramètres de la bicouche F/AF	50
2.1.3	Linéarité et réversibilité	51
2.1.4	Sensibilités électrique et magnétique en fonction de la température	52
2.2	<i>Une configuration d’aimantation croisée avec une couche à aimantation perpendiculaire</i>	54
2.2.1	Principe de fonctionnement	54
2.2.2	Propriétés magnétiques	55
2.2.3	Résultats expérimentaux	57
3	Conclusions du chapitre 3	58

Chapitre 4

Vers une électronique de spin

1	Transport tunnel dans une jonction tunnel unique	60
2	Transport tunnel d'électrons chauds : théorie	62
2.1	<i>Introduction</i>	62
2.2	<i>Modélisation du transport d'électrons chauds polarisés en spin</i>	64
2.3	<i>Nécessité des 3 couches magnétiques ?</i>	67
3	Transport tunnel d'électrons chauds : expérience	68
4	Configuration d'aimantations tridimensionnelle : la spin diode	70
4.1	<i>Principe de fonctionnement</i>	70
4.2	<i>Réalisation expérimentale</i>	72

Conclusion

Chapitre 1

La couche mince : magnétisme et mésostructures

Cette première partie de mon activité de recherche s'intègre dans le cadre plus large des effets induits par la réduction des dimensions latérales d'un matériau, lorsqu'elles deviennent de l'ordre de grandeur des longueurs caractéristiques. En micromagnétisme, ces longueurs sont par exemple la dimension intrinsèque des domaines (100 nm à 10 μ m), la largeur de paroi (5 à 100 nm) ou la longueur d'échange (quelques nm). A ces dimensions, les phénomènes attendus sont à la fois excitants du point de vue fondamental (jusqu'à l'étude des effets quantiques macroscopiques) et riches d'applications potentielles, en particulier pour l'enregistrement magnétique du futur.

Dans ce même chapitre, dans un registre un peu différent mais toujours dans le domaine des couches minces magnétiques, j'ai rassemblé des résultats récents que nous avons pu obtenir sur l'étude du couplage d'échange entre une couche ferromagnétique et une couche antiferromagnétique. Cette étude trouve sa place dans ce chapitre car c'est une étude de magnétisme sans utilisation du transport tunnel et il y a une forte dépendance du magnétisme avec la qualité structurale des couches déposées. Malgré les nombreux faits rapportés dans la littérature, nous avons montré qu'outre la qualité cristallographique, la rugosité ou la taille de grain, l'histoire magnétique et notamment la chiralité des domaines dans la couche antiferromagnétique peut expliquer des différences d'un facteur 2 dans la constante de couplage d'échange lorsque la couche ferromagnétique est déposée sur la couche antiferromagnétique au lieu de l'inverse.

1 De l'aimantation planaire à l'aimantation perpendiculaire : exemple de films minces de cobalt

Mon travail de thèse, intitulé « *Elaboration, étude des propriétés structurales et magnétiques de couches et réseaux de plots submicroniques à base de cobalt* », a été réalisé à l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg sous la direction de K. Ounadjela. Il repose sur l'utilisation d'une couche fine de cobalt dont l'épaisseur varie entre 10 et 500 nm et dont la structure cristalline a été judicieusement choisie. J'ai optimisé la croissance du cobalt dans sa phase hexagonale avec son axe sénéaire parallèle à la direction de croissance, étape clef dans cette étude car c'est dans cette phase que le cobalt présente une anisotropie magnétocristalline suffisante pour orienter l'aimantation perpendiculairement à la couche.

C'est uniquement dans cette géométrie, c'est-à-dire avec l'aimantation perpendiculaire au plan de la couche, qu'il est possible de contrôler la distribution d'aimantations par l'arrangement des domaines magnétiques et donc d'étudier soit leur évolution lorsqu'ils sont soumis à une perturbation (température, champ magnétique, réduction de taille latérale), soit leurs propriétés intrinsèques (« magnétorésistance » liée à la présence de parois, résonance de parois).

Les résultats les plus marquants avant nanostructuration sont reportés dans la suite. Un article plus complet a été joint à ce manuscrit (numéro 1).

- Mise en évidence de la réorientation de l'aimantation du plan vers la perpendiculaire à la couche au-delà d'une épaisseur critique, $h_c=25\text{ nm}^1$.
- Mise en évidence, au delà de h_c , de structures en domaines composées de bulles, de bandes ou de labyrinthes selon l'histoire magnétique (figure 1.1) avec des tailles de domaines pouvant atteindre 50 nm, 20 à 200 fois plus petites que celles des domaines traditionnels visualisés dans les grenats. L'utilisation des théories développées pour les grenats m'a permis de modéliser leur comportement (prédiction des caractéristiques des cycles d'aimantation) mais surtout de déterminer la différence dans les comportements des deux matériaux².
- Mise en évidence des instabilités et irréversibilités induites par un champ magnétique sur la structure en domaines³. Mise à profit de cette étude afin de mieux comprendre les cycles d'aimantation.



figure 1.1 : images MFM prises en l'absence de champ magnétique sur une couche de 500 nm d'épaisseur. Les différentes images correspondent à un état démagnétisé parallèle (a) et perpendiculaire (b) et à un état rémanent perpendiculaire (c). La taille des images est égale à $5\text{ }\mu\text{m} \times 5\text{ }\mu\text{m}$. Les contrastes noir et blanc correspondent à des domaines d'aimantation alternée.

¹ M. Hehn, S. Padovani, K. Ounadjela et J.-P. Bucher, Phys. Rev. B **54**, 3428 (1996).

² M. Hehn, K. Cherifi, K. Ounadjela, J.-P. Bucher et J. Arabski, J. Mag. Mag. Mat. **165**, 520 (1997).

³ M. Demand, M. Hehn, S. Padovani, J. P. Bucher, K. Ounadjela, J. of Mag. Mag. Mat. **247**, 147 (2002).

- En collaboration avec J. Gregg du Clarendon Laboratory (Oxford), contribution à l'étude de la magnétorésistance « géante » dans un composant unique liée à la diffusion des électrons à travers les parois⁴. La configuration magnétique d'une structure en domaines sous forme de bandes est analogue à celle rencontrée dans une vanne de spin. La seule différence réside dans la nature de la couche séparatrice des deux couches magnétiques couplées antiferromagnétiquement.
- Mise en évidence des premières résonances de parois dans un matériau métallique. La régularité spatiale de cette structure offre un système modèle pour l'étude de résonance de parois lorsqu'elle est soumise à un champ magnétique hyperfréquence.

2 De la couche continue au réseau de plots : exemple de réseaux de plots de cobalt

Une étape supplémentaire et déterminante a été franchie en réduisant la taille latérale de la couche. Pour cela, j'ai utilisé la lithographie de rayons X et la gravure ionique sèche. La lithographie de rayons X a été réalisée en collaboration avec F. Rousseaux et D. Decanini du L2M (Bagneux) et la gravure ionique sèche a été réalisée en collaboration avec C. Chappert et B. Bartenlian de l'IEF (Orsay). Elles m'ont permis d'obtenir un réseau carré de surface $5 \times 5 \text{ mm}^2$ de plots carrés de $0.5 \text{ }\mu\text{m}$ de côté séparés de $0.5 \text{ }\mu\text{m}$ à partir des couches de cobalt. Même si la réorientation de l'aimantation en fonction de l'épaisseur est conservée pour des couches et plots d'épaisseurs comparables, la nanostructuration perturbe fortement la structure en domaines et le processus de nucléation⁵. Les résultats les plus marquants après nanostructuration sont reportés dans la suite. Un article plus complet a été joint à ce manuscrit (numéro 2).

- Mise en évidence des effets de contraintes sur la structure en domaines. En effet, la structure de domaines en bandes obtenue pour une couche continue persiste pour les plots d'épaisseur égale à 50 nm (figure 1.2a). Cependant la direction des bandes n'est plus parallèle au champ appliqué avant la mesure et un enroulement des domaines aux bords des plots apparaît. Cet effet est accentué dans le cas de plots de 25 nm d'épaisseur où les domaines ont la forme de spirales ou de cylindres concentriques (figure 1.2b). Lorsque l'épaisseur du plot augmente (150 nm), les extensions du domaine et du plot deviennent comparables. Les domaines ressemblent alors à des haltères dont l'orientation n'est plus parallèle à la direction du champ appliqué avant la mesure dans le plan du réseau (figure 1.2c).
- Un certain nombre de résultats marquants ont été observés dans la structure stabilisée sous forme de cylindres concentriques : (i) l'application de pressions magnétiques sur les parois des domaines a pour effet d'annihiler la structure contrainte par les bords des plots⁶. L'origine de cet effet, visualisé par des sauts d'aimantation dans la courbe de première aimantation, est liée à la disparition brutale du vortex central de la structure, (ii) l'aspect de forme du réseau de plots de 25 nm d'épaisseur, égal au rapport entre la hauteur et la largeur des plots, s'est avéré être idéal pour étudier la réorientation de l'aimantation dans chaque

⁴ J. F. Gregg, W. Allen, K. Ounadjela, M. Viret, M. Hehn, S. M. Thompson et J. M. D. Coey, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1580 (1996).

⁵ M. Hehn, K. Ounadjela, J.-P. Bucher, F. Rousseaux, D. Decanini, B. Bartenlian et C. Chappert, *Science* **272**, 1782 (1996).

⁶ K. Ounadjela, M. Hehn et R. Ferré, *NATO ASI Series E*, Vol. **338**, 485 (1997).

domaine en fonction de la température. Nous avons notamment montré que l'aimantation passe d'un état canté à température ambiante vers un état perpendiculaire à 10K⁷.

Ces derniers résultats ont en particulier contribué à faire émerger la notion de « nanostructure cohérente de spin », où la « nanostructure » n'est plus la structure gravée, mais plutôt la configuration en domaines qu'elle impose et que l'on peut étudier et faire évoluer comme une entité cohérente.

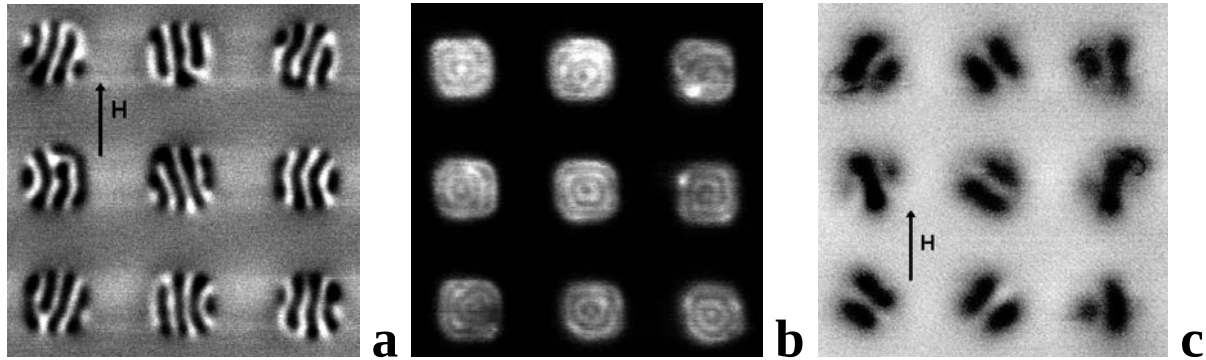


figure 1.2 : Structure en domaines magnétiques dans des réseaux de plots dont la taille latérale, égale à 500nm, est inchangée, mais dont la hauteur varie de 25 nanomètres pour les plus fins (b) à 150 nanomètres (c) pour les plus épais en passant par une épaisseur intermédiaire de 50 nm (a). Les dimensions de chaque photographie sont $3\mu\text{m} \times 3\mu\text{m}$. On observe très clairement une différence caractéristique de la morphologie des domaines magnétiques ainsi que de leurs tailles latérales avec la hauteur des plots. Les contrastes sombres et clairs sont caractéristiques de régions dont l'aimantation est orientée antiparallèlement.

Dans le cadre de la thèse de Marc Demand, la taille latérale de la couche a été réduite à 0.2 μm pour accentuer le degré de confinement des domaines magnétiques. A partir des mêmes couches de cobalt, des réseaux de plots cylindriques de surface égale à $4 \times 4 \text{ mm}^2$ ont été fabriqués par lithographie électronique et gravure ionique sèche. La lithographie électronique a été réalisée par E. Cambril au L2M (Bagnex). Ces plots ont une taille latérale de 0.2 μm et une périodicité de 0.4 μm (figure 1.3) avec une épaisseur de cobalt (e_{Co}) comprise entre 10 et 35 nm. Cette gamme d'épaisseur permet d'étudier à la fois des réseaux de plots dans lesquels l'aimantation est planaire ($e_{\text{Co}} < 20 \text{ nm}$) mais aussi des plots possédant une aimantation perpendiculaire au plan du substrat ($e_{\text{Co}} > 25 \text{ nm}$). Nous avons étudié par MFM leur structure en domaines en fonction de leur histoire magnétique et de leur épaisseur⁸.

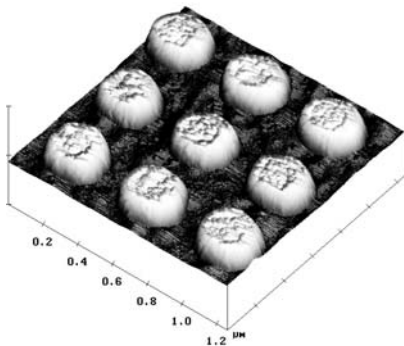


Figure 1.3 : Image AFM de la topographie des plots réalisés par lithographie électronique et gravure ionique pour $e_{\text{Co}} = 15 \text{ nm}$.

⁷ M. Hehn, K. Ounadjela, R. Ferré, W. Grange et F. Rousseaux, Appl. Phys. Lett. **71**, 2833 (1997).

⁸ M. Demand, M. Hehn, K. Ounadjela, R. L. Stamps, E. Cambril, A. Cornette, F. Rousseaux, J. of Appl. Physics **87**, 5111(2000).

Les plots les plus fins ($e_{Co}=10$ nm) présentent majoritairement une structure monodomaine pour laquelle l'aimantation est dans le plan, tandis que pour $e_{Co}=15$ nm, la structure en domaines la plus favorable est une structure en vortex. En effet, lorsque e_{Co} passe de 10 à 15 nm, la proportion de plots monodomaines varie de 3/4 à 1/2 alors que celle de plots contenant un vortex varie de 1/4 à 1/2. La coexistence de ces deux structures en domaines pour des plots identiques se révèle être assez surprenante. Lorsque l'épaisseur de cobalt augmente jusqu'à 35 nm, les plots présentent des structures multidomaines à 2, 3 ou 4 domaines dans lesquels l'aimantation est perpendiculaire au plan du substrat ($e_{Co}>25$ nm), ou inclinée, c'est-à-dire possédant à la fois une composante planaire et une composante perpendiculaire de l'aimantation (pour $15\text{ nm}<e_{Co}<25\text{ nm}$). Le nombre de domaines par plot augmente avec l'épaisseur et dépend de l'histoire magnétique de l'échantillon. Nous avons calculé à l'aide de modèles existants⁹ les énergies des différentes structures en domaines pour connaître les configurations les plus favorables, à la fois pour une aimantation orientée dans le plan et pour une aimantation inclinée ou perpendiculaire au plan du substrat. Les résultats obtenus corroborent nos observations expérimentales.

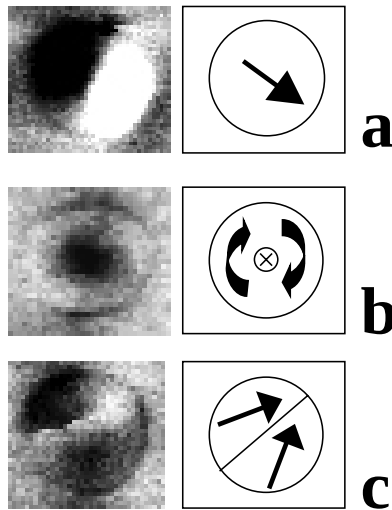


Figure 1.4 : gauche : images MFM prises sur des plots de 10 et 15 nm d'épaisseur ; droite : dessins de la configuration d'aimantation correspondante. On trouve des configurations monodomaines (a), vortex (b) et deux domaines (c).

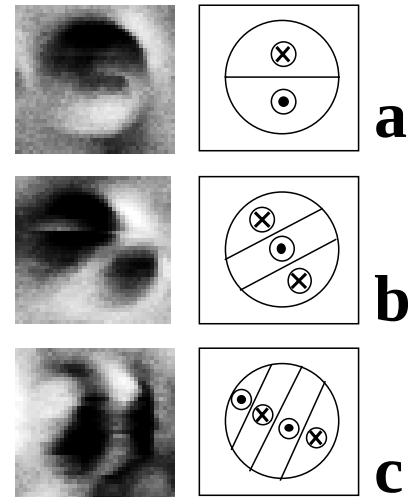


Figure 1.5 : gauche : images MFM prises sur des plots de 30 et 35 nm d'épaisseur ; droite : dessins de la configuration d'aimantation correspondante. On trouve des configurations à 2 domaines (a), 3 domaines (b) et 4 domaines (c).

En effet, nous avons utilisé des modèles micromagnétiques existants pour établir un diagramme de phase pour des plots de $0.2\text{ }\mu\text{m}$ de diamètre (figure 1.6). Ce dernier montre que les changements de structures en domaines en fonction de l'épaisseur des plots sont logiques et proviennent de la compétition entre les différents termes d'énergie nécessaires à la description de ces systèmes.

⁹ R. Rhodes et G. Rowlands, Proc. Leeds Phil. Soc. **6**, 191 (1960) ; J. Miltat, « Applied Magnetism », pp. 221-308, R. Gerber, C. D. Wright, G. Asti Editors, KLUWER press (1994).

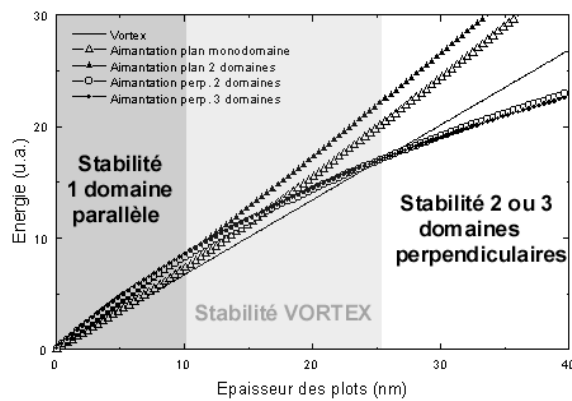


Figure 1.6 : énergie des différentes configurations d'aimantation en fonction de l'épaisseur des plots de diamètre égal à $0.2 \mu\text{m}$. On constate bien un bon accord avec les résultats expérimentaux. Il est intéressant de voir qu'aux faibles épaisseurs, le vortex et la structure monodomaine à aimantation planaire ont des énergies quasi égales.

3 Du réseau de plots organisé à l'auto-organisation d'îlots

L'objectif de ces travaux, toujours dans le cadre de la thèse de Marc Demand, réside dans la mise au point d'une méthode permettant la fabrication directe de nanostructures de cobalt sur un substrat par simple dépôt épitaxial en s'affranchissant des lourdes étapes technologiques. Pour cela, nous avons utilisé les possibilités de croissance épitaxiale d'amas de métaux de transition directement sur un substrat isolant par le jeu des différences de tensions de surface¹⁰. Nous avons étudié et optimisé les conditions de croissance d'une couche tampon fine de ruthénium sur un substrat de mica dans le but d'obtenir une morphologie en îlots. Cette dernière permet d'initier une croissance hexagonale compacte (0001) du cobalt sous forme d'îlots dans des structures classiques du type Mica/Ru/Co/Ru. En faisant varier l'épaisseur nominale de ruthénium déposée sur le mica, diverses morphologies ont pu être stabilisées¹¹ (figure 1.7). La morphologie la plus accidentée (d'îlots non connectés de hauteur maximale) a été obtenue pour une couche fine de ruthénium de 4 nm d'épaisseur et cette dernière a été utilisée pour initier la croissance du cobalt. La seconde étape de la croissance consiste à déposer le cobalt qui, suivant la morphologie du ruthénium, croît sous forme d'îlots. Pour de faibles épaisseurs nominales de cobalt ($<15 \text{ nm}$), la microscopie à force atomique (AFM) montre que le cobalt forme des assemblées de particules indépendantes. Nous avons montré que la forme et les dimensions de ces îlots de cobalt évoluent en fonction de l'épaisseur nominale de cobalt déposé et que la topographie de la surface reste inchangée dans trois gammes d'épaisseurs bien définies. Lorsque l'épaisseur nominale de cobalt est inférieure à 15 nm, les îlots de cobalt sont dispersés sur la surface. Lorsque l'épaisseur nominale de cobalt est supérieure à 15 nm, les îlots se connectent faisant apparaître une couche continue de cobalt dont la topographie est très accidentée. Pour des dépôts épais de cobalt (jusqu'à 100 nm), on observe des topographies très accidentées et variées telles que des couches de cobalt surplombées d'amas ou percées de trous.

¹⁰ C. T. Campbell, Surf. Sci. Reports **27**, 1 (1997).

¹¹ M. Demand, M. Hehn, S. Cherifi, K. Cherifi, K. Ounadjela, IEEE Trans. Magn. Mater. **34**, 1084 (1998).

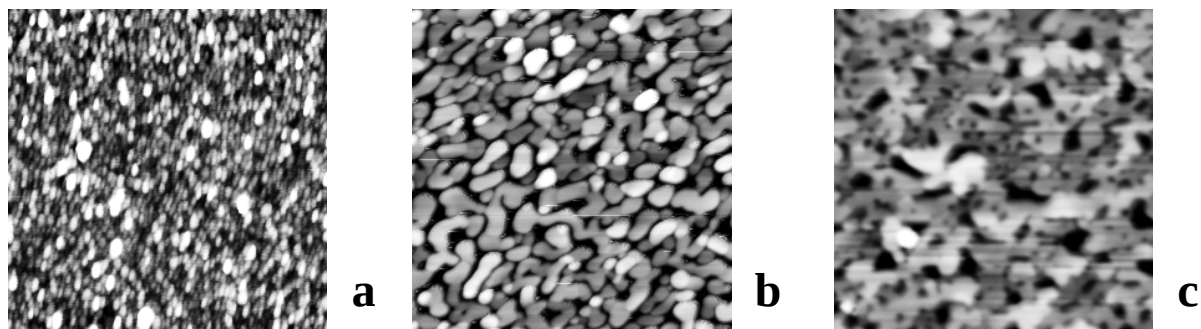


Figure 1.7 : Image AFM de la topographie du ruthénium en fonction de son épaisseur. Epaisseurs de ruthénium égales à 2nm (a), 4nm (b) et 7nm (c). Taille des images égale à $1 \times 1 \mu\text{m}^2$.

Pour chaque gamme d'épaisseurs, les couches de cobalt possèdent des propriétés magnétiques spécifiques qui sont dictées par la géométrie de ces systèmes. Par des mesures de couple magnétique, nous nous sommes plus particulièrement attachés à l'étude du comportement de l'axe facile d'anisotropie en fonction de l'épaisseur nominale de cobalt déposé et de la température. Ainsi, pour des épaisseurs nominales de cobalt comprises entre 9 et 15 nm, nous avons pu mettre en évidence une réorientation de l'axe facile d'aimantation qui est dans le plan de la couche à température ambiante et qui se réoriente perpendiculairement à celle-ci lorsque la température est abaissée jusqu'à 25K. Au niveau microscopique, une corrélation directe entre topographie (mesurée par AFM) et structure en domaines (mesurée par MFM) a montré les effets de la forme des amas et notamment de leur facteur de forme (rapport entre hauteur et largeur des amas) sur la structure en domaines.

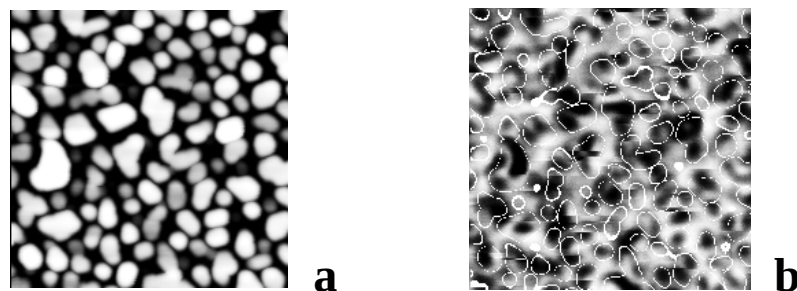


Figure 1.8 : Image AFM (a) et image MFM sur laquelle ont été superposés les contours de la topographie des îlots (b) pour un échantillon d'épaisseur nominale de Co égale à 11.4nm. Taille des images de $2 \times 2 \mu\text{m}^2$.

L'étude des propriétés magnétiques des couches rugueuses de cobalt (>15nm) nous a permis de mettre en évidence l'influence des défauts sur les propriétés macroscopiques (cycles d'aimantation) mais aussi microscopiques (structure en domaines) de films de cobalt de faible rugosité de surface¹². Les observations par microscopie à force magnétique (MFM) ont montré que, localement, la structure en domaines sous forme de bandes parallèles est très perturbée par le caractère rugueux des films. Les amas de cobalt sur la surface induisent des

¹² M. Hehn, S. Padovani, K. Ounadjela et J.-P. Bucher, Phys. Rev. B **54**, 3428 (1996).

instabilités de la structure en domaines¹³ (figure 1.9). Ces instabilités ont été étudiées et reproduites par des simulations numériques en collaboration avec le groupe de R. L. Stamps (University of Western Australia, Australie).

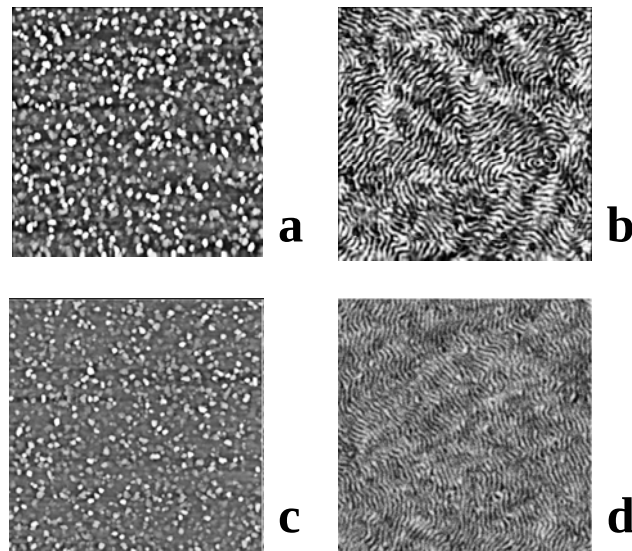


Figure 1.9 : Images AFM et MFM réalisées simultanément sur la même zone pour des couches d'épaisseurs nominales de Co égales à 20 nm(a,b) et 28nm(c,d). Taille des images $5 \times 5 \mu\text{m}^2$. Lorsque la densité de défauts diminue, le labyrinthe se transforme en bandes.

Ce travail s'est révélé très complémentaire de celui réalisé sur les réseaux de plots lithographiés. En effet, en augmentant l'épaisseur de la couche, le comportement magnétique passe d'un régime d'entités magnétiques isolées soit monodomaines à aimantation planaire soit multidomaines à aimantation perpendiculaire (figure 1.8b) à un régime de couche continue dont la structure en domaines est perturbée par la présence d'îlots ou de trous (figure 1.9b). C'est ainsi qu'a été mis en évidence le rôle des imperfections morphologiques locales sur les instabilités et singularités des domaines magnétiques à aimantation perpendiculaire. L'étude des propriétés de transport de ces structures s'est révélée fort intéressante puisqu'elle a montré la présence d'une anisotropie induite planaire.

4 De la couche unique à l'association ferromagnétique/antiferromagnétique : exemple du système IrMn/Co et IrMn/Py

Texture cristallographique, taille de grains, rugosité d'interface sont autant de paramètres régulièrement évoqués pour expliquer l'évolution du champ d'échange avec l'épaisseur des couches dans une bicouche ferromagnétique/antiferromagnétique. Nous avons montré que dans les échantillons élaborés au LPM, la qualité structurale de l'IrMn ne dépend pas de son épaisseur et pourtant une évolution du champ d'échange est observée. Cette dernière ne peut alors s'expliquer que par l'intervention d'une structure en domaines dans la couche d'IrMn. Ce système apparaît comme modèle pour aller sonder l'influence des propriétés magnétiques de l'IrMn sur le champ d'échange qu'il induit sur une couche ferromagnétique attenante.

¹³ J. V. Kim, M. Demand, M. Hehn, K. Ounadjela, R. L. Stamps, Phys. Rev. B **62**, 6467 (2000).

Depuis sa découverte par W. H. Meiklejohn et C. P. Bean, le phénomène de champ d'échange exercé par un matériau antiferromagnétique (AF) sur un matériau ferromagnétique (FM) dans une bicouche AF/FM est sujet à d'importants développements théoriques et expérimentaux. Cependant, à l'heure actuelle, aucune théorie n'arrive à prédire quantitativement cet effet et à donner une description complète du phénomène. Ce dernier est tout de même déjà très utilisé pour réaliser des couches magnétiques de référence dans des dispositifs à électronique de spin tels que les têtes de lecture magnétorésistives. Pour expliquer les larges variations du champ d'échange pour un matériau donné selon les techniques et procédures d'élaboration, les variations de texture cristallographique, taille de grains, rugosité d'interface sont régulièrement évoquées. Pourtant, dans la littérature, un fait universel semble très largement se dégager : la constante d'échange qui apparaît à une interface substrat/AF/FM est toujours supérieure à celle qui apparaît à une interface substrat/FM/AF. En d'autres termes, la constante d'échange à l'interface entre un matériau FM et un matériau AF est généralement plus grande lorsque le FM est déposé sur l'AF. Dans notre étude, nous avons montré que ce fait est indépendant des variations de texture cristallographique, taille de grains, rugosité d'interface mais qu'une origine magnétique doit être considérée¹⁴.

Dans cette étude, les multicouches ont été déposées par pulvérisation cathodique sur des substrats de verre à partir de cibles composées de Ir₂₀Mn₈₀ (IrMn), Fe₂₀Ni₈₀ (Py), Pt et Ta. Dans un premier temps, des bicouches Verre/Ta/Py₁₀/IrMn_x/Ta et des tricouches Verre/Ta/Py₁₀/IrMn_x/Py₅/Ta ont été élaborées et étudiées (les épaisseurs des différentes couches sont données en indice et en nanomètres). Après dépôt, ces échantillons sont recuits sous champ (300 Oe) à 200°C durant 30 minutes.

La structure et la microstructure ont été étudiées par O. Lenoble et S. Robert du LPM par diffraction de rayons X avec une combinaison de mesures en géométrie $\theta/2\theta$ classique et en incidence rasante. Ces mesures ont été complétées par une étude aux petits angles.

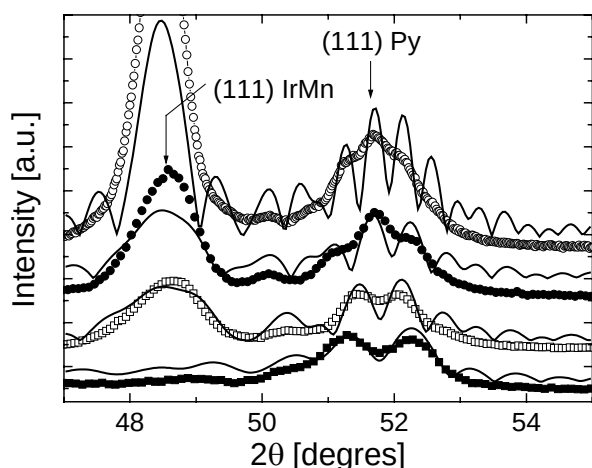


Figure 1.10 : spectres de diffraction de rayons X dans la géométrie $\theta/2\theta$ pour des tricouches Verre/Ta/Py₁₀/IrMn_x/Py₅/Ta avec $x=2.5$ (■), 10 (□), 12.5 (●) et 20 (○) nm.

L'étude menée aux petits angles nous permet d'affirmer que les épaisseurs des différentes couches sont en accord avec les épaisseurs prévues mais surtout que les rugosités des interfaces Py₁₀/IrMn_x et IrMn_x/Py₅ sont égales dans la limite des incertitudes de mesure, à $7 \pm 2 \text{ \AA}$, indépendamment de x . L'étude menée aux grands angles avec une combinaison de mesures en géométrie $\theta/2\theta$ classique et en incidence rasante nous permet d'affirmer que la

¹⁴ G. Malinowski, M. Hehn, S. Robert, O. Lenoble, A. Schuhl, Phys. Rev. B **68**, 184404 (2003).

texture de l'IrMn ne change pas avec x . Cette texture de la tricoche $\text{Py}_{10}/\text{IrMn}_x/\text{Py}_5$ est très bonne comme le montre la figure 1.10. Alors que nous nous attendions à voir apparaître deux pics, l'un pour l'IrMn et l'autre pour le Py (voir positions dans la figure 1.10), plusieurs pics sont observables et leurs nombre et position dépendent de x . Nous avons pu reproduire la position de ces pics en calculant les réflexions multiples des rayons X sur chaque plan atomique de Py et d'IrMn et en considérant que la tricoche se comporte comme une entité cohérente. Cette étude s'est basée sur notre collaboration avec P. Panissod de l'IPCMS, Strasbourg. Les pics additionnels proviennent alors de l'interférence des rayons X. Les décalages des pics d'IrMn, souvent attribués à un effet des contraintes, sont liés à un effet d'interférences. Ici, pour les simulations (traits continus dans la figure 1.10), les paramètres des couches sont maintenus constants et seule l'épaisseur x est modifiée. Ainsi, la taille des grains de l'IrMn ne change pas avec x , les grains s'étendent d'une interface à l'autre.

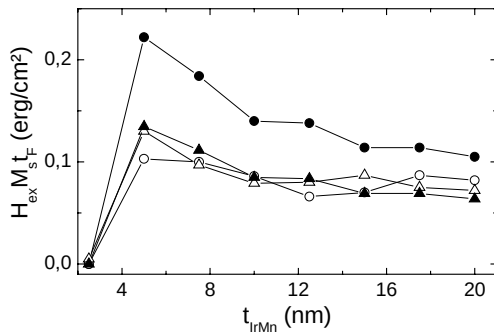


Figure 1.11: variation de l'énergie de couplage avec x pour des bicouches Verre/Ta/ $\text{Py}_{10}/\text{IrMn}_x/\text{Ta}$ (Δ) et pour des tricoches Verre/Ta/ $\text{Py}_{10}/\text{IrMn}_x/\text{Py}_5/\text{Ta}$ pour l'interface Py/IrMn ($\circ$) et l'interface IrMn/Py ($\bullet$). La courbe ($\blacktriangle$) est une normalisation de la courbe ($\bullet$) à la moyenne des courbes ($\circ$) et (Δ).

Le champ d'échange a été mesuré pour chaque interface des bi et tricoches et l'énergie de champ d'échange, $J_{\text{ex}} = H_{\text{ex}} M_s t_F$, est évaluée (figure 1.11). Trois faits sont remarquables : (i) l'énergie décroît lorsque x augmente. Cet effet est souvent attribué à une modification de la structure cristalline de l'AF avec son épaisseur. Cette hypothèse ne peut pas être évoquée ici. Cette variation peut être expliquée par le modèle développé par Malozemoff¹⁵ et qui repose sur une modification du type de paroi; (ii) J_{ex} de l'interface IrMn/Py est bien supérieure à celle de l'interface Py/IrMn. Cette constatation a également été faite sur d'autres échantillons et est indépendante de l'épaisseur des couches de Py. L'universalité évoquée au début du paragraphe est bien observée ; (iii) la dépendance de J_{ex} avec x est la même pour les interfaces Py/IrMn et IrMn/Py comme le montrent les courbes ($\circ$) et (Δ) et la courbe ($\blacktriangle$) qui est une normalisation de la courbe ($\bullet$).

Etant donné que les interfaces Py/IrMn et IrMn/Py sont quasi-identiques d'un point de vue structural et qu'elles possèdent la même dépendance de J_{ex} avec x , l'origine de la différence dans les valeurs de J_{ex} (un facteur 2 pour $x=5\text{nm}$) ne peut être que magnétique. Nous avons complètement exclu un phénomène de couplage magnétique entre les deux couches FM en insérant une fine couche de Pt dans l'IrMn pour réaliser des multicouches Verre/Ta/ $\text{Py}_{10}/\text{IrMn}_x/\text{Pt}/\text{IrMn}_x/\text{Py}_5/\text{Ta}$. L'énergie de champ d'échange est inchangée.

¹⁵ A. P. Malozemoff, Phys. Rev. B **35**, 3679 (1987); Phys. Rev. B **37**, 7673 (1988).

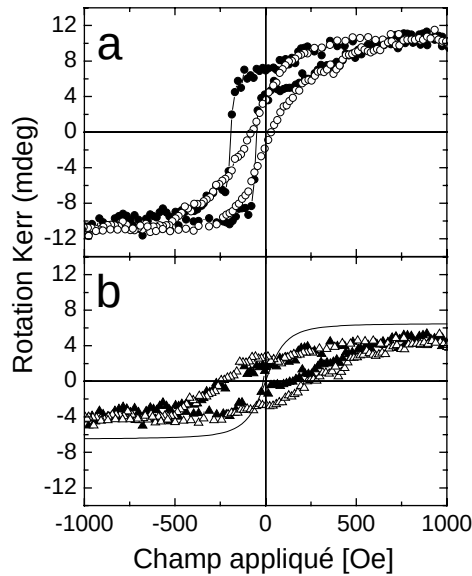


Figure 1.12 : (a) cycles de rotation Kerr d'une des trisouches Verre/Ta/Py₁₀/IrMn₅/Py₅/Ta mesurés avant recuit sous champ, selon l'axe d'échange du Py inférieur (●) et perpendiculairement (○); (b) détermination du cycle du Py₅ selon l'axe d'échange du Py inférieur (▲) et perpendiculairement (△).

Nous avons étudié les états magnétiques des deux couches de Py avant le recuit sous champ (figure 1.12). Il apparaît très clairement qu'ils sont très différents. La couche inférieure de Py₁₀ présente de l'échange et donc un axe d'échange bien défini avant recuit car elle est orientée par le champ du magnétron lors de son dépôt. La couche supérieure de Py₅, quant à elle, possède un cycle symétrique par rapport à zéro, pas d'échange, un large champ de saturation (supérieur à 600 Oe) et une rémanence à peu près égale à 0.5 indépendamment de l'orientation du champ magnétique dans le plan de la couche. Ce type de cycle est caractéristique d'une anisotropie locale aléatoire. Ainsi, au moment de l'initialisation de l'échange lors du recuit sous champ, la distribution des moments de l'AF aux deux interfaces est différente, ce qui peut entraîner l'apparition de parois de chiralités différentes. Malozemoff¹⁶ a montré que, dans ce cas, des valeurs de J_{ex} très différentes pouvaient être obtenues. L'étude de ces chiralités se poursuit actuellement.

5 Conclusion du chapitre 1

Dans une première partie, nous avons élaboré des couches épitaxiées de cobalt d'épaisseur variant de 10 à 500 nm et étudié leurs propriétés structurales et magnétiques. Nous avons optimisé leur croissance pour obtenir du cobalt dans sa phase cristalline hexagonale (0001) car elle présente la plus forte anisotropie magnétocristalline perpendiculaire. Puis, nous avons montré que l'aimantation de ces couches passe d'une configuration en domaines d'aimantation planaire à perpendiculaire lorsque l'épaisseur varie entre 10 et 50 nm. Pour des épaisseurs supérieures à 50 nm, la structure en domaines est alors composée de bulles, de bandes ou d'un labyrinthe selon l'histoire magnétique. La topologie des domaines est indépendante de leur épaisseur tandis que leur largeur varie entre 50 et 200 nm comme la racine carrée de l'épaisseur. Ensuite, nous avons montré que ces couches de cobalt étaient de très bonnes candidates à l'étude de la magnétorésistance et résonance de paroi.

Dans une seconde partie, nous avons élaboré des réseaux de plots de 0.5 μm de côté à partir de ces couches et étudié leurs propriétés structurales et magnétiques. Nous avons montré que la réorientation de l'aimantation en fonction de l'épaisseur est conservée pour les mêmes

¹⁶ A. P. Malozemoff, J. of Appl. Phys. **63**, 3874 (1988).

épaisseurs et que la nanostructuration avait un effet sur la structure en domaines. Pour les plus fortes épaisseurs, la taille des domaines est de l'ordre de grandeur de celle des plots entraînant la contrainte de la composante perpendiculaire d'aimantation. Pour les plots de 25 nm d'épaisseur, la contrainte géométrique de la composante planaire d'aimantation permet de stabiliser une structure vortex en anneaux concentriques. La courbe d'aimantation mesurée sur cet échantillon présente un saut d'aimantation attribué à la disparition de domaines de la structure vortex. Nous avons pu mettre en évidence la réorientation de l'aimantation dans chaque domaine en fonction de la température transformant le vortex en domaines à aimantation perpendiculaire. Pour des plots de 0.2 μm de diamètre, la contrainte des domaines s'accroît avec la stabilisation soit de vortex, soit de structures monodomaines. Un calcul micromagnétique montre que la différence d'énergie entre ces deux états magnétiques est petite ce qui explique d'une part pourquoi les deux états ont été visualisés par MFM sur un même échantillon et, d'autre part, comment la pointe MFM peut engendrer le passage d'un état à l'autre.

Dans une troisième partie, sur la base des travaux réalisés sur des réseaux organisés de plots, la structure en domaines dans des dépôts complexes 'autoorganisés' a pu être comprise et a permis de montrer l'influence des défauts sur les structures en domaines.

Finalement, dans un registre un peu différent mais toujours dans le domaine des couches minces magnétiques, nous avons amené dans la dernière partie des éléments de réponse permettant de comprendre pourquoi dans les multicouches substrat/ferromagnétique/antiferromagnétique/ferromagnétique, le couplage d'échange qui apparaît à l'interface ferromagnétique/antiferromagnétique est toujours inférieur à celui qui apparaît à l'interface antiferromagnétique/ferromagnétique. Malgré les nombreux faits rapportés dans la littérature, nous avons montré qu'outre la qualité cristallographique, la rugosité ou la taille de grain, l'histoire magnétique, la chiralité des domaines dans la couche antiferromagnétique peut expliquer des différences d'un facteur 2 dans la constante de couplage d'échange.

Chapitre 2

La jonction tunnel : magnétisme et transport tunnel polarisé en spin

On sait depuis le milieu des années soixante-dix que les jonctions tunnel métal-isolant-métal utilisant des métaux ferromagnétiques ont potentiellement de remarquables propriétés de magnéto-transport liées à l'effet tunnel polarisé en spin¹: la conductance de tels dispositifs peut en effet dépendre fortement de l'orientation relative des aimantations des deux couches ferromagnétiques. Ce n'est toutefois qu'avec la récente amélioration des techniques d'élaboration qu'il est aujourd'hui possible de fabriquer des jonctions tunnel magnétiques présentant d'importants effets magnétorésistifs à température ambiante.

Tout au long de ces dernières années de recherches dans ce domaine, j'ai été amené lors de mes séjours postdoctoraux et de mes années de service au CNRS à développer ou adapter des méthodes d'élaboration de jonctions tunnel, à étudier de nouvelles barrières isolantes ainsi que les effets des structures en domaines et du couplage dipolaire interélectrode sur le transport tunnel.

Dans un premier temps, j'ai rejoint l'UMR CNRS Thales à Orsay où je me suis occupé d'un sujet de recherche balbutiant sur l'élaboration et l'étude de Jonctions Tunnel Planaires Magnétorésistives (JTM) Co/Al₂O₃/NiFe. Après 8 mois d'acharnement, nous avons mis au point une nouvelle technique d'oxydation qui nous a permis d'obtenir pour la première fois en France un effet tunnel dépendant du spin.

Ensuite, j'ai rejoint l'IPCMS à Strasbourg où, en adaptant cette technique, nous avons très vite obtenu de l'effet tunnel dépendant du spin avec une spécificité applicative : le développement d'une couche dure utilisant un système antiferromagnétique artificiel.

Enfin, j'ai rejoint le LPM à Nancy afin de développer une activité basée sur le transport tunnel polarisé en spin et plus généralement sur l'électronique de spin. Dans ces deux derniers emplois, ma contribution est double : (i) élaborer des jonctions tunnel magnétiques planaires et étudier leurs propriétés fondamentales avec un intérêt tout particulier et novateur pour la corrélation entre distributions d'aimantations dans les électrodes magnétiques et propriétés de transport (chapitre 2); (ii) développer une branche « Capteurs Magnétiques » au projet commun de l'Université (voir chapitre 3) ainsi qu'une nouvelle famille de composants magnétoélectroniques à trois entrées (voir chapitre 4).

¹ M. Jullière, Phys. Lett. **A54**, 225 (1975).

1 Une nouvelle méthode d'élaboration des jonctions tunnel

Historiquement, c'est au sein de l'UMR CNRS Thales que j'ai pu diversifier mon activité de recherche et l'étendre au transport polarisé en spin. Lors de mon arrivée au laboratoire, je me suis occupé d'un sujet de recherche très récent sur l'élaboration et l'étude de Jonctions Tunnel Planaires Magnétorésistives (JTM) Co/Al₂O₃/NiFe. A l'instar des jonctions tunnel comportant des agrégats métalliques dans la barrière, il était manifeste que les JTM présentaient une résistance de jonction trop faible (inférieure à celle des électrodes) et une absence de magnétorésistance.

Très rapidement, nous avons repris cette étude à sa base en lançant un vaste programme d'étude des propriétés structurales des barrières. Il s'est avéré que la source la plus probable de ces déficiences est l'existence de ponts de cobalt entre les deux couches ferromagnétiques. C'est pour cela que, dans le cadre de la thèse de Joachim Nassar, nous avons mis au point une technique originale de fabrication de barrière ne nécessitant pas d'aménagement d'un bâti de pulvérisation standard et conduisant à une oxydation des ponts de cobalt. Elle repose sur la technique développée initialement par Greiner dans les années 70². La fabrication de la barrière se fait par oxydation/pulvérisation à l'aide d'un plasma Ar/O₂ d'une couche métallique déposée sur l'échantillon. Cette technique se singularise par l'utilisation d'un plasma mixte Ar/O₂ au lieu d'un plasma simple composé uniquement d'O₂.

Elle permet d'obtenir des barrières tunnel d'épaisseurs comprises entre 1 et 5nm en modifiant les conditions d'élaboration. A l'aide de cette technique, nous avons obtenu des résultats reproductibles et fort encourageants. En effet, d'une part les deux électrodes sont magnétiquement découplées pour toutes les épaisseurs de barrière et à toutes les températures, et, d'autre part, les jonctions présentent de fortes résistances (qq 10 kOhm à l'ambiante et jusqu'à qq 100 kOhm à 4.2K) avec des magnétorésistances maximales égales à 13% à basse température³ (figure 2.1).

Cette première étude a été le point de départ de l'activité « transport tunnel dépendant du spin dans les jonctions tunnel planaires » de l'UMR CNRS/Thales à Orsay. Depuis, de nombreux travaux de thèse du laboratoire se sont basés sur ces développements qui ont donné lieu à la publication numéro 3.

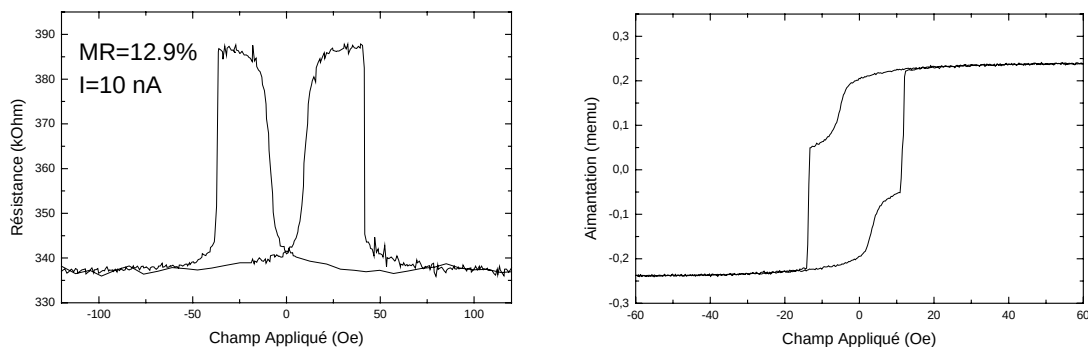


figure 2.1 : courbes de magnétorésistance mesurées à 4.2K sur une Jonction Tunnel Magnétorésistive Co/Al₂O₃/NiFe ainsi que son cycle d'aimantation à température ambiante.

² J. H. Greiner, J. of Appl. Phys. **42**, 5151 (1971).

³ J. Nassar, M. Hehn, A. Vaurès, F. Petroff and A. Fert, Appl. Phys. Lett. **73**, 698 (1998).

2 De nouveaux matériaux pour les jonctions tunnel

Depuis sa découverte à travers des barrières de germanium⁴, le transport tunnel dépendant du spin a été mis en évidence en utilisant d'autres barrières telles que Al_2O_3 ⁵, NiO ⁶, MgO ⁷, HfO_2 ⁸, SrTiO_3 ⁹ etc..... Cependant, dans tous les cas, les hauteurs de la barrière étaient supérieures à 1 eV.

L'étude de jonctions formées autour de barrières de faible hauteur, inférieure à 0.5 eV, présente un double intérêt.

- tout d'abord un intérêt fondamental : il s'agit là de vérifier les prédictions théoriques issues des modèles élaborés pour les barrières hautes. Elles montrent notamment que la magnéto-résistance doit chuter lorsque la hauteur de barrière diminue, que la distribution de courant doit être plus homogène même si la barrière est rugueuse, etc. De plus, comme nous le verrons dans le chapitre 4, l'association de deux jonctions tunnel composées l'une d'une barrière haute et fine et l'autre d'une barrière basse et épaisse est la clef pour étudier le comportement des électrons chauds polarisés en spin dans la matière.

- ensuite un intérêt du point de vue des applications : pour les applications, il convient d'élaborer des jonctions dont la résistance est de l'ordre de 10 k Ω . Pour cela, avec une barrière haute d'environ 2 eV, il faut réduire l'épaisseur de la barrière à environ 7 Å. De plus, pour des épaisseurs aussi fines, les électrodes magnétiques se trouvent en interaction dipolaire très forte ce qui perturbe la réponse magnétique des dispositifs. Pour une résistance de jonction équivalente, l'épaisseur de la barrière peut être multipliée par deux si la hauteur de barrière est réduite. Ainsi, le couplage dipolaire est réduit et la difficulté d'élaboration de jonctions d'épaisseur fine est contournée.

Enfin, jusqu'à présent, seule la barrière d'alumine semble prometteuse pour les applications.

2.1 La barrière d'alumine

Outre les développements réalisés sur la barrière d'alumine à Thales et à l'IPCMS en utilisant la technique présentée dans le paragraphe 1, nous avons choisi de reprendre l'étude de la barrière d'alumine en utilisant une autre technique d'oxydation. La barrière tunnel est obtenue par oxydation, à l'aide d'un plasma DC d'oxygène pur, d'un film d'aluminium préalablement déposé. Cette oxydation se fait dans le sas du bâti, ce qui permet de préserver les cibles de toute contamination par l'oxygène et donc d'éviter une prépulvérisation des cibles après chaque oxydation.

⁴ M. Jullière, Phys. Lett. **54A**, 225 (1975).

⁵ J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong, R. Meservey, Phys. Rev. Lett. **74**, 3273 (1995).

⁶ J. Nowak and J. Rauluszkiwicz, J. Magn. Magn. Mat. **109**, 79 (1992).

⁷ J. S. Moodera and L. R. Kinder, J. Appl. Phys. **79**, 4724 (1996).

⁸ C. L. Platt, B. Dieny, A. E. Berkowitz, J. Appl. Phys. **81**, 5523 (1997).

⁹ J. M. De Teresa, A. Barthélémy, A. Fert, J. P. Contour, R. Lyonnet, F. Montaigne, P. Seneor, A. Vaurès, Phys. Rev. Lett. **82**, 4288 (1999).

Au Laboratoire de Physique des Matériaux, nous avons dans un premier temps étudié des jonctions tunnel d'une architecture simple à cause du nombre limité de matériaux disponibles dans le bâti de pulvérisation cathodique lors du lancement de cette activité (3 cibles seulement). Les jonctions sont composées de deux couches magnétiques de cobalt séparées par une fine couche d'alumine isolante.

Le sous-système de détection analyseur de spin, magnétiquement doux, est constitué d'une couche unique de Co. Cette couche est déposée à basse pression d'argon pour favoriser la formation de très petits grains de diamètre inférieur à 1nm et, à cause de la géométrie du dépôt, présente des propriétés magnétiques anisotropes. Le renversement de son aimantation est régi par la nucléation et la propagation de parois de domaines¹⁰.

Le sous-système magnétique dur polariseur de spin est constitué de la même couche de Co dont les propriétés magnétiques ont été modifiées par l'adjonction d'une seconde couche de Co déposée à plus haute pression d'argon. Le dépôt à haute pression sera référencé dans la suite du texte par un astérisque. Cette dernière couche possède des grains beaucoup plus gros, et ainsi un champ coercitif plus élevé, et présente des propriétés magnétiques isotropes. Par couplage d'échange, l'ensemble Co/Co* présente un champ coercitif plus élevé qu'une couche de Co simple. De plus, le type de renversement est identique à celui d'une couche de Co simple excepté que la propagation des parois est freinée par le couplage d'échange avec la couche de Co*. L'axe d'anisotropie de la couche de Co est également conservé dans la bicouche Co/Co*. Ainsi, nous avons pu obtenir deux couches magnétiques de champs coercitifs suffisamment différents afin de pouvoir stabiliser un arrangement soit parallèle (état de faible résistance), soit anti-parallèle des aimantations (état de forte résistance).

Les films minces constituant les jonctions sont fabriqués par pulvérisation cathodique sur des substrats de verre sur lesquels 18 contacts en or sont préalablement disposés (figure 2.2a). Un ensemble de trois masques est ensuite nécessaire pour définir la géométrie en forme de croix des jonctions avec une mise à l'air des échantillons lors de chaque changement de masque. Dans un premier temps, deux grandes électrodes de cobalt sont déposées au travers du premier masque (figure 2.2b). Ensuite, la barrière tunnel est obtenue par oxydation *in situ*, à l'aide d'un plasma DC d'oxygène, d'un film d'aluminium préalablement déposé au travers d'un second masque (figure 2.2c). Pour finir, le dernier masque permet de définir la contre-électrode de Co/Co* (figure 2.2d). Ces trois masques permettent la fabrication rapide et simultanée de 16 jonctions en géométrie croix. La surface des jonctions ainsi formées est un carré de 200 µm de côté. La recherche menée sur tous les oxydes développés au laboratoire a utilisé cette technique de changement de masques.

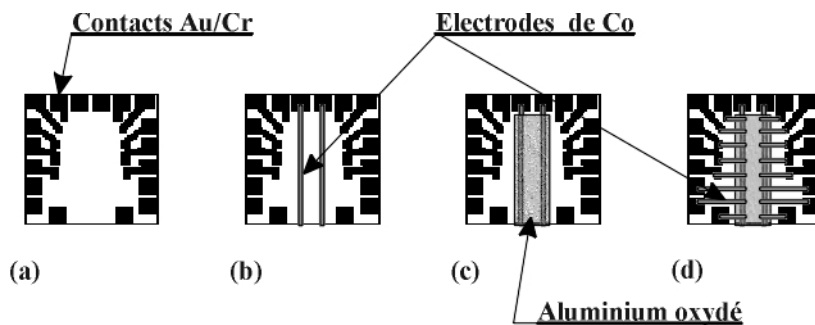


Figure 2.2: Ensemble des différentes étapes nécessaires à l'élaboration des jonctions à l'aide d'un système de changement de masques ex situ.

¹⁰ M. Hehn, O. Lenoble, D. Lacour, C. Féry, M. Piécuch, C. Tiusan and K. Ounadjela, Phys. Rev. B **61**, 11643 (2000).

Les propriétés de magnéto-transport de jonctions du type Verre/Co(10nm)/Al(e_{Al} nm, t_{ox} mn)/Co(5nm)/Co*(20nm) ont été étudiées en fonction de e_{Al} , l'épaisseur d'aluminium déposé avant oxydation, et de t_{ox} , le temps d'oxydation. Comme l'amplitude du signal de magnéto-résistance est connue pour être très sensible à toute sous- ou suroxydation de la couche d'aluminium, une épaisseur d'aluminium optimale est attendue pour un temps d'oxydation donné. Pour notre technique d'oxydation et pour $t_{ox} = 1mn30s$, l'épaisseur optimale est $e_{Al} = 15 \text{ \AA}$ (figure 2.3). Ces jonctions présentent la décroissance bien connue de la magnéto-résistance tunnel avec la tension appliquée aux bornes de la jonction avec une tension caractéristique $|V_{1/2}|$, la tension appliquée pour laquelle le signal de magnéto-résistance est divisé par 2, de 0.3 à 0.4 V (figure 2.4). La théorie de Brinkman¹¹ a été employée pour estimer la hauteur, ϕ , et l'épaisseur, t_{eff} , de barrière effective. Nous n'avons pas pu mettre en évidence une corrélation claire entre ϕ , dont la valeur est comprise entre 1 et 1.5 eV, et t_{ox} , mais les valeurs de t_{eff} estimées à l'aide du modèle sont toujours en bon accord avec e_{Al} . Les jonctions présentant les meilleures propriétés de magnéto-transport ont été mesurées à basses températures allant jusqu'à 4.2K. La résistance de ces jonctions augmente linéairement lorsque la température diminue et sature à basse température à des valeurs doubles de celles mesurées à température ambiante. De la même manière, la magnéto-résistance augmente et atteint 15% pour $e_{Al}=15 \text{ \AA}$.

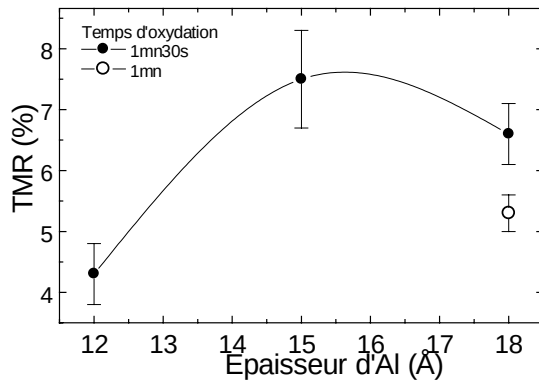


Figure 2.3: Evolution du signal maximum de magnéto-résistance tunnel en fonction de l'épaisseur d'aluminium pour $t_{ox} = 1mn30s$, à température ambiante.

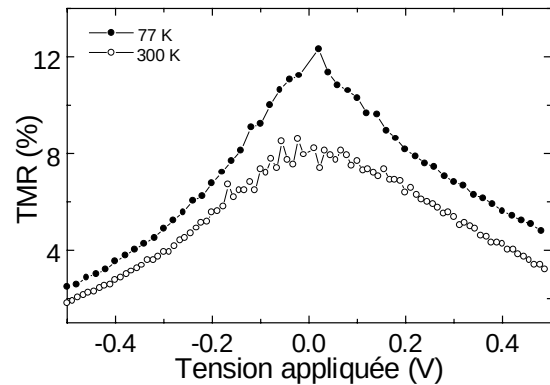


Figure 2.4: Evolution de la magnéto-résistance tunnel en fonction de la tension appliquée à la jonction, à température ambiante et à 77°K. Mesurée sur une jonction avec $t_{ox} = 1mn30s$ et $e_{Al} = 15 \text{ \AA}$.

2.2 La barrière d'oxyde de tantale

Les propriétés de magnéto-transport de jonctions du type Verre/Ta(10nm)/Co(7.5nm)/Ta(e_{Ta} nm, t_{ox} mn, P (Watts))/ Co*(20nm) ont été étudiées en fonction de e_{Ta} , l'épaisseur de tantale déposé avant oxydation, de t_{ox} , le temps d'oxydation et de P, la puissance d'oxydation¹². Comme pour l'aluminium, l'amplitude du signal de magnéto-résistance est très sensible à toute sous- ou suroxydation de la couche de tantale comme nous pouvons le voir figure 2.5.

¹¹ F. Brinkman, R. C. Dynes et J. M. Rowell, J. Appl. Phys. **41**, 1915 (1970).

¹² P. Rottländer, M. Hehn, O. Lenoble, A. Schuhl, Appl. Phys. Lett. **78**, 3274 (2001).

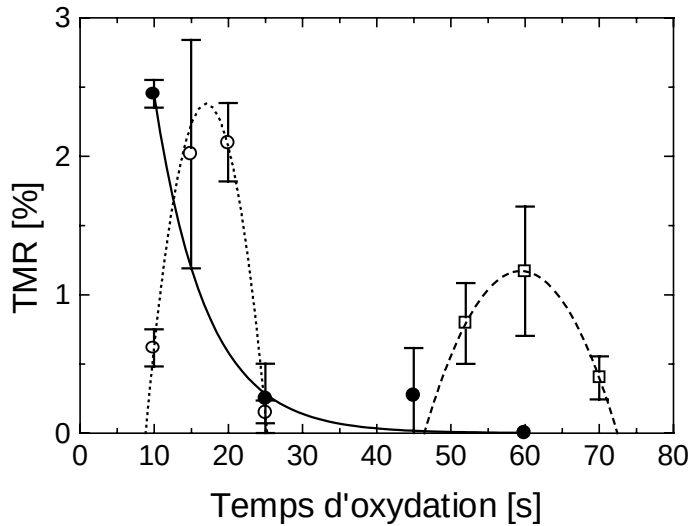


Figure 2.5: dépendance du signal de magnétorésistance (TMR) avec le temps d'oxydation pour une couche de Ta de 1.4 nm d'épaisseur oxydée à 200 W (-○-) et à 300 W(-●-), pour une couche de Ta de 1.7 nm d'épaisseur oxydée à 300 W (-□-)

Comme nous pouvons le constater, une magnétorésistance (MRT) maximale de 2.5% à température ambiante est obtenue pour la couche de Ta de 1.4nm oxydée 17s à 200W. Cette TMR chute à 1.2% lorsque l'épaisseur de la couche de Ta est portée à 1.7 nm. La théorie de Brinkman¹³ a été employée pour estimer la hauteur, ϕ , et l'épaisseur, t_{eff} , de barrière effective. Les valeurs extraites pour ϕ sont comprises entre 0.25 et 0.4 eV et t_{eff} est toujours de l'ordre de 2.5 fois l'épaisseur de la couche de Ta du départ. Cette augmentation s'explique par la modification de la densité du Ta lorsque celui-ci incorpore de l'oxygène. Ces premiers résultats semblent confirmer la diminution de la TMR prédite théoriquement lorsque la hauteur de barrière diminue.

Ces jonctions présentent la décroissance bien connue de la magnétorésistance tunnel avec la tension appliquée aux bornes de la jonction avec une tension caractéristique $|V_{1/2}|$ de 0.17 à 0.2 V (figure 2.6). Ces valeurs sont plus petites que celles mesurées sur l'alumine, ce qui laisse à penser que $|V_{1/2}|$ varie avec la hauteur de barrière. Les jonctions présentant les meilleures propriétés de magnéto-transport ont été mesurées à basses températures allant jusqu'à 80K. La résistance de ces jonctions augmente linéairement lorsque la température diminue. De la même manière, la magnétorésistance augmente et atteint 4% pour $eT_a=14 \text{ \AA}$ et $P=200W$.

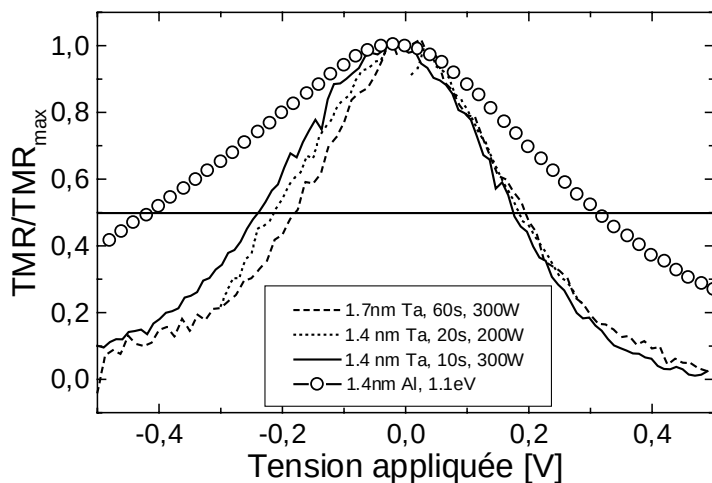


Figure 2.6: dépendance du signal de magnétorésistance normalisé (TMR/TMR_{max}) avec la tension pour les jonctions dont le temps d'oxydation a été optimisé. Pour comparaison, l'évolution mesurée sur une jonction alumine a été rajoutée.

¹³ F. Brinkman, R. C. Dynes et J. M. Rowell, J. Appl. Phys. **41**, 1915 (1970).

2.3 La barrière d'oxyde de magnésium

Des axes parallèles ont été suivis pour le développement d'une autre barrière alternative : la barrière de MgO. Historiquement, les premiers développements ont eu lieu avec succès par épitaxie par jets moléculaires. Ensuite, suite aux problèmes rencontrés durant les étapes de microtechnologies, un développement par pulvérisation cathodique a été réalisé afin de comparer les résultats expérimentaux. Comme nous allons le voir dans les paragraphes à venir, la comparaison des deux types de barrière, cristalline et amorphe, montre bien les effets liés à la structure de bandes des matériaux composant la jonction tunnel.

2.3.1 Les jonctions Fe/MgO/Fe épitaxiées

Cette étude a été réalisée dans le cadre de la thèse de Jérôme Faure Vincent sous l'impulsion de Christine Bellouard et Alain Schuhl en ce qui concerne la croissance et Coriolan Tiusan en ce qui concerne le transport électronique, le magnétisme et la théorie. Les multicouches de type Fe/MgO/Fe/Co/Pd ont été déposées sur des substrats de MgO (100) à l'aide de l'épitaxie par jets moléculaires. La première électrode de fer d'épaisseur 50 nm est déposée avec un flux de 0.7 nm/min à partir d'une cellule de Knudsen. La moyenne quadratique de sa rugosité mesurée par microscopie à force atomique est d'environ 0.3 nm. La barrière de MgO est ensuite déposée à partir d'un canon à électrons à 0.5 nm/min. Au cours du dépôt, on observe des oscillations de l'intensité RHEED jusqu'à des épaisseurs d'environ 10 monocouches qui prouvent le caractère bidimensionnel de la croissance du MgO sur le fer. Ces oscillations permettent une détermination précise du flux d'évaporation et donc de l'épaisseur de MgO déposée avec une incertitude absolue inférieure à 0.5 Å. La croissance de la seconde électrode magnétique constituée par une bicouche Fe/ Co ainsi que la croissance de la couche protectrice de Pd conservent la structure monocristalline.

La figure 2.7 montre des clichés de microscopie électronique obtenus avec un microscope CM30/ST par Etienne Snoeck au CEMES à Toulouse. On peut observer l'empilement parfait des couches à l'échelle atomique pour une épaisseur de MgO de 0.6 nm. Des dislocations ont été en revanche observées pour des épaisseurs de MgO supérieures à 0.8 nm. Les interfaces Fe/ MgO sont très plates avec une rugosité inférieure à 2 plans atomiques alors que l'interface Fe/ Co est quant à elle plutôt rugueuse. En conclusion, nous avons réalisé des jonctions magnétiques totalement monocristallines dont la couche isolante est parfaitement continue à l'échelle micronique et dont l'épaisseur peut être contrôlée *in situ* avec une précision de 0.5 Å.

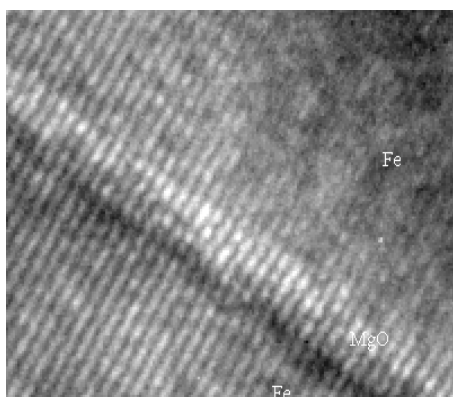


Figure 2.7 : Images TEM haute résolution d'une multicouche MgO(100)/Fe/MgO (0.8nm)/Fe/Co/Pd.

Des calculs *ab initio* récents¹⁴ ont prédit de forts effets magnétorésistifs : de l'ordre de 1000% dans des jonctions tunnel monocristallines type Fe/MgO/Fe pour environ 10 plans atomiques de MgO. De telles valeurs, bien au-delà des effets attendus pour le filtrage par la polarisation des électrodes ferromagnétiques, ne peuvent s'expliquer que par une contribution supplémentaire via l'influence de la structure électronique de l'ensemble électrodes ferromagnétiques/barrière tunnel et des interfaces. En ce qui concerne la barrière tunnel, le filtrage dépendant du spin des électrons s'effectue par des mécanismes de transport tunnel différents pour les spins majoritaires et minoritaires. La symétrie des états de Bloch au niveau de Fermi et l'atténuation dépendante de la symétrie des ondes évanescences dans la couche isolante sont différentes pour les électrons majoritaires et minoritaires et pour les deux interfaces.

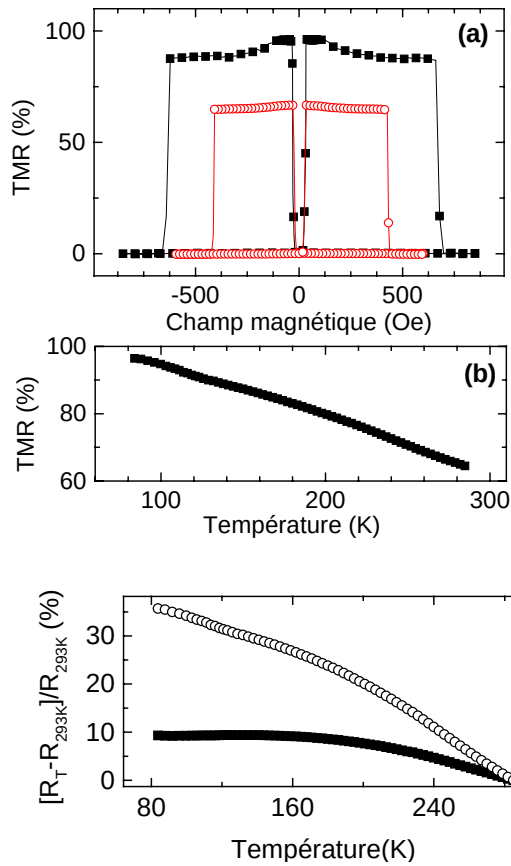


Figure 2.8 : Mesures de transport avec un champ magnétique appliqué le long de l'axe facile $[100]_{Fe}$, pour une tension appliquée de +10 mV. (a) TMR à 295K (-□-) et 80K (-■-) (b) variation TMR(T).

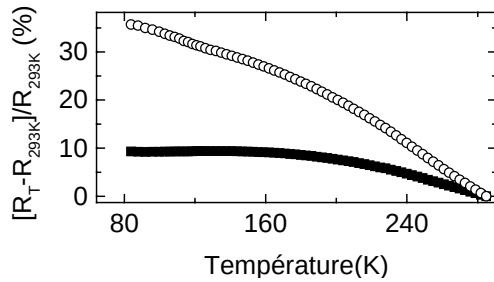


Figure 2.9 : Variations relatives des résistances de la jonction dans ses états P (-■-) et AP (-○-) en fonction de la température.

La figure 2.8 montre des cycles de magnétorésistance TMR(H) typiques. La TMR est calculée comme $(R_{AP} - R_P) / R_{AP}$, où R_{AP} et R_P sont les résistances de la jonction dans les états antiparallèle (AP) et parallèle (P) des électrodes magnétiques. Pour une épaisseur d'isolant de 1 nm, la TMR mesurée est de l'ordre de 17 % à température ambiante¹⁵. Cependant, conformément aux prédictions théoriques, en augmentant l'épaisseur nominale de la barrière isolante de 1.0 à 2.5 nm, nous observons¹⁶ une augmentation de la TMR jusqu'à 67% à 295K

¹⁴ J. Mathon and A. Umerski, *Phys. Rev.* **B63**, 220403R (2001); W. H. Butler, X.-G. Zhang, T. C. Schulthess, J. M. MacLaren, *Phys. Rev.* **B 63**, 054416 (2001).

¹⁵ E. Popova, J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, H. Fischer, M. Hehn, F. Montaigne, M. Alnot, S. Andrieu, A. Schuhl, E. Snoeck, V. da Costa, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 1035 (2002).

¹⁶ J. Faure-Vincent, C. Tiusan, E. Jouguelet, F. Canet, M. Sajieddine, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, A. Schuhl, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 4507 (2003).

(100% à 80K) (figure 2.8). Ces valeurs sont situées au-delà des valeurs attendues compte tenu des polarisations magnétiques des électrodes de Fe. Elles sont donc la signature des effets complexes de la structure électronique.

Nous observons une augmentation de la TMR lorsque la température diminue (figure 2.8(b)), accompagnée d'une augmentation du champ coercitif de la couche dure (figure 2.8(a)). Cette variation de la TMR est due aux variations relatives des résistances de la JTM dans ses états P (R_P) et AP (R_{AP}). Comme attendu dans le cas du transport par effet tunnel, la résistance augmente lorsque la température diminue. Cependant, nous remarquons une plus forte variation de R_{AP} avec la température (figure 2.9, 35 % de variation relative pour l'état AP et 10 % pour l'état P). Cela est en bon accord avec les prédictions théoriques qui montrent que la conduction dans l'état AP est directement liée à la conduction du spin minoritaire, modulée par des effets de diffusion et résonance interfaciales, qui sont extrêmement sensibles à la température.

L'influence de la structure électronique des électrodes ferromagnétiques sur le transport tunnel polarisé en spin est illustrée dans les courbes de conductivité dynamique ($g = dI/dV$) représentées sur la figure 2.10 pour les états P et AP. En effet, le courant tunnel est une sonde de la densité d'états interfaciale : lorsqu'on applique une tension à la jonction, les électrons injectés à partir du niveau de Fermi d'une des électrodes balayent en énergie la densité d'états de l'autre électrode: $I^\sigma(V) \sim n_{Fe1}^\sigma(E_F) n_{Fe2}^\sigma(E_F + eV)$ avec $\sigma = up, down$. Ainsi, par l'influence de l'état de surface du spin minoritaire du Fe(001) localisé à 0.2eV au-dessus de niveau de Fermi (insert fig. 2.10), nous observons une augmentation de la conductance dans l'état AP liée au spin minoritaire par rapport à la conductance dans l'état P liée au spin majoritaire. Cela est illustré également par l'inversion du signe de la TMR, lorsque la tension de polarisation de la JTM devient supérieure à 0.2 eV (figure 2.10).

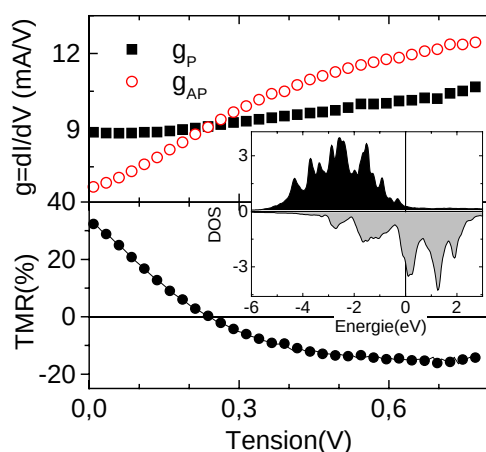


Figure 2.10 : Conductance dynamique (a) et TMR (b) en fonction de la tension appliquée. Insert: Densité d'états de la surface du Fe(001). On peut noter l'état de surface du spin minoritaire situé à 0.2eV.

En résumé, nous avons montré que, dans un système de type JTM épitaxié, le transport tunnel polarisé en spin est gouverné par des effets complexes de structure électronique qui sortent du cadre du modèle des électrons libres. Ainsi, l'effet magnétorésistif dû au filtrage en spin des électrons est contrôlé par la structure électronique des électrodes ferromagnétiques mais également par celle de la barrière isolante et des interfaces métal/isolant.

2.3.2 Les jonctions Co/MgO/Co déposées par pulvérisation cathodique

Par rapport aux articles trouvés dans la littérature sur la barrière de MgO, peu font référence à la barrière de MgO amorphe. Un effet tunnel dépendant du spin a été rapporté dans une seule publication pour une barrière très épaisse de MgO (10 nm d'épaisseur)¹⁷. Mais aucun résultat sur des jonctions fines avec une petite résistance n'a été rapporté jusqu'à présent.

Les jonctions ont été déposées sur substrat de verre par pulvérisation de tantale, platine, magnésium montés sur des cathodes magnétron RF alors que le cobalt a été monté sur une cathode magnétron DC. La pression de base est inférieure à 5×10^{-7} mbar et les substrats sont maintenus à température ambiante. Les échantillons sont composés d'une multicouche Verre/Ta(5nm)/Pt(20nm)/Co(10nm)/MgOx(t_{Mg} nm, oxydé t_{Ox} s)/Co* (10nm)/Pt(20nm). Toutes les couches sont déposées à une pression d'Ar de 5×10^{-3} mbar à l'exception de la couche de Co* déposée à 1.5×10^{-2} mbar. Ainsi, deux champs coercitifs assez différents pour les couches de Co et Co* sont obtenus. Pour obtenir l'oxyde de magnésium, MgOx, une oxydation DC est réalisée juste après le dépôt d'une couche métallique de Mg avec une puissance de 200 W et une pression d'oxygène de 10^{-1} mbar. Dans cette étude, le système de changement *ex situ* présenté au paragraphe 2.1 a été utilisé. Cependant, vu la petite résistance des jonctions, une mesure 4 pointes a été nécessaire pour soustraire directement la résistance des électrodes.

Des jonctions tunnel avec une épaisseur nominale de Mg, t_{Mg} , comprise entre 1.6 nm et 3.5 nm ont été étudiées et pour chaque t_{Mg} , le temps d'oxydation t_{Ox} a été optimisé pour obtenir le signal de MRT le plus grand. Il est couramment admis que c'est dans cette situation que la couche métallique est complètement oxydée. Nous rapportons ici les résultats obtenus sur les jonctions optimisées. Dans un premier temps, nous avons montré que le processus de transfert électronique d'une électrode à l'autre était un processus tunnel. Pour cela, il a été montré par J. J. Akerman et collaborateurs¹⁸ que le critère le plus solide consiste à étudier la conductivité en fonction de la température.

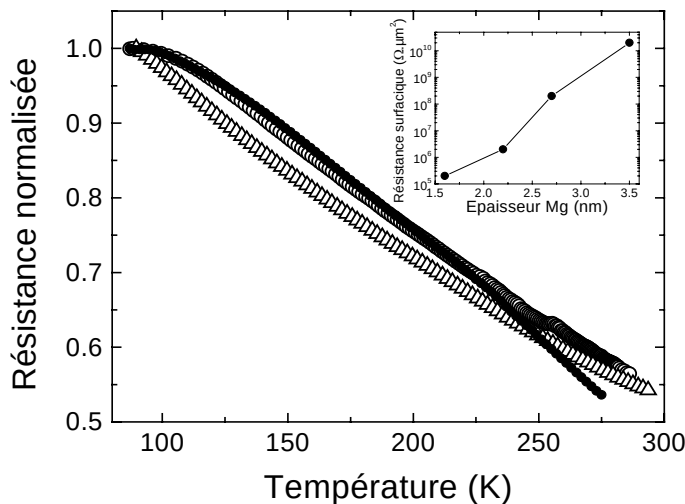


Figure 2.11 : variation de la résistance avec la température pour une tension appliquée de 10 mV pour des jonctions d'épaisseur nominale de Mg de 27.5 Å (-o-), 22 Å (-Δ-) and 16.5 Å (-●-). Insert : variation de la résistance surfacique avec l'épaisseur nominale de Mg.

¹⁷ C. L. Platt, B. Dieny, and A. E. Berkowitz, J. of Appl. Phys. **81**, 5523 (1997).

¹⁸ J. J. Akerman, R. Escudero, C. Leighton, S. Kim, D. A. Rabson, R. W. Dave, J. M. Slaughter, I. K. Schuller, J. Magn. Magn. Mat. **204**, 86 (2002).

Aucune évidence de transport électronique par sauts à l'intérieur de la barrière n'a pu être démontrée et l'augmentation linéaire de la résistance avec la température est couramment admise comme preuve de transport tunnel direct à travers la barrière (figure 2.11). En conséquence du transport tunnel, nous montrons bien que la résistance surfacique des jonctions augmente de manière exponentielle avec l'épaisseur de la couche isolante (insert figure 2.11). La résistance par unité de surface des jonctions à 10 mV s'étend de 2×10^5 à $2 \times 10^{10} \Omega \cdot \mu\text{m}^2$. Si l'on considère la faible résistance de la barrière d'épaisseur nominale égale à 1.6 nm et le fait que la mesure a été faite en 4 pointes, il faut s'assurer que l'électrode n'est pas trop résistive pour éviter les effets liés aux distributions de courant. Grâce à l'utilisation d'une couche tampon de Pt, la résistance carrée des électrodes, R^* , a pu être réduite à 10 Ω . Il vient alors que la longueur caractéristique à laquelle des effets de distribution de courant apparaissent est portée à¹⁹

$$\lambda = \sqrt{\frac{R_s}{R^*}} = 150 \mu\text{m} \quad (2.1)$$

Les jonctions tunnel ont une taille latérale égale à 200 μm , les résultats des mesures faites sur les jonctions réalisées à partir de 1.6 nm de Mg sont valides mais pour réduire d'avantage l'épaisseur de la barrière tunnel, il faut réduire la taille latérale des jonctions. Pour cela, la lithographie optique ainsi que la gravure ionique sont nécessaires.

Pour toutes les jonctions, des caractéristiques courant/tension ont été mesurées. Nous avons pu obtenir un taux de réussite d'environ 90% et les jonctions non court-circuitées présentent une caractéristique courant/tension non linéaire, comme un corollaire du transport tunnel vérifié plus haut. Les hauteurs et épaisseurs de barrière ont de nouveau été déterminées à l'aide de la formule de Brinkman²⁰. Une hauteur de barrière de 0.7 eV a été estimée alors que l'épaisseur de la barrière est proche, mais légèrement supérieure à l'épaisseur nominale de Mg déposée avant oxydation. La magnétorésistance a été étudiée en fonction de la tension appliquée à la jonction. Elle est réduite de moitié pour une tension appliquée de $V_{1/2}=0.2\text{V}$. Tout comme dans le cas de l'oxyde de tantale, cette valeur est plus petite que pour l'alumine. Comme nous l'avons montré à l'aide du modèle des électrons libres, c'est une autre indication de la faible hauteur de la barrière de MgO.

Finalement, la MRT a été étudiée en fonction de l'épaisseur nominale de Mg déposée avant oxydation. Comme nous pouvons le voir sur la figure 2.12, la MRT augmente de manière significative lorsque l'épaisseur nominale de Mg diminue. Cette courbe a pu être reproduite de manière théorique à l'aide du modèle des électrons libres en prenant en compte les paramètres issus de l'ajustement des caractéristiques courant/tension par la formule de Brinkman.

Il apparaît clairement que les jonctions à base de MgO obtenues par pulvérisation cathodique ne présentent pas d'effets liés à la structure de bandes des matériaux. En illustration, nous comparons, dans la figure 2.13, la variation de la magnétorésistance avec la tension pour une barrière de MgO amorphe (à gauche) et une barrière de MgO cristalline (à droite).

¹⁹ F. Montaigne, F. Nguyen Van Dau, A. schuhl, J. Magn. Magn. Mat. **217**, 231 (2000).

²⁰ F. Brinkman, R. C. Dynes et J. M. Rowell, J. Appl. Phys. **41**, 1915 (1970).

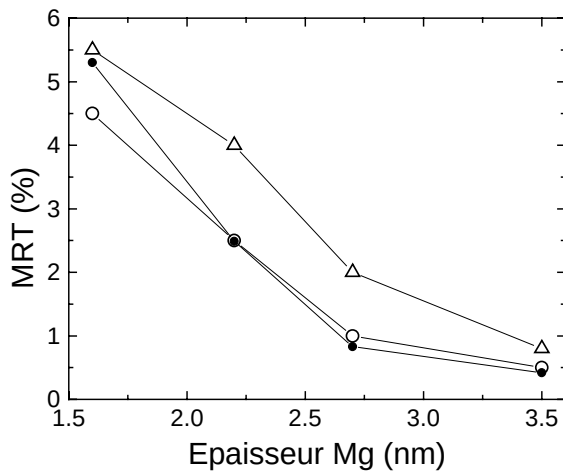


Figure 2.12 : variation de la MRT avec l'épaisseur nominale de Mg avant oxydation à température ambiante (-o-), à 80 K (-Δ-). Ces mesures sont accompagnées d'une modélisation avec le modèle des électrons libres en utilisant les paramètres extraits des ajustements à l'aide de la formule de Brinkman (-●-).

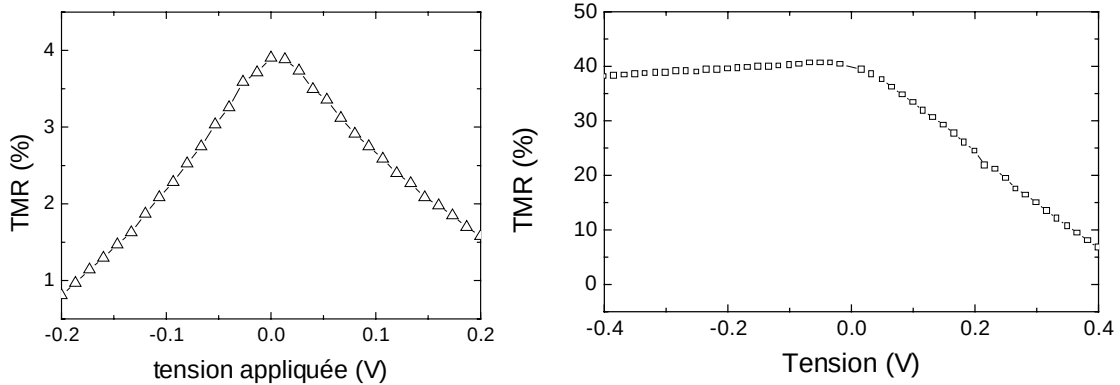


Figure 2.13 : variation de la MRT avec la tension pour une jonction MgO de 3 nm réalisée par pulvérisation cathodique (à gauche) et variation de la MRT avec la tension pour une jonction MgO de 3 nm réalisée par épitaxie par jets moléculaires (à droite).

La forte asymétrie de la courbe de droite est liée à la structure de bandes bien particulière du fer en surface. De plus, nous voyons que l'amplitude de la magnétorésistance est dix fois plus faible dans le cas des jonctions à barrière amorphe que dans le cas des jonctions cristallines. Le MgO réalisé par pulvérisation reste cependant très intéressant pour les applications puisque d'une part, une MRT de 15% est prédite pour une épaisseur de 1nm et d'autre part, une résistance surfacique inférieure à $10^3 \Omega \cdot \mu\text{m}^2$ devrait alors être atteinte.

2.4 Conclusion

Dans le paragraphe 2, nous avons étudié différents matériaux qui pouvaient être utilisés pour la réalisation de barrière tunnel. Bien d'autres essais ont été réalisés avec notamment des barrières de TiO_2 , TiN , TaN , BN , C , BOx , CeO_2 , ... mais seules les jonctions réalisées avec les matériaux ci-dessus ont présenté à la fois de la MRT et du transport tunnel.

Ce travail de stabilisation et de contrôle de couches isolantes et non dépolarisantes constitue également une base de travail pour les applications futures à l'électronique de spin. Comme nous allons le voir dans le chapitre 4, l'utilisation de plusieurs couches isolantes de hauteurs différentes est nécessaire au fonctionnement de certains dispositifs.

3 Les couplages magnétiques dans les jonctions tunnel

Dans l'état des connaissances actuelles, il est possible de distinguer cinq types de couplage différents par leurs origines et/ou par leurs effets. Chacun de ces couplages est détaillé dans cette section.

3.1 Couplage ferromagnétique direct

Le couplage par échange direct apparaît lorsque deux films ferromagnétiques ont une interface commune. Dans le cas particulier d'une JTM, cela correspond à une barrière isolante discontinue (présence de trous d'épingle ou *pinholes* dans la barrière). L'effet de couplage par échange direct a été mesuré par Egelhoff dans le cas de barrières isolantes très fines (0.6 nm) et discontinues. Il a montré que ce couplage dépend fortement de la température²¹.

3.2 Couplage par effet tunnel

Un couplage par échange indirect provient du recouvrement des fonctions d'ondes associées aux électrons de chaque électrode. En 1989, Slonczewski exprime l'énergie J associée à ce couplage dans le cas d'électrons libres et d'une tension appliquée nulle²². Ce couplage, dont l'expression de l'énergie est donnée par l'équation 2.2, varie fortement avec l'épaisseur de la barrière tunnel d ; $k_{\uparrow}$ et $k_{\downarrow}$ sont respectivement les vecteurs d'ondes associés aux électrons de spin 'up' et 'down' dans les électrodes ; $ik = \sqrt{(E_F - U_0) \frac{2m}{\hbar^2}}$ est le vecteur d'onde imaginaire des électrons dans la barrière ; $U_0 - E_F$ est la hauteur de barrière.

$$J = \frac{U_0 - E_F}{8\pi^2 d^2} \frac{8k^3 (k^2 - k_{\uparrow} k_{\downarrow}) (k_{\uparrow} - k_{\downarrow})^2 (k_{\uparrow} + k_{\downarrow})}{(k^2 + k_{\uparrow}^2)^2 (k^2 + k_{\downarrow}^2)^2} e^{-2kd} \quad (2.2)$$

On constate notamment que suivant la valeur de $k^2 - k_{\uparrow} k_{\downarrow}$, ce couplage peut passer d'un type ferromagnétique à antiferromagnétique.

3.3 Les couplages magnétostatiques

Des couplages de type magnétostatique apparaissent dès lors que des inhomogénéités d'aimantation ou que des "charges" magnétiques sont créées.

Lorsque les tailles latérales d'une couche ferromagnétique à aimantation planaire sont réduites, la distance entre les "charges" magnétiques accumulées sur les flancs des électrodes diminue. Ces charges génèrent un champ de fuite dont l'intensité croît avec la réduction de taille. Ce couplage favorise un arrangement antiferromagnétique des aimantations des électrodes comme le montre la figure 2.14. L'influence de ce type de couplage n'est observable que sur des JTM dont la taille latérale est inférieure à la centaine de microns²³.

²¹ W. F. Egelhoff *et al.*, Mat. Res. Symp. Proc. **674**, T1.2.1 (2001).

²² J. C. Slonczewski, Phys. Rev. B **39**, 6995 (1989).

²³ K.-S. Moon, R. E. Fontana, and S. S. P. Parkin, Appl. Phys. Lett. **74**, 3690 (1999).

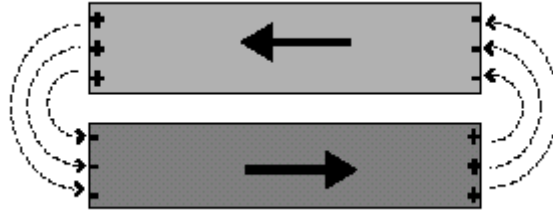


Fig. 2.14 – Couplage dipolaire. Les charges magnétiques (signes + et -) accumulées sur les flancs des électrodes génèrent un champ de fuite qui favorise un couplage antiferromagnétique entre les aimantations des électrodes.

L'apparition de charges magnétiques à la surface d'au moins une des deux interfaces ferromagnétique/isolant est également à l'origine d'un couplage entre les aimantations des électrodes. Ces charges magnétiques sont induites par une rugosité soit magnétique²⁴, soit topologique²⁵. On parle alors de couplage de type peau d'orange ou *orange peel*. Ce couplage peut être ferromagnétique comme cela est représenté sur la figure 2.15 ou antiferromagnétique suivant la corrélation de la rugosité des deux surfaces en regard. Dans le cas d'interfaces ayant une rugosité corrélée et de forme sinusoïdale, ce couplage est ferromagnétique et il se traduit par un champ de couplage H_N . Sa valeur est donnée par l'équation 2.3 où h et λ sont l'amplitude et la période de la rugosité; M_S est l'aimantation à saturation de la couche ferromagnétique qui crée le champ H_N ; t_F est l'épaisseur de la couche qui subit ce champ; t_S est l'épaisseur de la barrière tunnel. Cette formulation a été vérifiée expérimentalement dans le cas de JTM en étudiant la variation de H_N en fonction de l'épaisseur de la barrière tunnel²⁶.

$$H_N = \frac{\pi^2}{\sqrt{2}} \left(\frac{h^2}{\lambda t_F} \right) M_S e^{-2\pi\sqrt{2} t_S / \lambda} \quad (2.3)$$

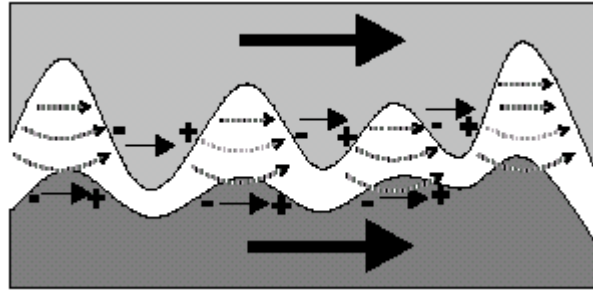


Fig. 2.15 – Couplage 'peau d'orange' (*orange peel*). La rugosité topologique des interfaces ferromagnétique/isolant entraîne l'apparition de charges magnétiques (signes + et -) aux endroits où le produit scalaire du vecteur normal à la surface par l'aimantation (flèches pleines) n'est pas nul. Ces charges magnétiques génèrent un champ dipolaire (flèches hachurées) qui peut être responsable d'un couplage ferromagnétique entre les deux couches magnétiques.

²⁴ C. Tiusan, M. Hehn, and K. Ounadjela, Eur. Phys. J. B **26**, 431 (2002).

²⁵ L. Néel, C. R. Acad. Sci. Paris **255**, 1676 (1962).

²⁶ B. D. Schrag *et al.*, App. Phys. Lett **77**, 2373 (2000).

Finalement, l'apparition d'inhomogénéités de l'aimantation dans le volume des couches magnétiques et donc l'apparition de charges de volume est à l'origine d'un dernier type de couplage. En effet, la présence de parois de domaines magnétiques dans l'électrode douce d'une JTM peut générer des champs de fuites qui ont pour effet de désaimanter la couche dure lorsque l'aimantation de la couche douce est retournée un grand nombre de fois (plus d'une centaine de fois)²⁷.

4 Couplage ferromagnétique de type 'peau d'orange' et duplication de domaines magnétiques

Lorsque deux couches magnétiques sont associées dans une jonction tunnel magnétique du type Verre/Co(10nm)/Al(eAl nm, t_{ox} mn)/Co(5nm)/Co*(20nm), le champ coercitif de la couche de Co augmente alors que celui de la couche de Co/Co* diminue. En réalité, leur champ coercitif intrinsèque n'a pas été modifié mais le renversement de chaque couche magnétique est influencé par la présence de l'autre à cause de leur proximité. Cet effet de proximité est démontré par la mesure du cycle mineur de magnétométrie Kerr ou de résistance en fonction du champ magnétique (figure 2.16, cycle pointillé). Comme nous pouvons le constater sur la branche du cycle mineur qui s'étend de -55 Oe à la saturation positive, le champ de retournement de la couche douce de Co est égal à +20 Oe. Le cycle qui correspond au retournement de la couche douce de Co est donc décalé d'un champ de -17 Oe qui correspond à un fort couplage ferromagnétique avec la couche de Co/Co*. Ce couplage a été attribué à un couplage magnétostatique de type « peau d'orange » qui est issu d'une corrugation cohérente des deux interfaces de la barrière tunnel.

Suivant les valeurs de eAl et de t_{ox} , l'intensité du couplage change : elle augmente lorsque eAl augmente et peut atteindre des valeurs de -30 Oe. Cette augmentation est en accord avec l'augmentation de la rugosité de la barrière d'alumine lorsque son épaisseur augmente. Ce fort couplage, le plus fort rapporté à ce jour dans les jonctions tunnel magnétiques, est à l'origine d'un effet original et extraordinaire qui se manifeste dans la mesure de cycles mineurs de magnétorésistance tunnel c'est-à-dire dans le domaine de fonctionnement des capteurs de champs magnétiques.

Description du cycle majeur (figure 2.16, (-)) : en partant du champ de saturation positif pour lequel les aimantations des deux couches ferromagnétiques sont parallèles et positives (état de faible résistance), il apparaît une forte augmentation de résistance lorsque le champ magnétique est inversé et égal à -55 Oe environ. Cette augmentation de résistance est liée au retournement brutal sur 2 Oe de l'aimantation de la couche douce de Co par nucléation et propagation d'une ou plusieurs paroi(s). Suite à cette augmentation brutale, la résistance continue à augmenter pour saturer lorsque les aimantations des deux couches sont anti-parallèles (état de forte résistance). Lorsque le champ appliqué négatif augmente, l'aimantation de la couche de Co/Co* se renverse également, ce qui entraîne une diminution plus progressive sur 20 Oe de la résistance qui redevient minimale lorsque les aimantations des deux couches sont parallèles et négatives (état de faible résistance).

²⁷ M. R. McCartney *et al.*, Science **286**, 1337 (1999); L. Thomas, M. G. Samant, and S. S. P. Parkin, Phys. Rev. Lett. **84**, 1816 (2000) ; L. Thomas *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 3462 (2000).

Le cycle mineur (figure 2.16, (o) et (•)) : comme nous pouvons le constater dans la figure 2.16, les cycles mineurs (o) et (•) présentent une chute de résistance supplémentaire, pour un champ appliqué H_1 , par rapport au cycle complet (-) et l'augmentation de la résistance pour les champs compris entre H_2 et H_3 n'est pas aussi forte que sur le cycle complet. Le fait que la résistance pour des champs compris entre H_1 et H_2 est quasiment égale à celle mesurée pour un alignement parallèle des aimantations montre que, localement, les aimantations des deux couches magnétiques sont parallèles même si la couche de Co/Co^* possède une structure en domaines stabilisée au champ égal à H_{rev} . Cela n'est possible que si la structure en domaines de la couche de Co/Co^* est dupliquée dans la couche douce de Co . A l'aide d'un modèle, nous avons pu montrer que cette duplication était possible lorsque le couplage magnétostatique inter-couche est fort et l'énergie de paroi dans la couche douce de Co est faible.

A l'aide de ce modèle de structure en domaines, la chute de résistance supplémentaire pour un champ appliqué H_1 , par rapport au cycle complet (-), s'explique de manière simple. Le modèle repose sur l'existence d'une structure en domaines dans la couche de Co/Co^* . Après une saturation positive, lorsque le champ appliqué est compris entre -105 et -125 Oe, la couche douce de Co est saturée dans la direction négative alors que la couche de Co/Co^* contient une structure en domaines. Lorsque H_{rev} est inférieur à -105 Oe, cette structure comporte des domaines où l'aimantation est orientée soit parallèle, soit antiparallèle au sens d'application du champ magnétique (figure 2.17a). L'augmentation du champ négatif appliqué entraîne une augmentation de la densité des domaines orientés dans le sens négatif. Lorsque le champ appliqué à la jonction est inversé pour un champ négatif égal à H_{rev} vers les champs positifs, les régions de la couche douce de Co sont soumises à des champs locaux différents selon leur position. En effet, les régions **A** qui sont situées au-dessous de domaines de la couche de Co/Co^* dont l'aimantation est orientée dans la direction positive (sens d'application du champ), sont soumises à un champ magnétique égal à $H + |H_f|$ où H_f est le champ d'interaction dipolaire. Les régions **B** qui sont situées au-dessous de domaines de la couche de Co/Co^* dont l'aimantation est orientée dans la direction négative (sens inverse d'application du champ), sont soumises à un champ magnétique égal à $H - |H_f|$. C'est pour cela que les régions **A** se renversent avant les régions **B**. Après le renversement des régions **A**, nous nous trouvons dans la situation de la figure 2.17b. Cette situation représente un état de faible résistance, ce qui correspond à la chute de résistance pour le champ appliqué H_1 . Le renversement des régions **B** entraîne à nouveau l'apparition d'états locaux d'aimantation antiparallèle et donc une augmentation de résistance (figure 2.17c). Finalement, la saturation de l'aimantation de la couche de Co/Co^* (figure 2.17d) permet de se retrouver dans l'état de résistance initial.

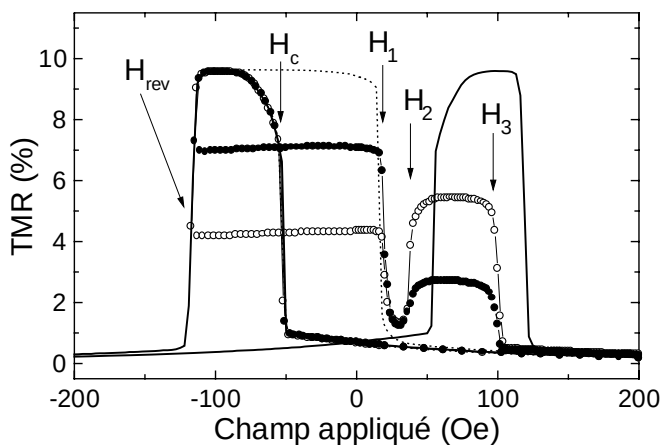


Figure 2.16: Cycles de magnétorésistance complet (-) et mineur (o, •, pointillés) mesurés sur une jonction $\text{Co}(10\text{nm})/\text{Al}(1.2\text{nm}, \text{ox}30\text{s})/\text{Co}(5\text{nm})/\text{Co}^*(20\text{nm})$. Sur le cycle mineur apparaît un saut de résistance supplémentaire en H_1 .

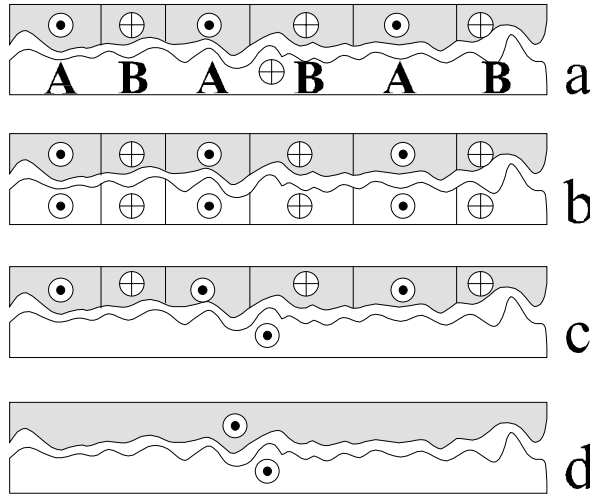


Figure 2.17: Dessins qui illustrent l'évolution de la structure en domaines dans la couche de Co oxydée (couche supérieure) et la couche de Co non oxydée (couche inférieure) lorsque le champ magnétique est égal à H_{rev} (a), H_1 (b), H_2 (c) et H_3 (d). Les symboles $\odot$ et $\otimes$ représentent les directions des aimantations dans les domaines (direction perpendiculaire au plan de la feuille). Le sens positif est selon $\odot$ et le champ magnétique est appliqué suivant $\odot$ quand il est positif, suivant $\otimes$ quand il est négatif.

Visualisation de la structure en domaines et de la duplication par microscopie Kerr

Jusqu'à présent, nous n'avons rapporté que des preuves indirectes de l'existence de domaines magnétiques dans la couche dure Co/Co* et de la duplication de cette structure en domaines dans la couche douce. La microscopie Kerr est un outil idéal pour cette étude²⁸. D'une part, sa résolution est suffisante car la taille latérale des domaines magnétiques dans les couches minces anisotropes est souvent supérieure au micromètre. D'autre part, la sensibilité en profondeur est suffisante pour visualiser l'évolution simultanée des deux couches magnétiques de la jonction. De par sa structure sous forme de croix, nous avons eu accès aux propriétés magnétiques de chaque électrode séparément ainsi que leur comportement lorsqu'elles sont associées dans la jonction tunnel. Cette partie a été réalisée en collaboration avec Jean-François Bobo à Toulouse.

Propriétés magnétiques individuelles de chaque électrode

Nous avons pu montrer que le renversement de la couche douce de Co s'effectue de manière abrupte sur une plage de champ de 2 Oe par nucléation et propagation de parois. Après ce retournement pour un champ de 30 Oe, toute la couche n'est cependant pas saturée. En effet, la propagation des parois est stoppée lorsque celles-ci rencontrent des défauts de la couche induits par les rayures du verre. Un champ de 70 Oe est alors nécessaire pour propager progressivement l'ensemble des domaines bloqués. Cette saturation progressive explique également la variation progressive de la résistance de la jonction jusqu'à l'obtention de l'alignement antiparallèle des aimantations après une première augmentation brutale (figures 2.16 et 2.18).

Le renversement de la couche dure Co/Co* s'effectue de manière beaucoup moins abrupte. Le retournement progressif de l'aimantation s'initie dans la couche de Co* avec la formation d'une faible fluctuation latérale de l'aimantation sous forme de « ripple ». Puis, le renversement abrupt s'opère par nucléation et propagation dans le Co de parois qui se propagent dans toute la couche Co/Co*. Cette nucléation est obtenue à un champ beaucoup plus grand que pour la couche douce de Co seule car l'aimantation de la couche de Co est

²⁸ O. Lenoble, M. Hehn, D. Jacour, A. Schuhl, D. Hrabovsky, J.F. Bobo, B. Diouf, A.R. Fert, Phys. Rev. B **63**, 052409 (2001).

retenue dans un premier temps par celle de la couche de Co* beaucoup plus difficile à retourner. De même, la propagation des parois est plus difficile dans la bicouche Co/Co* car les parois se déplacent plus difficilement dans la couche de Co*.

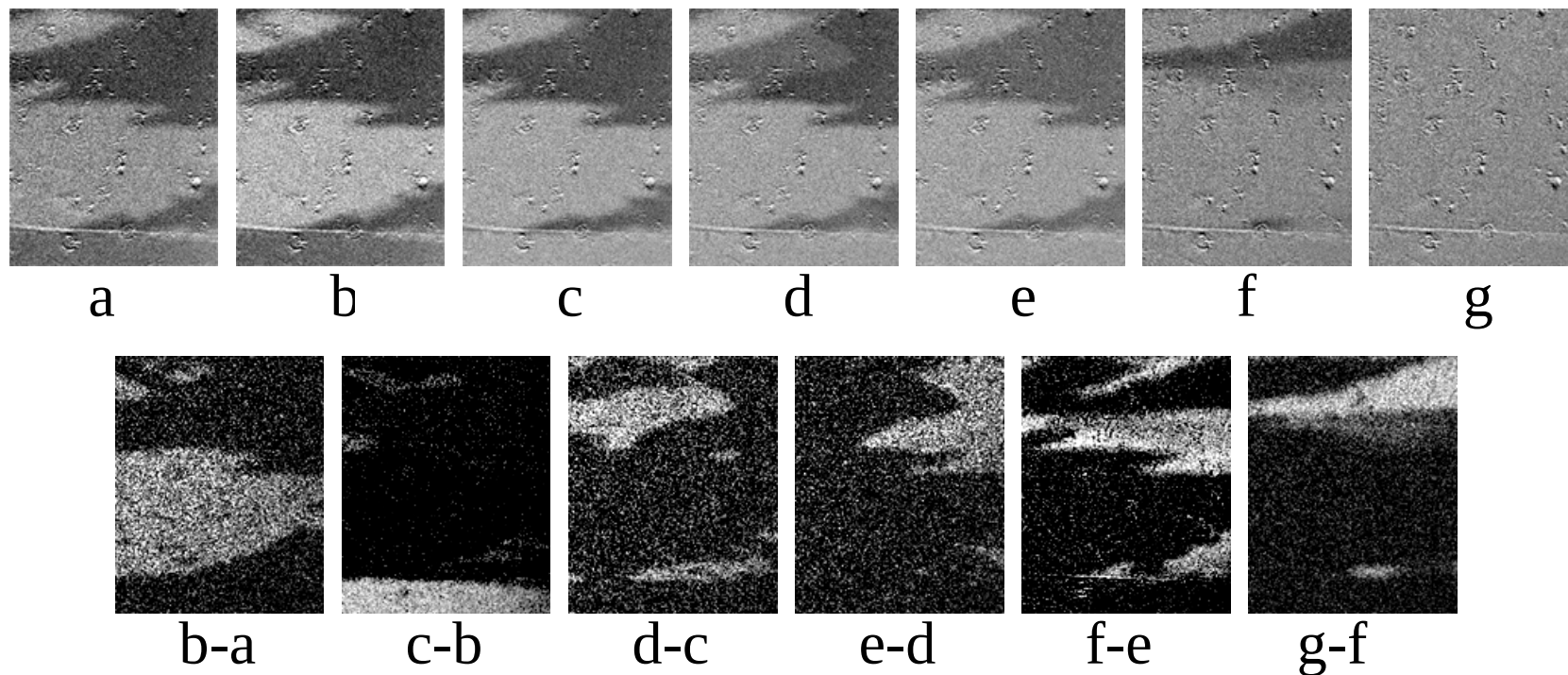
Propriétés magnétiques des électrodes dans la jonction

L'imagerie des domaines magnétiques nous a permis de montrer sans ambiguïté le phénomène de duplication comme nous pouvons le voir dans la figure 2.18. La jonction est tout d'abord saturée avec un champ appliqué de +200 Oe. Les aimantations des électrodes sont alors saturées dans le sens positif et apparaissent en gris clair dans les images Kerr (figure 2.18g par exemple). Puis, l'intensité du champ est réduite à -115 Oe. A cette valeur de champ, l'électrode douce est saturée dans la direction des champs négatifs alors que la couche dure contient une structure en domaines. Puis l'intensité du champ est portée à 25 Oe, valeur à partir de laquelle les images Kerr sont reportées. Il faut noter que de -115 Oe à 25 Oe, il n'y a pas d'évolution de la structure en domaines. Cette observation est en accord avec l'invariance de la résistance de la jonction dans cette gamme de champ (voir cycle de magnétorésistance figure 2.16).

Lorsque le champ appliqué passe de 25 à 26 Oe, seuls les domaines gris clairs de la jonction deviennent gris encore plus clairs (figure 2.18a, 2.18b et 2.18(b-a)). Cet éclaircissement correspond au renversement d'une aimantation dans la direction des champs positifs. Ce renversement correspond à celui des régions de la couche douce situées au-dessous de domaines de la couche Co/Co* dont l'aimantation est positive. Ces régions voient en effet un champ égal à $H + |H_f|$ où H est le champ appliqué positif et H_f le champ de couplage dipolaire ferromagnétique. Ainsi, ces régions de la couche douce se retournent à un champ H_1 inférieur au champ coercitif intrinsèque de la couche. A 32 Oe, seule la couche douce en dehors de la jonction se retourne comme nous l'avons montré lors de l'étude des électrodes individuelles. Ce champ est égal au champ coercitif intrinsèque. Entre 33 et 50 Oe (figure 2.18d, 2.18e, 2.18(d-c) et 2.18(e-d)), les régions d'aimantation négative de la couche douce se retournent progressivement. Le champ H_2 pour lequel la couche douce sature est supérieur à son champ coercitif intrinsèque car ces régions voient un champ égal à $H - |H_f|$. Puis une saturation progressive de la couche dure Co/Co* nous permet de retrouver l'état saturé positif initial.

Paramètres gouvernant l'apparition de la duplication de la structure en domaines

Depuis quelques années, beaucoup d'équipes de recherches à travers le monde travaillent sur l'élaboration de jonctions tunnel magnétiques. A notre connaissance, aucune n'a rapporté un tel effet et ne l'a démontré. Cependant, dans des structures de type *spin valve*, la duplication a été mise en évidence à l'aide des courbes de variation de résistance avec le champ appliqué, mais elle n'a pas été visualisée et les paramètres gouvernant l'apparition de la duplication n'ont pas été étudiés. D'après le modèle que nous avons proposé, il apparaît que la duplication n'est possible que si **localement** la couche douce est soumise à un champ magnétique fluctuant. Ce champ varie car il est égal au champ appliqué plus le champ dipolaire engendré par la structure en domaines de la couche dure. Suivant l'orientation de l'aimantation du domaine considéré, ce champ dipolaire s'additionne ou se soustrait au champ appliqué. Si l'on modifie la structure en domaines de la couche dure, il est possible de supprimer la duplication.



a: 25 Oe
 b: 26 Oe
 c: 32 Oe
 d: 39 Oe
 e: 41 Oe
 f: 100 Oe
 g: 110 Oe

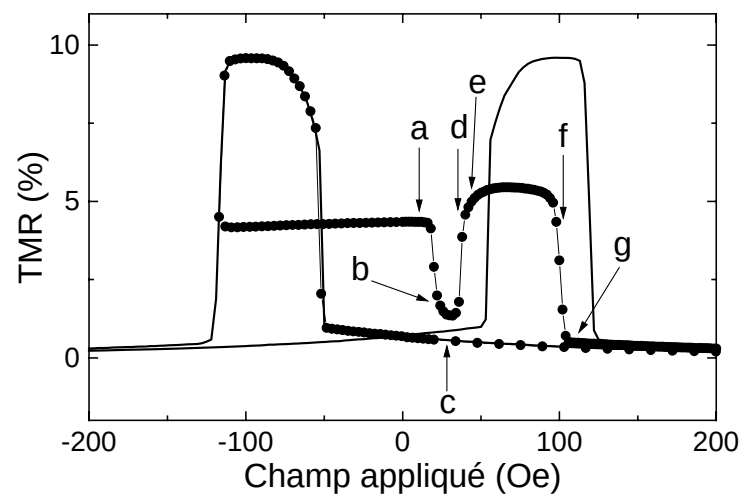


Figure 2.18 : (i) **Série d'images de a à g** : évolution de la structure en domaines visualisée par microscopie Kerr dans la jonction (partie supérieure de chaque image, au dessus du trait blanc) et dans l'électrode douce de Co (partie inférieure de l'image). Les images de a à e montrent l'évolution autour du point de duplication.

(ii) **Série d'images de (b-a) à (g-f)** : Afin de mieux mettre en évidence l'évolution de la structure en domaines, nous avons reporté dans cette ligne la différence de deux images Kerr successives. Ainsi l'image (b-a) représente la différence entre l'image b et a. Les zones blanches sont les zones dont l'aimantation s'est renversée.

Cycle de magnéto- résistance : sur ce cycle, nous avons reporté les valeurs des champs ainsi que les résistances correspondantes pour lesquelles les images Kerr ont été mesurées.

Les propriétés magnétiques de la couche dure Co(5nm)/Co*(20nm) peuvent être ajustées en fonction de l'épaisseur de Co. Lorsque celle-ci est réduite à zéro, le retournement de l'aimantation de la couche dure de Co*(20nm) s'effectue par rotation inhomogène de l'aimantation sans création de domaines d'aimantation inversée par rapport au champ appliqué. Selon que la rotation s'effectue dans le sens trigonométrique ou inverse, il peut y avoir formation de parois à 360 degrés. Dans tous les cas, le champ dipolaire créé par la couche dure de Co*(20nm) a le même signe sur toute la surface de la couche douce. Ainsi, le champ que voit la couche douce, égal au champ appliqué plus le champ dipolaire engendré par la structure en domaines de la couche dure, ne présente pas de grosse fluctuation : il n'y a pas de duplication de structures en domaines. Nous constatons dans la figure 2.19 qu'il n'y a que deux sauts de résistance dans les cycles mineurs (•,○) pour les champs positifs appliqués²⁹.

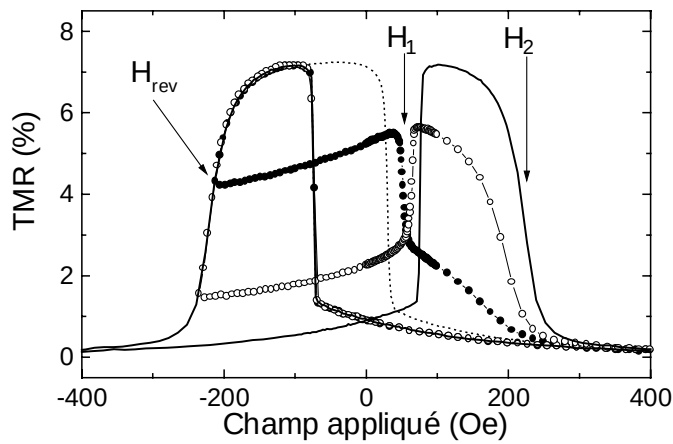


Figure 2.19: Cycles de magnétorésistance complet (-) et mineur (○,●, pointillés) mesurés sur une jonction Co(10nm)/Al(1.2nm,ox30s)/Co*(20nm).

Une couche dure avec une structure en domaines contenant des domaines à aimantations parallèle et antiparallèle au champ appliqué est donc une condition nécessaire pour obtenir une duplication. Mais elle n'est pas suffisante. Nous avons développé un modèle pour extraire les autres paramètres pertinents pour l'obtention de la duplication³⁰.

Dans ce modèle, nous considérons une couche magnétique dure d'épaisseur t_1 (couche 1 de la figure 2.20) couplée ferromagnétiquement à travers une barrière isolante avec une couche magnétique douce d'épaisseur t_2 (couche 2 de la figure 2.20), l'énergie de couplage par unité de surface étant égale à J_F . L'aimantation de chaque couche, égale à M_1 et M_2 respectivement, est toujours alignée avec le champ appliqué H , soit parallèle, soit antiparallèle. Lorsque des parois sont créées dans les couches magnétiques, elles sont longues de λ , présentent une énergie par unité de surface égale à σ_1 et σ_2 pour les couches 1 et 2 respectivement et délimitent des domaines de surface totale égale à Δ . Nous considérons que l'épaisseur des parois est nulle et que la surface de la jonction est égale à S . Il s'agit alors de comparer l'énergie des configurations d'aimantations présentées figure 2.20.

²⁹ M. Hehn, O. Lenoble, D. Lacour, A. Schuhl, Phys. Rev. B **62**, 11344 (2000).

³⁰ D. Lacour, M. Hehn, O. Lenoble, A. Schuhl, C. Tiusan and K. Ounadjela, J. of Appl. Phys. **89**, 8006 (2001).

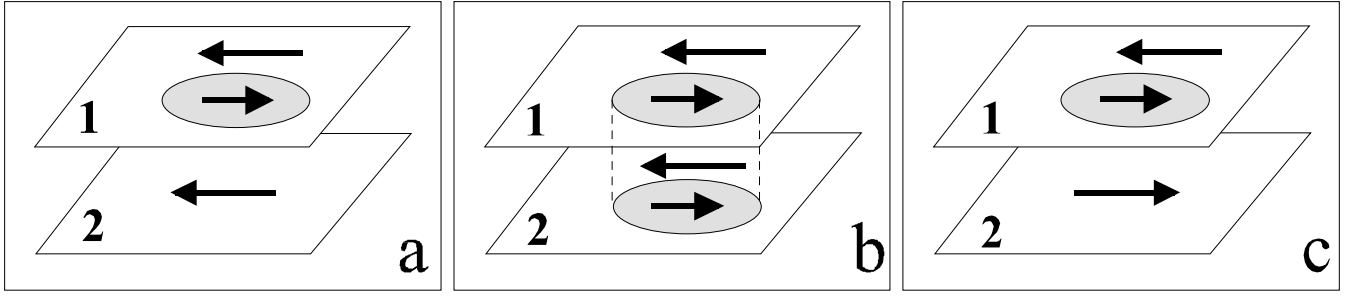


Figure 2.20: ensemble de trois dessins représentant les différents états magnétiques des deux couches couplées ferromagnétiquement avant, pendant et après la duplication des domaines magnétiques de la couche dure (couche 1) dans la couche douce (couche 2).

Situation a, d'énergie E_a : le champ magnétique positif est appliqué de gauche à droite après une saturation négative de l'aimantation de la couche douce (couche 2 de la figure). La couche dure (couche 1) contient une structure en domaines.

Situation b, d'énergie E_b : le champ magnétique est appliqué de gauche à droite et un domaine d'aimantation positive est nucléé dans la couche douce.

Situation c, d'énergie E_c : le champ magnétique positif est appliqué de gauche à droite et la couche douce est saturée dans la direction du champ appliqué. La couche dure contient toujours une structure en domaines.

En comparant les énergies de ces différentes configurations, nous pouvons montrer que le phénomène de duplication a lieu lorsque

$$J_F \geq \frac{\sigma_2 \lambda t_2}{4} \left[\frac{1}{\Delta} + \frac{1}{S + \Delta} \right] \quad (2.4)$$

Cette relation est d'une importance capitale puisqu'elle montre qu'en fonction des paramètres de la multicouche, il existe un couplage magnétique minimum pour que la duplication puisse se faire. Dans le cadre de notre étude, en faisant varier l'épaisseur de la barrière isolante, nous avons fait varier J_F . Nous avons montré que dans notre système, le couplage dipolaire minimum pour avoir une duplication est égal à 6 Oe.

Effet des parois de domaines magnétiques

Dans le cadre de cette étude, nous avons franchi une étape supplémentaire dans la compréhension du processus de duplication de domaines magnétiques dans les jonctions tunnel en introduisant la contribution résistive des parois de domaines. En effet, dans l'état dupliqué, la jonction ne présente pas la résistance mesurée lorsque les aimantations des deux couches magnétiques sont parallèles (figure 2.16, entre H_1 et H_2). Dans l'état dupliqué, il existe donc une contribution de résistance supérieure à celle de deux aimantations parallèles. A l'aide d'un modèle de résistances en parallèle, nous avons été en mesure de déterminer de manière qualitative l'évolution de la densité des parois de domaines dans les couches douce et dure en fonction du champ appliqué, faisant à nouveau preuve de la puissance du transport polarisé pour l'étude du renversement de l'aimantation³¹.

³¹ P. Rottländer, M. Hehn, F. Elhoussine, O. Lenoble, A. Schuhl, accepté pour publication dans Phys. Rev. B

5 Couplage antiferromagnétique par effet tunnel

Depuis sa première mise en évidence³², le couplage magnétique entre deux couches ferromagnétiques, à travers une couche séparatrice métallique ou semi-conductrice, a été amplement étudié expérimentalement³³ et théoriquement^{34,35}. Des modèles théoriques ont prédit également la possibilité du couplage d'échange par l'effet tunnel à travers une fine couche isolante. Néanmoins, le couplage d'échange par effet tunnel d'électrons a été très peu abordé d'un point de vue expérimental, étant donné la décroissance extrêmement rapide de l'intensité du couplage avec l'épaisseur de la couche isolante. La mise en évidence d'un tel couplage repose sur la possibilité de réaliser des couches continues d'isolant très minces ($<1\text{nm}$) mais également sur la possibilité de discrimination entre le couplage par effet tunnel et le couplage direct par les trous d'épingle ferromagnétiques qui apparaissent lorsqu'on réduit l'épaisseur de l'isolant, en dessous d'une épaisseur critique. Comme nous l'avons montré dans le paragraphe 2.3.1, les jonctions épitaxiées Fe/MgO/Fe semblent être de bonnes candidates pour cette étude.

Les conditions de croissance des multicouches Fe/MgO/Fe/Co ont été détaillées dans le paragraphe 2.3.1. L'observation d'oscillations RHEED pendant le dépôt de la couche de MgO permet, d'une part, d'affirmer que la croissance de l'oxyde est bidimensionnelle et donc que cette couche isolante est plane pour les épaisseurs de MgO entre 0.5 et 1.7 nm, et, d'autre part, de connaître précisément l'épaisseur de l'isolant.

Le cycle d'aimantation d'une multicouche Fe1/MgO (0.5 nm)/Fe/Co est présenté figure 2.21. On observe un saut d'aimantation en champ positif correspondant au retournement de la couche Fe1. Le cycle mineur de cette couche est nettement décalé vers les champs positifs d'un champ H_{ex} . Ce décalage met en évidence l'existence d'un couplage antiferromagnétique entre les couches ferromagnétiques.

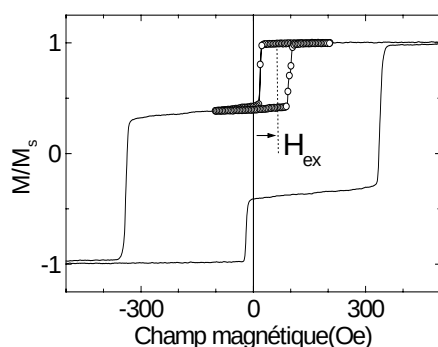


Figure 2.21 : Cycle d'aimantation et cycle mineur pour le système MgO(100)/Fe(22nm)/MgO(0.5nm) / Fe(3.5nm)/Co(50nm).

³² P. Grunberg, R. Schreiber, Y. Pang, M.B. Brodsky and H. Sower, Phys. Rev. Lett. **57**, 2442 (1986).

³³ A. Fert and P. Bruno, in Ultrathin Magnetic Structures, edited by B. Heinrich and J.A.C. Bland (Springer-Verlag Berlin 1994), vol. 2 chap. 2.2, p.82.

³⁴ P. Bruno, Phys. Rev. B **52**, 411 (1995).

³⁵ J. C. Slonczewski, Phys. Rev. B **39**, 6995 (1989).

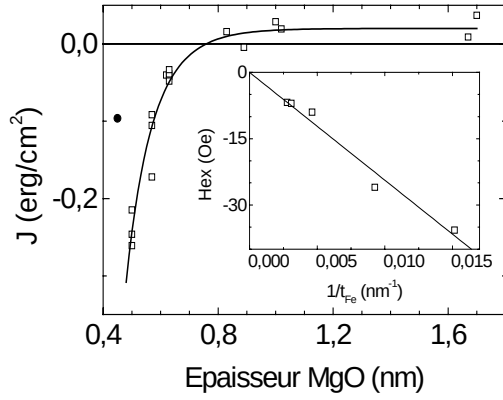


Figure 2.22 : Variation du couplage J en fonction de l'épaisseur de l'isolant. Insert: Variation du champ de couplage H_{ex} avec l'épaisseur de la couche de Fe.

L'étude magnétique d'échantillons simplifiés du type MgO(100)/Fe/MgO a permis de rejeter l'hypothèse d'un champ d'échange AF dû à la présence éventuelle d'un oxyde de Fe. Le décalage des cycles mineurs observé pour des épaisseurs de MgO inférieures à 0.8 nm peut donc être attribué uniquement à des effets de couplage entre les couches ferromagnétiques à travers la barrière isolante.

L'intensité du couplage magnétique J , déterminée à partir de la valeur de H_{ex} , est présentée sur la figure 2.22 en fonction de l'épaisseur de l'isolant³⁶.

Trois régimes sont clairement visibles :

- L'amplitude du couplage AF ($J < 0$) augmente rapidement lorsque l'épaisseur de l'isolant t_{MgO} diminue de 0.8 à 0.5 nm.
- En dessous de 0.5 nm, la diminution de l'amplitude de J indique un couplage biquadratique (point -●- sur la fig. 2.22). Cela peut s'expliquer par la compétition entre le couplage d'échange AF et un couplage F direct de type « trou d'épingle » apparaissant pour des épaisseurs de MgO inférieures à 0.5 nm.
- Enfin, pour des épaisseurs supérieures à 1 nm, nous observons un couplage F ($J > 0$) faible qui peut être aisément attribué à un effet « peau d'orange ». Compte tenu des caractéristiques de l'interface Fe/MgO fournies par la microscopie électronique à haute résolution³⁷, le couplage « peau d'orange » est globalement constant pour nos échantillons, et il est faible, i.e. égal à 0.02 erg/cm^2 .

Sur la figure 2.22, la courbe continue représente la variation du couplage d'échange selon le modèle théorique de Slonczewski qui exprime l'intensité du couplage en termes du couple produit sur l'aimantation des deux couches ferromagnétiques par le transfert tunnel des électrons entre ces deux couches :

$$J = \frac{u}{8\pi^2 d^2} \frac{8k^3(k^2 - k_{\uparrow}k_{\downarrow})(k_{\uparrow} - k_{\downarrow})^2(k_{\uparrow} + k_{\downarrow})}{(k^2 + k_{\uparrow}^2)^2(k^2 + k_{\downarrow}^2)^2} e^{-2kd} \quad (2.5)$$

où u est la hauteur et d la largeur de la barrière isolante, $k_{\uparrow}$ et $k_{\downarrow}$, k sont respectivement les vecteurs d'onde des électrons *spin-up/down* dans les couches ferromagnétiques et dans la barrière tunnel.

³⁶ J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne A. Schuhl, Phys. Rev. Lett. **89**, 107206, (2002).

³⁷ E. Popova, J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, H. Fischer, M. Hehn, F. Montaigne, M. Alnot, S. Andrieu, A. Schuhl, E. Snoeck, V. da Costa, Appl. Phys. Lett. **81**, 1035 (2002).

Ayant choisi des paramètres physiques raisonnables pour le Fe et pour la barrière isolante, le modèle de Slonczewski donne des valeurs théoriques du couplage en très bon accord avec nos résultats expérimentaux.

Pour une épaisseur d'isolant fixe, l'évolution du champ de couplage H_{ex} avec l'épaisseur de la couche de Fe (*insert* fig. 2.22) montre une variation parfaitement linéaire, qui est bien la signature d'un couplage d'interface.

6 Couplage ferromagnétique et fluctuations d'aimantation

Dans ce travail, nous avons choisi d'étudier des jonctions tunnel d'une architecture originale (figure 2.23). L'alignement antiparallèle des aimantations des deux sous-systèmes magnétiques, nécessaire en champ faible (état de basse conductance), est obtenu en employant des matériaux de coercivités très différentes. Le sous-système de détection (analyseur de spin), magnétiquement doux, est constitué d'une bicouche Co/Fe ou CoFe/Fe. Le sous-système magnétique dur (polariseur de spin) est quant à lui fait d'un sandwich asymétrique Co/Ru/Co ou Co/Ru/CoFe appelé structure Artificielle AntiFerromagnétique (AAF), dans lequel les aimantations des couches ferromagnétiques sont maintenues antiparallèles par des interactions de type Rudermann-Kittel-Kasuya-Yoshida véhiculées par les électrons de conduction de la couche séparatrice de ruthénium. La forte rigidité magnétique de ce sous-système AAF résulte de ce qu'il porte un faible moment magnétique net et de ce que les couches magnétiques constituantes présentent une forte friction.

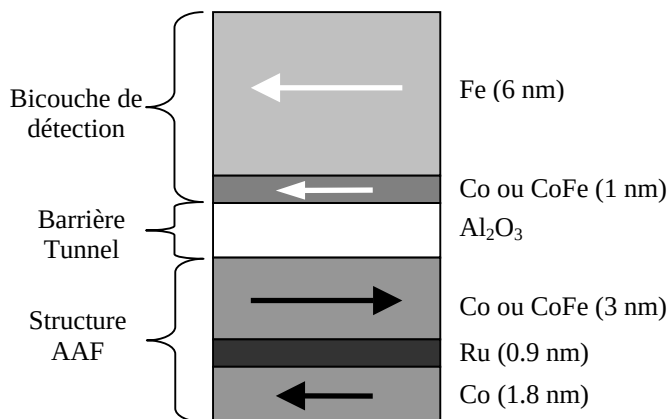


Figure 2.23: Architecture des jonctions tunnel magnétiques étudiées. Le sous-système magnétique doux est constitué d'une bicouche Co/Fe ou CoFe/Fe; le sous-système magnétique dur d'un sandwich Co/Ru/Co ou Co/Ru/CoFe asymétrique.

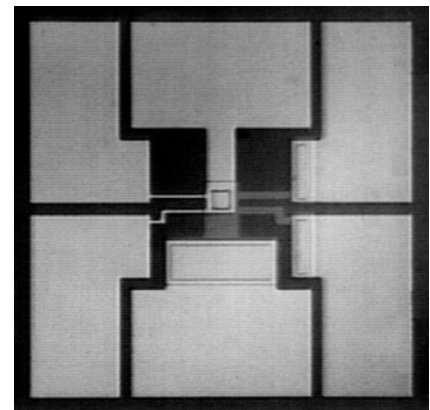


Figure 2.24: Image d'une jonction tunnel de $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ (carré au centre) et de ses plots de contact (rectangles en périphérie).

Les films minces constituant les jonctions Chimie des Matériaux de Strasbourg par thèse de C. Tiusan, la barrière tunnel pulvérisation inverse et oxydation *in situ*, à d'un film d'aluminium préalablement

sont fabriqués à l'Institut de Physique et pulvérisation cathodique dans le cadre de la constituée d'alumine étant obtenue par l'aide d'un plasma d'oxygène et d'argon, déposé. Les jonctions tunnel (figure 2.24)

sont ensuite formées en quatre étapes de microfabrication, alliant lithographie UV et gravure ionique, menées dans les locaux de SIEMENS AG à Erlangen en collaboration avec l'équipe de H. van den Berg.

Propriétés de magnétotransport

Des magnétorésistances tunnel (TMR) de 14 et 27 % ont été obtenues à température ordinaire pour des barrières d'épaisseurs égales à 1.5 et 0.7 nm respectivement. En outre, en faisant varier les dimensions latérales des jonctions ainsi que l'épaisseur de la barrière isolante, nous avons pu ajuster l'impédance des dispositifs dans un large éventail allant de quelques centaines d'Ohms à quelques millions d'Ohms.

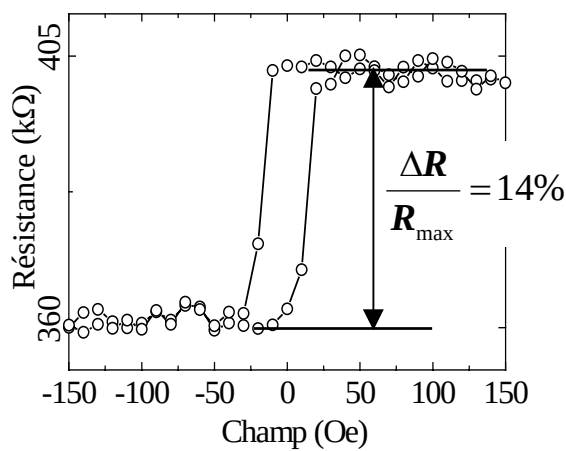


Figure 2.25: Cycle mineur de magnéto-résistance mesuré sur une jonction tunnel de $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ avec une tension appliquée de 100 mV.

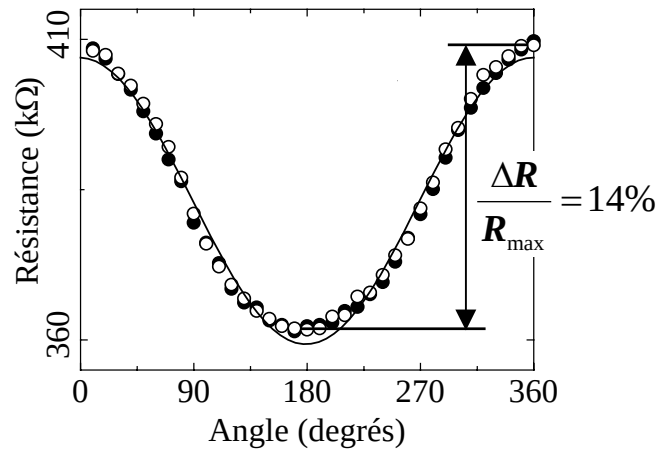


Figure 2.26: Variation de la résistance d'une jonction tunnel de $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ avec l'angle du champ magnétique extérieur ($H = 80 \text{ Oe}$) pour une tension appliquée de 100 mV.

La faisabilité de capteurs magnétiques utilisant ces jonctions tunnel magnétiques a d'ores et déjà pu être démontrée³⁸. Dans une gamme de champs magnétiques allant de 0 à environ 250 Oe, la structure AAF se comporte comme une entité magnétique quasiment rigide. Tout changement de conductance des jonctions est donc, dans cette gamme de champs, uniquement dû à une modification de l'orientation de l'aimantation du sous-système de détection. Ainsi, le retournement de l'aimantation de ce sous-système permet d'obtenir deux états de conductance très différents (figure 2.25), pouvant servir à définir les deux niveaux logiques nécessaires au stockage d'informations binaires (application possible dans les mémoires magnétiques à accès aléatoire, MRAM). De plus, les jonctions présentent une variation sinusoïdale de leur résistance avec l'angle du champ magnétique appliqué, le long duquel l'aimantation du sous-système doux s'aligne en permanence (figure 2.26). Ceci permet d'envisager la fabrication de capteurs d'angle magnétique de haute impédance, aux multiples applications possibles (dans le domaine de l'automobile notamment).

³⁸C. Tiusan, M. Hehn, K. Ounadjela, Y. Henry, J. Hommet, C Mény, H.A.M. van den Berg, L. Baer and R. Kinder, J. Appl. Phys **85** (1999).

Structure en domaines dans l'AAF et effet sur la forme et l'amplitude de la magnétorésistance

Comme nous l'avons mentionné précédemment, dans une gamme de champs magnétiques allant de 0 à environ 250 Oe, la structure AAF se comporte comme une entité magnétique quasiment rigide³⁹.

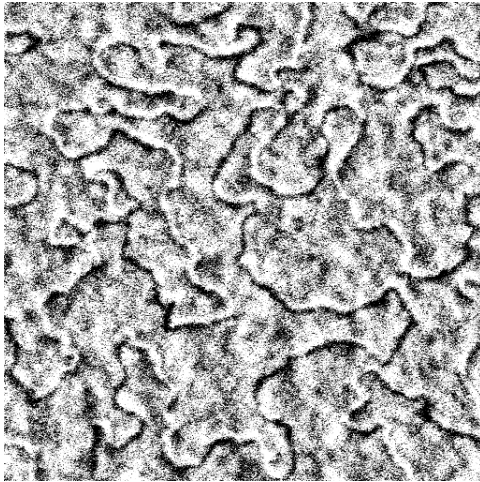


Figure 2.27: Image de microscopie à force magnétique d'un AAF Co/Ru/Co présentant des parois à 360° générées lors du retournement de l'aimantation de l'AAF (taille $10 \times 10 \mu\text{m}^2$).

Elle est quasiment rigide car, comme le montre la figure 2.27, le processus de retournement de deux couches magnétiques fines en interaction avec un fort couplage antiferromagnétique engendre l'apparition de parois à 360° instables dans la couche de Co ou CoFe épaisse mais stable jusqu'à des forts champs dans la couche de Co fine. Ces parois sont à l'origine de l'apparition de canaux supplémentaires de conduction qui peuvent être à l'origine du mauvais fonctionnement d'un capteur basé sur l'utilisation d'un AAF étant donné que la structure en domaines et donc l'amplitude de variation du signal de magnétorésistance dépend de l'histoire magnétique du capteur.

Les AAF sont des systèmes modèles pour aller étudier l'effet de la structure en domaines sur le transport tunnel dépendant du spin. En comparant les variations de la résistance avec le champ appliqué pour une tension de jonction fixée et les mesures MFM à bas champ, il a été possible de retracer l'évolution des aimantations de chaque couche de l'AAF. Pour cela, nous avons utilisé la sensibilité du transport tunnel aux fluctuations de l'aimantation des couches qui sont en contact avec la barrière. Lorsque l'aimantation de la couche de détection est saturée à très bas champ (quelques dizaines d'oersteds), toutes les variations de résistance de la jonction sont dues uniquement aux variations de l'aimantation dans la couche de l'AAF en contact avec la barrière. Le comportement magnétique de chaque couche de l'AAF peut alors être étudié séparément.

En comparant les résultats des mesures avec un modèle simple décrivant l'évolution de deux couches monodomaines couplées antiferromagnétiquement, nous avons pu montrer que de la saturation positive à la saturation négative, le retournement de chaque couche de l'AAF se faisait avec la création et l'annihilation (ou la persistance) de parois de domaines à 360 degrés⁴⁰.

Etant donné que l'aimantation de ces parois à 360 degrés ne fait pas le même angle avec la couche de détection que l'aimantation des domaines, ces deux canaux de conduction ne présentent pas la même résistance. A cause du transport tunnel, ces canaux de conduction sont en parallèle comme le montre la figure 2.28. Soit R_w^0 la résistance d'une paroi et R_d^0 la résistance d'un domaine,

³⁹ C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, H. A. M. van den Berg, V. Da Costa, Y. Henry, Phys. Rev. B **61** (2000).

⁴⁰ C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, Phys. Rev. B. **64**, 104423 (2001).

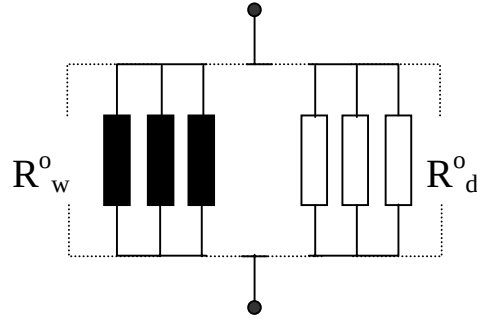


Figure 2.28: Schéma électrique équivalent à un réseau de domaines séparés par des parois à 360 degrés.

la résistance totale R de la jonction sera égale à

$$\frac{1}{R} = \sum_{\text{domaines, parois}} \left(\frac{1}{R_w^0} + \frac{1}{R_d^0} \right) = \frac{d_w}{R_d(\theta)} + \frac{1-d_w}{R_w} \quad (2.6)$$

où d_w est la densité des parois, $R_d(\theta)$ est la résistance liée à l'ensemble des domaines et R_w est la résistance liée à l'ensemble des parois. Dans un modèle simple, $R_w = R_{AP}$, $R_d(\theta) = 0.5 \times (R_P + R_{AP} + (R_P - R_{AP})\cos\theta)$. R_{AP} et R_P sont les résistances de la jonction lorsque les aimantations des électrodes sont antiparallèles et parallèles respectivement, θ est l'angle que fait l'aimantation des domaines avec celle de la couche de détection.

A l'aide de cycles mineurs bien choisis, il est alors possible de déterminer sans ambiguïté les valeurs de R_{AP} , R_P , θ et d_w en fonction du champ magnétique appliqué⁴¹. C'est ainsi que nous avons pu montrer que lorsque le renversement de l'AAF est quasiment complet, il existe une forte densité de parois résiduelles dont la surface représente 18% de la surface de la jonction. Cette dernière estimation est en très bon accord avec celle réalisée à partir de l'imagerie MFM qui montre une densité de parois égale à 15% de la surface de la jonction.

Couplage magnétique

En utilisant la corrélation entre les caractéristiques magnétiques microscopiques déterminées à l'aide de la microscopie à force magnétique et les mesures de cycles mineurs d'aimantation et de magnétorésistance tunnel, nous avons effectué une analyse détaillée des interactions magnétiques qui existent entre les électrodes magnétiques de ces JTM. Il apparaît clairement qu'un couplage ferromagnétique existe entre l'AAF CoFe/Ru/CoFe et la couche de détection CoFe/Fe à partir de la mesure de cycles mineurs⁴². Ce couplage est souvent attribué uniquement au couplage 'peau d'orange'. Cependant, il est également apparu que le cycle d'aimantation d'une couche de Fe, qui avait été introduite dans la couche tampon pour améliorer la rugosité de l'AAF CoFe/Ru/CoFe, était décalé par rapport au champ magnétique

⁴¹ C. Tiusan, M. Hehn, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, 'Spin polarized tunneling as a probe for quantitative analysis of field dependent domain structure in magnetic tunnel junctions', the 8th Joint MMM-Intermag Conference, San-Antonio, Texas, January 7-11, 2000

⁴² C. Tiusan, M. Hehn and K. Ounadjela, Eur. Phys. J. B **26**, 431 (2002).

nul. Un couplage ferromagnétique entre la couche de Fe et l'AAF CoFe/Ru/CoFe a été démontré. Ces deux dernières couches sont cependant séparées par une couche de 30nm de Cu (architecture : Si/Cr/Fe/Cu/CoFe/Ru/CoFe/Al₂O₃/CoFe/Fe/Cu/Cr).

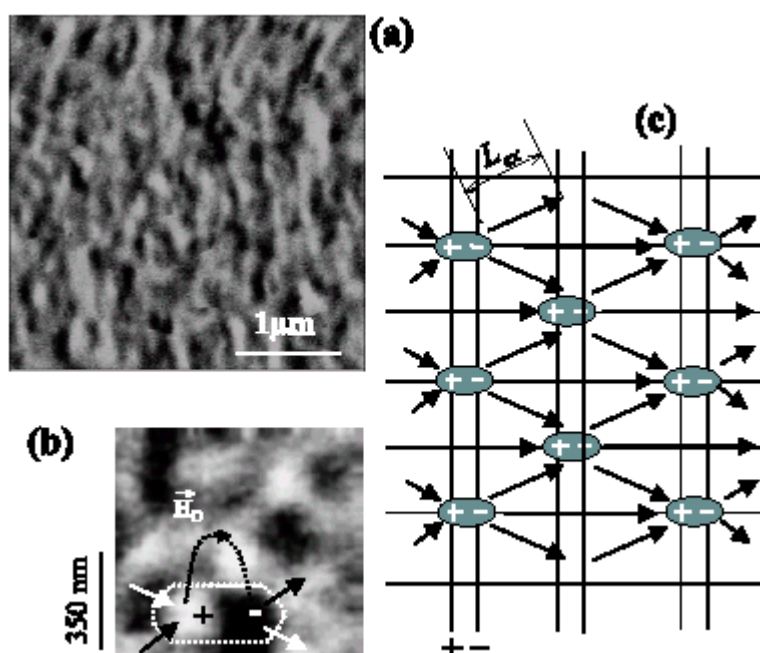


Figure 2.29: (a) image MFM de l'état rémanent de la couche dure d'une JTM avec un AAF CoFe/Ru/CoFe ; (b) zoom de l'image MFM (a) où le champ de fuite d'un dipôle a été représenté ; (c) schéma en deux dimensions de la configuration magnétique de l'état rémanent utilisée pour expliquer l'image MFM (a).

Avec 30 nm de Cu, nous avons pu écarter un couplage type 'peau d'orange' induit par la rugosité des interfaces mais aussi un couplage de type RKKY dont l'intensité diminue avec l'épaisseur de la couche séparatrice. Pour comprendre l'origine du couplage, une image MFM a été mesurée sur l'AAF CoFe/Ru/CoFe. Nous voyons qu'à l'état rémanent, des fluctuations d'aimantation sont visibles. L'interprétation que nous avons faite de cette image est représentée sur la figure 2.29c. Les dipôles magnétiques résultant de la structure type 'ripple' sont tous orientés dans la même direction. Leurs champs de fuite s'ajoutent et la résultante est un champ magnétique de fuite non nul et ainsi un couplage magnétique longue portée apparaît. Cette interprétation a été validée par la mesure d'un cycle mineur sur la couche de Fe de la couche tampon après désaimantation de l'AAF CoFe/Ru/CoFe. Dans ce cas, les dipôles de la structure type 'ripple' sont distribués aléatoirement dans le plan, le champ résultant est nul et le couplage ferromagnétique disparaît.

Il vient alors que la couche de détection CoFe/Fe est soumise à deux interactions provenant de l'AAF CoFe/Ru/CoFe qui résultent en un couplage ferromagnétique global : la première est due au couplage 'peau d'orange' lié à la rugosité de la barrière tunnel ; la seconde est due à la rugosité magnétique de l'AAF CoFe/Ru/CoFe comme cela est expliqué dans le paragraphe ci-dessus. En analogie avec l'équation (2.3), nous avons tenté d'expliquer le phénomène de couplage en introduisant une rugosité magnétique qui provient de la fluctuation d'aimantation liée à la distribution d'aimantation en champ nul.

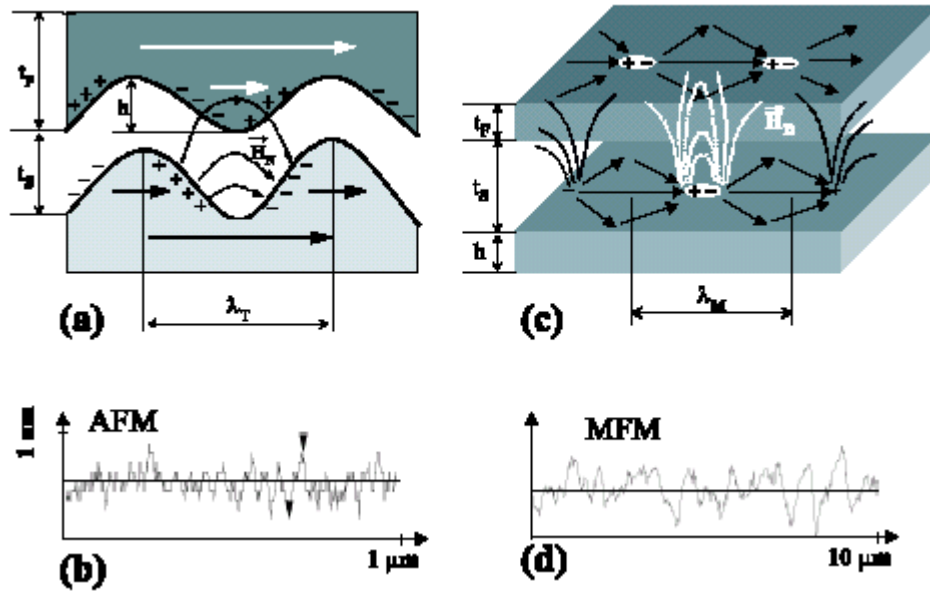


Figure 2.30: Modèle utilisé pour montrer l'analogie entre le couplage 'peau d'orange' (a) issu de la rugosité des interfaces d'une jonction tunnel (b) et le couplage provenant de la rugosité magnétique (c) visualisée sur une coupe d'une image MFM (d).

Il apparaît clairement que la rugosité magnétique possède une période, λ_M , bien supérieure à celle de la rugosité topographique, λ_T . (figure 2.30, b et d). Nous avons évalué $\lambda_M = 10 \lambda_R$. Dans l'équation (2.3), la portée de $H_N(\lambda_M)$ est grande avec une diminution d'un facteur 2 lorsque la distance AAF / couche magnétique passe de 1 à 30 nm (figure 2.31). Voilà pourquoi la couche de Fe de la couche tampon est soumise à une interaction longue portée de l'AAF. A l'inverse, dans l'équation (2.3), la portée de $H_N(\lambda_R)$ est petite avec une disparition totale du couplage lorsque la distance AAF / couche magnétique passe de 1 à 8 nm (figure 2.31). Ainsi, même si le couplage 'peau d'orange' est annulé avec des interfaces métal/isolant planes, un couplage subsiste entre l'AAF et la couche de détection en contact avec la barrière tunnel dont la variation avec l'épaisseur de barrière est quasi nul. Pour annuler ce couplage, il faut réduire les fluctuations d'aimantation de l'AAF en champ nul. C'est faisable en introduisant un axe d'anisotropie dans les couches magnétiques qui forment la structure AAF.

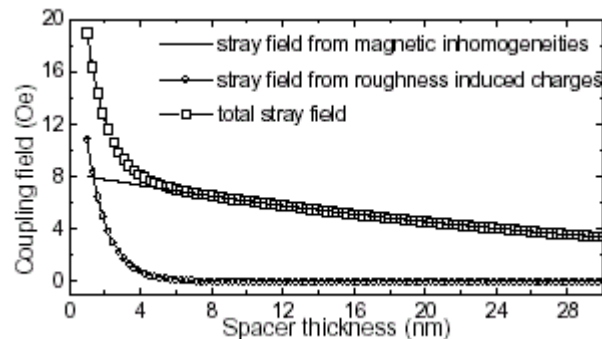


Figure 2.31: Champs de fuite issus de la rugosité topographique et de la rugosité magnétique en fonction de la distance par rapport à l'AAF CoFe/Ru/CoFe.

7 Conclusion du chapitre 2

En conclusion du chapitre 2, deux thèmes centraux peuvent être dégagés :

D'une part, nous avons stabilisé et contrôlé la croissance de couches isolantes et non dépolarisantes, base de travail pour les applications futures à l'électronique de spin. Comme nous allons le voir dans le chapitre 4, l'utilisation de plusieurs couches isolantes de hauteurs différentes est nécessaire au fonctionnement de certains dispositifs. Par rapport aux études classiques de la jonction alumine, nous avons réussi à élaborer des jonctions alternatives, de hauteur de barrière inférieure à 1 eV. Ces barrières seront utilisées pour tester les prédictions du modèle des électrons libres mais aussi pour réaliser des dispositifs complexes à électronique de spin.

D'autre part, suivant les propriétés magnétiques des électrodes des jonctions et les propriétés des barrières tunnel, nous avons pu tester les différents types de couplage qui pouvaient apparaître dans une jonction tunnel magnétique. Pour la première fois, un couplage antiferromagnétique lié au transport tunnel à travers l'isolant a pu être démontré. Nous avons également utilisé le transport tunnel dépendant du spin comme une sonde locale de la configuration d'aimantation des couches magnétiques en contact avec la barrière tunnel. Une corrélation claire entre structure en domaines et résistance de jonction a été établie. Cette dernière a permis de suivre l'évolution de la structure en domaines dans toute la gamme des champs magnétiques, de la saturation positive à la saturation négative.

Chapitre 3

La jonction tunnel : application aux capteurs de champ magnétique

Les champs magnétiques et leur mesure présentent une étonnante variété. Leurs variations temporelles s'étendent sur une vingtaine d'ordres de grandeur depuis l'étude des variations du magnétisme terrestre à la lecture des informations contenues dans un disque dur d'ordinateur. Leur intensité varie sur près de quinze décades depuis les champs créés par l'activité biologique à celui des bobines supraconductrices. Depuis la boussole jusqu'aux mesures par résonance magnétique nucléaire, les techniques de détection et de mesure de ces champs sont elles aussi extrêmement nombreuses et variées. **L'électronique de spin** est naturellement désignée pour enrichir encore les possibilités de ces mesures.

Ces dernières années, les capteurs magnétorésistifs ont pris une place de plus en plus importante. Leur technologie de fabrication semblable et le coût associé les placent en concurrents directs des capteurs à effet Hall. Dans le domaine de l'enregistrement magnétique, ils ont définitivement supplanté les têtes inductives permettant d'accroître chaque année les densités d'enregistrement de 60%. Les atouts de ces capteurs reposent sur la diversité des réponses de leur partie sensible sous l'action d'un champ magnétique et de leur imbrication afin de réaliser les différentes fonctions d'un capteur : capteur de position, de rotation, d'intensité de champ.....

La conductance G d'un élément magnétorésistif composé de deux couches magnétiques, qu'il soit de type magnétorésistance géante (MRG) ou magnéto-résistance tunnel (MRT), dépend du cosinus de l'angle entre les moments en contact avec soit la couche métallique non magnétique (MRG), soit la couche isolante (MRT). Il vient alors

$$G(\theta) = \overline{G} \left(1 + \frac{\overline{MR}}{2} \cos(\theta) \right) \quad (3.1)$$

où θ est l'angle entre les deux moments magnétiques, $\overline{G} = \frac{G_p + G_{ap}}{2}$, $\overline{MR} = \frac{G_p - G_{ap}}{\overline{G}}$ et G_p et G_{ap} sont les conductances lorsque les moments magnétiques sont parallèle et antiparallèle respectivement.

Pour des valeurs de $\overline{MR}$ petites, on observera au premier ordre une variation de résistance de l'élément magnétorésistif égale à

$$R(\theta) = \overline{R} \left(1 - \frac{\overline{MR}}{2} \cos(\theta) \right) \quad (3.2)$$

où $\overline{R} = \frac{R_p + R_{ap}}{2}$, $\overline{MR} = \frac{R_{ap} - R_p}{\overline{R}}$, R_p et R_{ap} sont les résistances lorsque les moments magnétiques sont parallèle et antiparallèle respectivement.

Tout le jeu du 'magnéticien' consiste alors à construire une structure MRG ou MRT dont la réponse magnétique correspond aux besoins spécifiques de l'application visée. Il s'agit donc de régler la dépendance du $\cos(\theta)$ vis-à-vis du champ magnétique à mesurer. Au cours de mes travaux de recherche, nous avons développé plusieurs types de capteurs ou partie sensible de capteur utilisant soit les propriétés hystérétiques intrinsèques aux matériaux magnétiques, soit leurs propriétés réversibles induites après association avec d'autres matériaux. Du point de vue du transport tunnel, ce chapitre doit beaucoup à la collaboration soutenue avec P. Alnot et son équipe du LPMIA de Nancy par le biais de la salle blanche de microtechnologie. Il doit également beaucoup aux nombreux postdoctorants de NanoMEM avec notamment E. Jouguelet, F. Canet et M. Sajieddine ainsi qu'à F. Montaigne.

1 Capteur bas champ utilisant les propriétés hystérétiques des matériaux magnétiques

Les capteurs de champ magnétique de type 'Flux-gate', qui utilisent les propriétés hystérétiques des matériaux magnétiques, sont connus pour leurs hautes résolution et précision et leur faible coût de fabrication. Cependant, ces capteurs ne sont pas adaptés à la miniaturisation. Pour la réalisation de microsenseurs, les capteurs basés sur la magnéto-résistance géante présentent les meilleures caractéristiques. En effet, les propriétés magnéto-résistives sont quasiment indépendantes de la taille de l'élément sensible et de fortes magnéto-résistances peuvent être obtenues dans des éléments submicroniques.

Nous proposons ici de combiner les avantages des deux capteurs en remplaçant la bobine caprice du capteur de type 'Flux-gate' par un capteur magnéto-résistif à réponse hystérétique. Etant donné que la taille de ce capteur magnéto-résistif n'a pas de limitation inférieure, il sera possible de créer de tout petits éléments magnétiques qui posséderont un comportement monodomaine et donc une dynamique de retournement très rapide et un bruit magnétique très réduit. De plus, la consommation d'énergie sera grandement réduite par rapport à un capteur 'Flux-gate' classique.

Dans ce projet, nous sommes maître d'œuvre pour la réalisation de la partie magnéto-résistive du capteur, donc la partie sensible du capteur. Le Laboratoire d'Electronique et de Physique des Systèmes Instrumentaux de Strasbourg, dans le cadre de la thèse de Jean-Baptiste Kammerer, est en charge de l'électronique de pilotage et de traitement du signal. Le cahier des charges est très clair : il faut optimiser les propriétés magnétiques des électrodes afin que la couche douce de la jonction tunnel se renverse de la manière la plus abrupte possible, de manière reproductible avec un petit champ coercitif, et afin que la couche dure de la jonction tunnel ait un champ coercitif petit pour la renverser avec un petit pulse de courant et que son renversement soit aussi reproductible que possible. Il doit surtout ne pas dépasser le maximum de champ que peut produire l'électronique.

Un champ magnétique dont la variation d'intensité avec le temps est triangulaire est appliqué selon l'axe facile de la jonction tunnel (figure 3.1.A). L'intensité maximale de ce champ doit être supérieure aux champs coercitifs des deux couches magnétiques de la jonction tunnel. Sur la pente montante du créneau triangulaire, lorsque l'intensité du champ est égale au champ coercitif de la couche la plus douce, H_{CS} , une augmentation de la résistance de la jonction est observée (figure 3.2). Les aimantations des couches magnétiques deviennent antiparallèles et cet état de haute résistance est conservé jusqu'à ce que l'intensité du champ soit égale au champ coercitif de la couche la plus dure, H_{CH} . Les aimantations des couches magnétiques

redeviennent parallèles. On observe alors un créneau dans la variation temporelle de la résistance de la jonction. Sur la pente descendante du créneau triangulaire, lorsque l'intensité du champ est égale à l'opposé du champ coercitif de la couche la plus douce, $-H_{CS}$, une augmentation de la résistance de la jonction est observée.

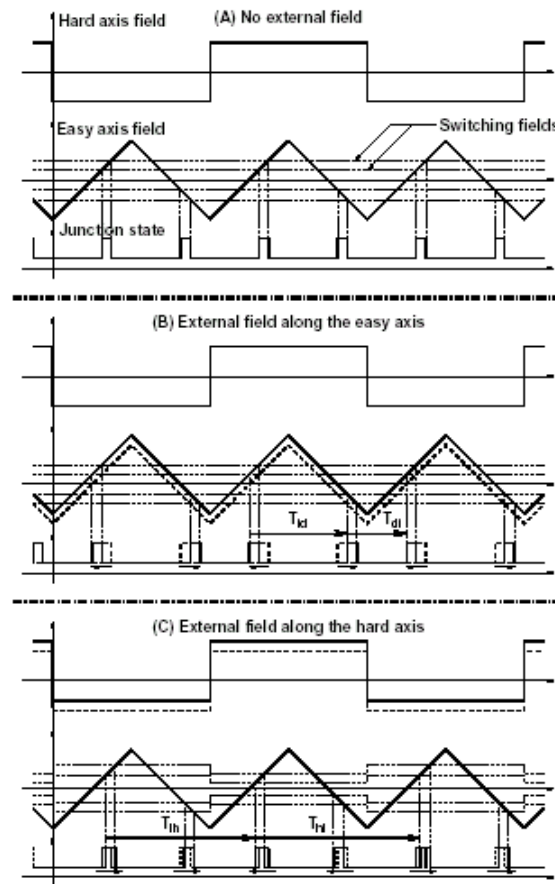


Figure 3.1 : variation temporelle du champ appliqué selon l'axe difficile (1ere ligne), du champ appliqué selon l'axe facile (2eme ligne) et de la résistance de la jonction (3eme ligne) lorsque le champ à mesurer est nul (A). Variation temporelle du champ résultant selon l'axe difficile, du champ résultant selon l'axe facile et de la résistance de la jonction lorsqu'un champ non nul est à mesurer selon l'axe facile (B) et lorsqu'un champ non nul est à mesurer selon l'axe difficile (C).

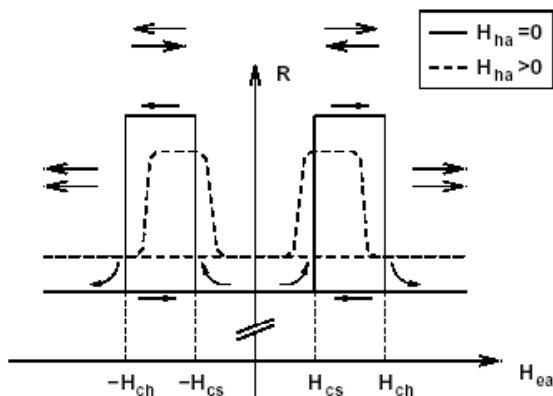


Figure 3.2 : variation de la résistance d'une jonction tunnel en fonction du champ appliqué selon l'axe de facile aimantation (trait continu). Lorsqu'un champ magnétique est appliqué selon l'axe difficile d'aimantation, la magnétorésistance chute mais également le champ coercitif des deux couches magnétiques (trait pointillé).

Les aimantations des couches magnétiques deviennent antiparallèles et cet état de haute résistance est conservé jusqu'à ce que l'intensité du champ soit égale à l'opposé du champ coercitif de la couche la plus dure, $-H_{CH}$. Les aimantations des couches magnétiques redeviennent parallèles. On observe alors un autre créneau dans la variation temporelle de la résistance de la jonction. Et ainsi de suite.... Etant donné que le cycle de résistance fonction du champ appliqué est symétrique en champ, le temps qui s'écoule entre deux créneaux successifs est égal à la demi-période du champ triangulaire exciteur.

Lorsqu'un champ à mesurer, de fréquence inférieure à la fréquence du champ exciteur, est appliqué selon l'axe facile d'aimantation, la séquence décrite ci-dessus est modifiée comme l'indique la figure 3.1.B. En considérant un champ positif, le pulse généré sur la pente montante du créneau triangulaire apparaît plus tôt que le même pulse généré lorsque le champ magnétique à mesurer est nul. A l'inverse, le pulse généré sur la pente descendante du créneau triangulaire apparaît plus tard que le même pulse généré lorsque le champ magnétique à mesurer est nul. Ainsi, le champ à mesurer H_{EA} est déterminé en considérant 3 pulses de résistance de jonction successifs et en mesurant le temps écoulé entre les deux premiers, T_{id} , et entre les deux derniers, T_{di} . Il vient alors que

$$T_{id} - T_{di} = 4 \frac{H_{EA}}{K} \quad (3.3)$$

où K est la pente du signal triangulaire.

Il est possible d'étendre le fonctionnement de ce capteur à la mesure d'une composante transverse de champ magnétique, perpendiculaire à l'axe de facile aimantation des électrodes de la jonction tunnel. Pour cela, un champ exciteur transverse carré est appliqué avec une période double de celle du champ exciteur triangulaire de l'axe facile. En appliquant un champ transverse, on modifie le renversement de l'aimantation des électrodes magnétiques et notamment on réduit le champ coercitif (figure 3.2, pointillés). Cet effet, vérifié expérimentalement, est prédit dans le modèle simple de Stoner et Wohlfarth. De plus, mettre un champ exciteur transverse n'a aucune incidence sur la mesure de la composante de champ à mesurer selon l'axe facile d'aimantation. Un vrai détecteur 2D est alors réalisable.

Une modulation supplémentaire apparaît alors dans le train d'impulsion des résistances de la jonction tunnel. En champ transverse à mesurer nul, étant donné que le cycle de résistance fonction du champ appliqué selon l'axe facile avec un champ transverse très inférieur au champ d'anisotropie est symétrique en champ, le temps qui s'écoule entre deux créneaux successifs est égal à la demi-période du champ triangulaire exciteur. Avec un champ transverse à mesurer positif, les pulses générés par le signal triangulaire lorsque le signal carré est négatif apparaissent plus tard que les mêmes pulses générés lorsque le champ magnétique à mesurer transverse est nul. Au contraire, les pulses générés par le signal triangulaire lorsque le signal carré est positif apparaissent plus tôt que les mêmes pulses générés lorsque le champ magnétique à mesurer transverse est nul. Ainsi, le champ à mesurer selon l'axe difficile H_{HA} est déterminé en considérant 5 pulses de résistance de jonction successifs et en mesurant le temps écoulé entre le premier et le troisième, T_{hl} , et entre le troisième et le cinquième, T_{hl} . Il vient alors que

$$T_{hl} - T_{lh} \approx 4 \frac{A}{K} H_{HA} \quad (3.4)$$

où A est une constante qui inclut la variation du champ coercitif avec le champ transverse appliqué.

Nous avons optimisé les jonctions tunnel pour cette application spécifique. Le permalloy est connu pour ses propriétés magnétiques douces et pour le renversement abrupt de son aimantation. Ce matériau a été retenu pour la réalisation de la couche douce. Pour la couche dure, il s'est avéré que les matériaux dont le retournement de l'aimantation se fait par nucléation et propagation de parois de domaines ne sont pas adaptés à cette application car le retournement de l'aimantation s'effectue à des champs différents, de cycle à cycle. De plus, pour ces matériaux, il est apparu un fort couplage dipolaire entre les couches, entraînant l'apparition d'un cycle très arrondi pour le permalloy à hautes fréquences. L'ensemble de ces problèmes a été résolu par l'utilisation d'un alliage CoPt avec l'adjonction d'une couche de Co supplémentaire (figure 3.3). Par l'ajustement de l'épaisseur de cette dernière, le coercitif de l'ensemble CoPt/Co a pu être modifié pour répondre aux exigences de l'application.

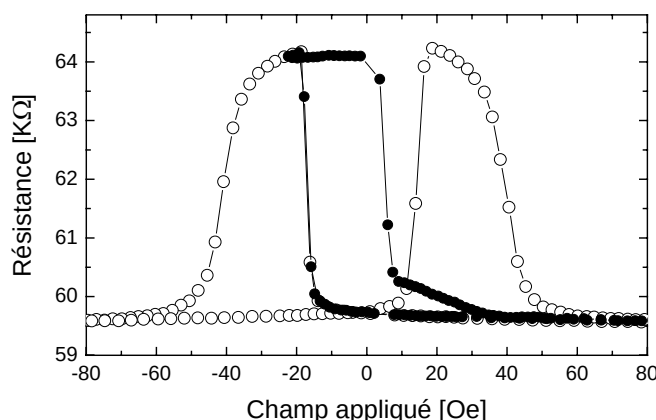


Figure 3.3 : cycle complet (-o-) et cycle mineur (-●-) mesurés sur une jonction Ta/Co₅₀Pt₅₀(10nm)/Co(3nm)/Al₂O₃(1.5nm)/Py(20nm)/Pt(5nm) selon les axes faciles d'aimantation.

La sensibilité du capteur dans les deux directions du plan, le long et perpendiculairement à l'axe de facile aimantation des couches magnétiques, a été mesurée en utilisant une bobine de Helmholtz calibrée, pilotée par une source de courant DC. La réponse du prototype lorsque le champ à mesurer est le long de l'axe facile est linéaire (figure 3.4, x). Cela est lié à l'utilisation d'un signal d'excitation triangulaire. La tension de sortie du prototype en volts est donnée par la relation $0.41 + 1086 H_{EA}$ où H_{EA} est en Oe. Ainsi, la sensibilité du capteur selon l'axe facile est égale à 1086 V.T^{-1} . La réponse selon l'axe difficile est non linéaire et similaire à celle d'un fluxgate (figure 3.4, o). Autour du champ nul, la variation est linéaire et la tension de sortie du prototype en volts est donnée par la relation $0.02 + 533.5 H_{HA}$. Ainsi, la sensibilité du capteur selon l'axe difficile est égale à 586.8 V.T^{-1} . La résolution de ce capteur bidimensionnel a été évaluée. De la mesure de la densité spectrale de bruit, le bruit de fond a été évalué à $2 \mu\text{T.Hz}^{-1/2}$ ce qui correspond à une résolution actuelle de $15 \mu\text{T}$.

Nous rapportons ici la première réalisation de ce type de capteur. Les performances sont largement perfectibles :

- réduction du niveau de bruit de l'électronique de traitement du signal.

- intégration des bobines de production des champs magnétiques triangulaire et carré pour réduire le bruit le long de la chaîne de traitement du signal.
- diminution de la taille de la jonction tunnel afin d'obtenir un retournement de l'aimantation par rotation. Ainsi, une plus haute fréquence de fonctionnement sera possible.
- adaptation à la mesure des composantes de champ dans les trois directions de l'espace.

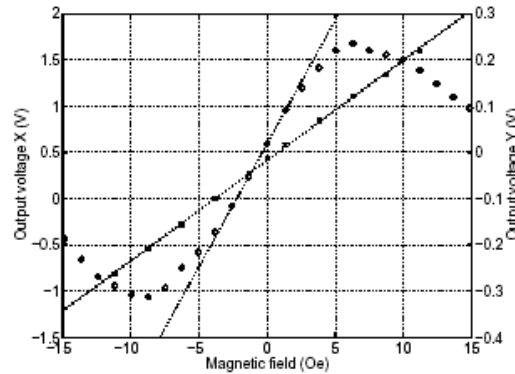


Figure 3.4 : Signal de sortie du prototype lorsque le champ magnétique à mesurer est selon l'axe facile d'aimantation (x). Signal de sortie du prototype lorsque le champ magnétique à mesurer est selon l'axe difficile d'aimantation (o).

2 Propriétés réversibles et capteur mi et haut champ

Un capteur de type MRG ou MRT fait intervenir deux couches magnétiques. Idéalement, le moment d'une des deux couches magnétiques, dite **couche dure**, est rendue insensible au champ extérieur (elle est dite *bloquée*) alors que le moment magnétique de l'autre couche, dite **douce**, lui est directement lié. Les différentes réponses de la partie sensible du capteur dépendront alors de la relation existant entre le moment magnétique doux et le champ magnétique. Ce lien est principalement régi par le champ d'anisotropie. L'introduction de directions d'anisotropie et de blocage confère aux capteurs un critère essentiel : la réversibilité. La réponse ne dépend alors que du champ à l'instant de la mesure et non de l'histoire magnétique du capteur.

Lorsque le champ d'anisotropie est plus important que le champ à mesurer, le moment magnétique reste autour de la direction facile et n'en dévie que sous l'action de la composante du champ perpendiculaire à la direction facile. Le signal résistif étant proportionnel au cosinus de l'angle entre les moments magnétiques (relation (3.2)), le maximum de sensibilité est obtenu lorsque le moment de la couche dure est perpendiculaire à la direction facile de la couche douce en champ appliqué nul. Pour faire un capteur sensible utilisant les propriétés réversibles des matériaux magnétiques, il convient d'une part de stabiliser une configuration des aimantations croisées en champ appliqué nul pour obtenir le maximum de sensibilité et d'autre part de contrôler l'anisotropie, en direction et en intensité, de la couche sensible. Dans le cadre de mes recherches, des solutions ont été proposées.

2.1 Une bicouche antiferromagnétique/ferromagnétique comme couche sensible

En collaboration avec la SNR-Annecy et dans le cadre de la thèse CIFRE de Grégory Malinowski, nous sommes en charge à Nancy d'étudier et de développer la partie sensible d'un capteur linéaire de champ magnétique. Ce dernier sera intégré directement sur un ASIC de traitement du signal afin de réaliser un encodeur de haute précision. La partie sensible est composée d'une jonction tunnel dont l'une des électrodes magnétiques doit être insensible au champ magnétique à mesurer et l'autre doit avoir un moment magnétique dont la composante, alignée avec le champ magnétique à mesurer, varie linéairement avec l'intensité du champ.

2.1.1 Principe de fonctionnement

Nous avons proposé de réaliser la couche de détection, partie sensible au champ magnétique, en associant un matériau ferromagnétique à un matériau antiferromagnétique. Conventionnellement, cette association est utilisée pour la réalisation de la couche magnétique de référence. Ici, nous utilisons le fait que perpendiculairement à l'axe d'anisotropie induit par le matériau antiferromagnétique, la réponse magnétique est souvent réversible et même linéaire dans une gamme de champ adaptable. En effet, lorsque le champ magnétique est appliqué perpendiculairement à l'axe du champ d'échange, le retournement de l'aimantation se fait essentiellement par rotation locale avec éventuellement la formation de parois à 360°. Cependant, cette rotation est quasiréversible ce qui laisse présager l'utilisation d'un tel système pour la couche de détection du capteur d'intensité de champ. Un dépôt d'un brevet visant la protection de cette innovation a été effectué par la société SNR.

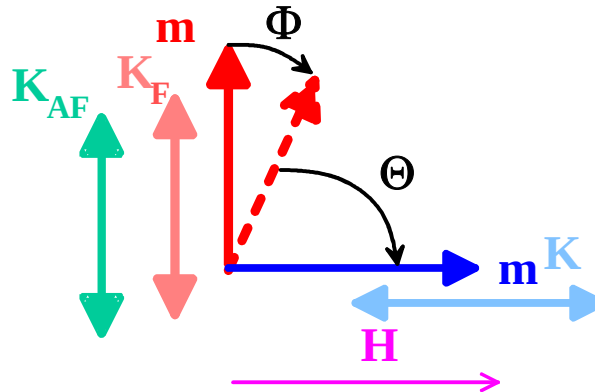


Figure 3.5 : Configuration d'aimantations dans le capteur proposé à la société SNR. La couche sensible est composée de l'association d'une couche antiferromagnétique avec son anisotropie K_{AF} et d'une couche ferromagnétique avec son anisotropie K_F . L'aimantation de la couche de référence m est orientée à 90° de K_{AF} , le long de son anisotropie K . Le champ magnétique à mesurer est orienté selon K .

De manière formelle, l'énergie par unité de surface d'un système couche ferromagnétique/couche antiferromagnétique lorsque le champ H est appliqué perpendiculairement à l'axe d'anisotropie/axe d'échange est donnée par

$$E = -M_s H t_F \sin(\Phi) - J \cos(\Phi) + K_F t_F \sin^2(\Phi) \quad (3.7)$$

et la pente de la réponse de l'aimantation avec le champ appliqué est donnée par

$$\left. \frac{\partial M}{\partial H} \right|_{H=0} = \left(2 \frac{K_F}{M_S} + \frac{J}{t_F M_S} \right)^{-1} = \alpha(F, AF) \quad (3.8)$$

où M_S est l'aimantation à saturation de la couche ferromagnétique, t_F est l'épaisseur de la couche ferromagnétique, K_F est la constante d'anisotropie de la couche ferromagnétique et J est le couplage existant entre la couche ferromagnétique et la couche antiferromagnétique (J dépend de l'épaisseur de la couche antiferromagnétique). Nous voyons très bien que la sensibilité du capteur peut être modifiée suivant le domaine de mesure du capteur.

Lorsque $K_F = 0$, on trouve même une expression analytique de Φ à savoir

$$\Phi = \text{Arctg} \left(\frac{M_S t_F}{J} H \right) \quad (3.9)$$

Dans la configuration de la figure 3.5, la résistance de la jonction tunnel de l'équation (3.2) devient alors

$$R(H) = \frac{R_p + R_{ap}}{2} + \frac{R_p - R_{ap}}{2} \sin \left(\arctg \left(\frac{H}{H_{ex}} \right) \right) \quad (3.10)$$

où H_{ex} est le champ d'échange défini par $J/(M_S t_F)$

Lorsque H est inférieur à H_{ex} , l'expression (3.10) se réduit finalement à

$$R(H) = \frac{R_p + R_{ap}}{2} + \frac{R_p - R_{ap}}{2} \frac{H}{H_{ex}} \quad (3.10)$$

On définit alors la sensibilité électrique qui est donnée par $S_e = (R_p - R_{ap})/2$. Elle dépend des caractéristiques de la jonction tunnel, à savoir l'épaisseur et la hauteur de la barrière tunnel, la surface de la jonction et sa MRT. S_e peut donc être ajustée en modifiant la nature de la barrière ou celle des électrodes.

On définit également la sensibilité magnétique qui est donnée par $S_m = 1/H_{ex}$. Elle dépend des caractéristiques de la bicouche F/AF et donc de l'épaisseur de la couche ferromagnétique et de la couche antiferromagnétique, de la constante d'échange à l'interface, de l'aimantation à saturation de la couche ferromagnétique.

Finalement, la sensibilité totale du capteur est donnée par $S = S_e \times S_m$.

2.1.2 Sensibilité magnétique en fonction des paramètres de la bicouche F/AF

Comme nous l'avons vu précédemment, il est possible de modéliser le renversement de l'aimantation dans un système couche ferromagnétique/couche antiferromagnétique. Dans un premier temps, afin de nous assurer de la validité du modèle, nous avons réalisé des mesures magnétiques par Effet Kerr Magnéto-Optique (MOKE) sur des bicouches dont la composition est Ta(5 nm)/Py(x nm)/IrMn(10 nm)/Ta(5 nm).

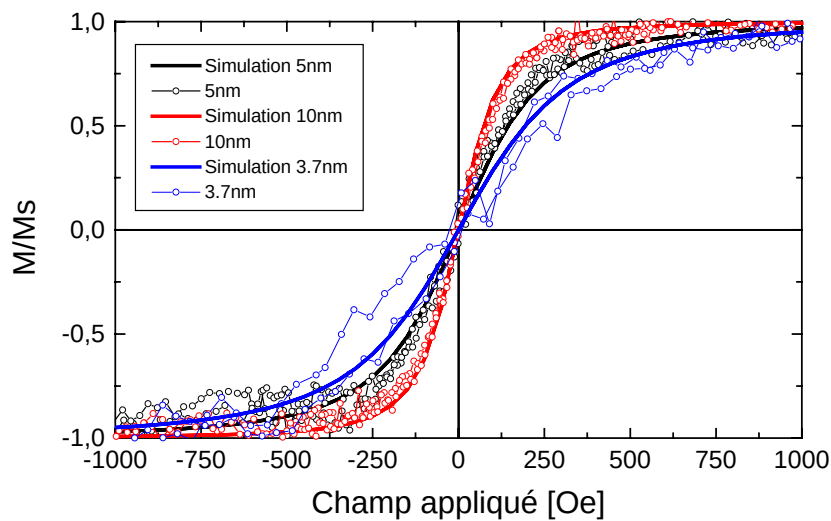


Figure 3.6 : cycles de rotation Kerr mesurés perpendiculairement à l'axe d'anisotropie induit par la couche antiferromagnétique pour des échantillons Substrat-Si/Ta₅/Py_x/IrMn₁₀/Ta₅ avec $x = 10\text{nm}$ (expérience -o- et simulation ---), $x = 5\text{ nm}$ (expérience -o- et simulation ---), $x = 3.7\text{ nm}$ (expérience -o- et simulation ---).

Nous pouvons constater un bon accord entre les simulations et les mesures expérimentales. Ainsi, nous montrons que la sensibilité magnétique du capteur peut être modifiée en jouant sur l'épaisseur de la couche ferromagnétique comme cela est prévu par le modèle. En terme de sensibilité, le capteur est donc dimensionnable.

L'obtention de cycles d'aimantation centrés en champ nul (aimantation = 0 pour $H = 0$) a nécessité le développement d'un four de recuit original. En général, le champ magnétique est produit dans un four de recuit. Ici, nous effectuons le contraire : le champ magnétique entoure le four de recuit. Ce dernier est constitué d'une lampe qui chauffe un support en cuivre. Classiquement, le chauffage est obtenu à l'aide d'un filament chauffé mais un tel filament crée un champ de recuit local parasite. A l'aide de cette lampe, nous nous affranchissons de tout champ parasite.

2.1.3 Linéarité et réversibilité

Lorsque l'on considère un capteur de champ magnétique, linéarité et réversibilité du signal analogique délivré sont les paramètres cruciaux pour réaliser un capteur fiable. C'est pour cela que nous avons procédé à la caractérisation de ces jonctions en fonction de la plage de champ à mesurer. De la saturation positive à négative, les jonctions tunnel présentent bien les caractéristiques attendues (figure 3.7, gauche).

Une variation linéaire et réversible de la résistance avec le champ appliqué est obtenue dans la gamme de champ $-50 / 50\text{ Oe}$ (figure 3.7, droite). La non-linéarité du signal, calculée à partir de la différence entre des cycles mineurs successifs et un ajustement linéaire de la courbe, est constante et inférieure à 0.05% sur toute l'étendue de la gamme de champ comprise entre $\pm 50\text{ Oe}$. Pour un champ appliqué donné, la variation de résistance de cycle mineur à cycle mineur est donc inférieure à 0.05%, ce qui montre la réversibilité du capteur.

Au contraire, lorsque la gamme de champ à mesurer est étendue à $-100 / 100$ Oe, des irréversibilités et des non linéarités apparaissent. Une non-linéarité supérieure à 0.25% est clairement observée ainsi que son évolution temporelle. L'évolution temporelle de cette non-linéarité est clairement liée à l'action du champ à mesurer sur la couche dure de référence. Si nous voulons étendre le fonctionnement de ce capteur à de forts champs magnétiques, il est nécessaire de développer une nouvelle architecture de couche dure. Ici, du Pt avait été intégré dans la couche de Co pour la durcir. Il faudra songer à remplacer cet alliage par une bicouche F/AF dont l'axe d'anisotropie sera aligné dans la direction du champ à mesurer.

La sensibilité du capteur, jusqu'à $50 \text{ } \Omega/\text{Oe}$, est bien meilleure que celle rapportée dans la littérature pour d'autres architectures de jonctions tunnels. De plus, nous montrons bien que la sensibilité des capteurs à base de jonction tunnel est bien meilleure que celle obtenue à partir d'autres dispositifs de type sonde de Hall, AMR ou GMR.

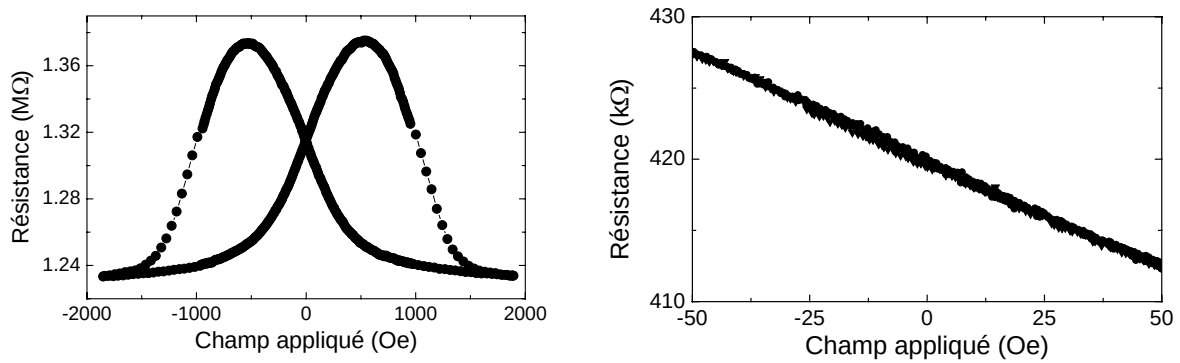


Figure 3.7 : à gauche, résistance en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculaire à l'axe d'échange. A droite, cycle mineur pour une gamme de champs compris entre ± 50 Oe.

2.1.4 Sensibilités électrique et magnétique en fonction de la température

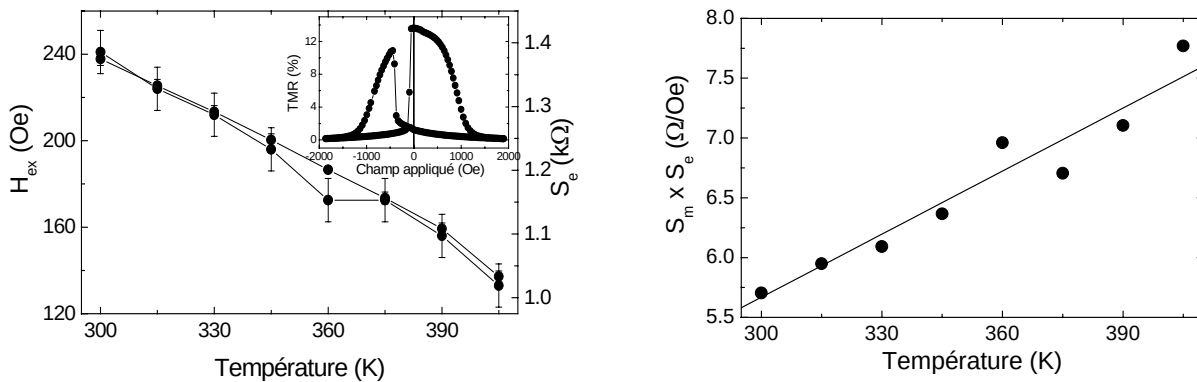


Figure 3.8 : A gauche, variation de la sensibilité magnétique et de la sensibilité électrique avec la température. En insert, un cycle de résistance avec le champ appliqué dans la direction du champ d'échange. A droite, variation de la sensibilité totale du capteur avec la température.

Le capteur que nous devons fournir est destiné à des applications dans l'automobile. Pour cela, il nous est demandé de fournir un capteur dont les caractéristiques sont indépendantes de la température dans une gamme de température comprise entre -50°C et 200°C . Nous avons donc entrepris une caractérisation des jonctions en fonction de la température.

Lorsque le champ est appliqué dans la direction de l'axe d'anisotropie induit par le champ d'échange, nous avons directement accès de manière indépendante à la sensibilité magnétique et à la sensibilité électrique à partir d'un cycle complet de variation de la résistance avec le champ appliqué (insert de la figure 3.8, gauche). La première se déduit du décalage par rapport au champ nul du retournement de la bicouche F/AF et la seconde se déduit directement de la magnétorésistance totale. Nous obtenons une variation linéaire du champ d'échange avec la température et la sensibilité magnétique augmente avec la température. Plus intéressante, une variation quasi linéaire de la sensibilité électrique avec la température est également observée. En définitif, la sensibilité totale augmente avec la température avec une variation linéaire comme nous le voyons sur la figure 3.8, droite.

Les mesures de résistance avec la température pour des températures supérieures à 300 K sont rarement rapportées dans la littérature. Cependant, en regardant la figure (3.8, droite) de plus près, nous observons que la variation de résistance avec la température est similaire à celle prédite théoriquement par Stratton¹

$$R(T) = R(0) \left(1 - C \frac{d}{\sqrt{\Phi}} T^2 \right) \quad (3.11)$$

où $C = 2.32 \times 10^{-4}$ en considérant une masse effective égale à 1 pour l'électron, d est l'épaisseur de la barrière en nm et Φ est la hauteur de la barrière.

De l'équation (3.11), il apparaît clairement que la variation de la résistance d'une jonction tunnel avec la température peut être ajustée en fonction du couple (d, Φ) . D'après la figure (3.8, droite), la sensibilité totale augmente avec la température. Il faut alors que la résistance de la jonction diminue plus rapidement avec la température : d doit être augmentée ou Φ doit être diminuée. Comme l'alumine semble être le matériau privilégié pour les applications, nous avons choisi d'augmenter d .

La sensibilité totale des jonctions tunnel a été mesurée pour des jonctions plus résistives car plus épaisses en fonction de la température (figure 3.9). La variation de la sensibilité totale avec la température se trouve fortement réduite, d'un facteur 30 par rapport aux résultats précédents.

Ainsi, pour la première fois, nous donnons une solution pour contourner la variation intrinsèque de la résistance d'une jonction tunnel avec la température. Ce résultat est très important du point de vue des applications. En effet, jusqu'à présent, il était possible de se soustraire à la variation en température de l'offset de résistance d'un capteur utilisant une MRG ou une MRT. Pour cela, on utilisait classiquement un pont de Wheatstone équilibré en champ nul. On s'affranchissait alors du terme constant $(R_p + R_{ap})/2$ de l'équation (3.10). Cependant, on était toujours et encore tributaire de la variation en température de $(R_p - R_{ap})/2$. Ici, le traitement du signal du capteur se trouve grandement simplifié.

¹ R. Stratton, Phys. Chem. Solids **23**, 1177 (1962).

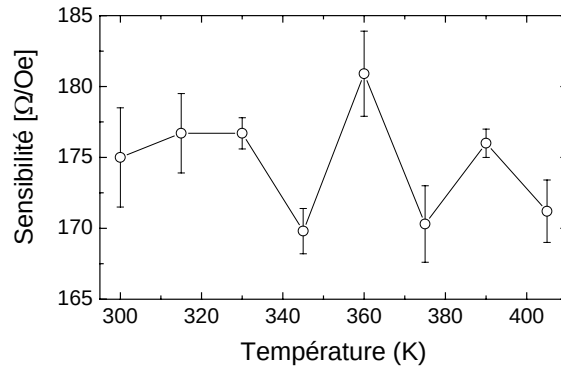


Figure 3.9 : Variation de la sensibilité totale d'une jonction tunnel dont l'épaisseur a été optimisée pour réduire la variation de la sensibilité totale avec la température.

2.2 Une configuration d'aimantation croisée avec une couche à aimantation perpendiculaire

Nous avons vu que dans le cas de structures MRG ou MRT, le maximum de sensibilité est obtenu lorsque le moment de la couche dure est perpendiculaire à la direction facile de la couche douce en champ appliqué nul. L'exemple précédent est représentatif de deux aimantations planaires. Le contrôle de l'anisotropie de la couche douce est réalisé à l'aide de l'anisotropie induite par le couplage d'échange à l'interface avec la couche antiferromagnétique.

Il est possible d'utiliser l'anisotropie induite par la forme de l'échantillon et notamment l'anisotropie de forme liée au fait que nous utilisons des couches minces pour réaliser les jonctions tunnel magnétiques.

2.2.1 Principe de fonctionnement

Lorsque les dimensions latérales d'un objet sont réduites, l'orientation de son aimantation devient sensible à la forme de l'objet. Cette sensibilité provient de courants d'aimantation de surface qui créent un champ interne appelé **champ démagnétisant**. De manière générale, ce champ démagnétisant n'est pas constant à l'intérieur d'un objet. Ce n'est le cas que dans certaines géométries comme l'ellipsoïde par exemple. Cependant, un champ démagnétisant moyen peut être calculé et mis sous la forme²

$$\vec{H}_d = -4\pi(N_x M_x \vec{x} + N_y M_y \vec{y} + N_z M_z \vec{z}) \quad (3.12)$$

où M_i est la projection du moment par unité de volume selon $\vec{i}$, vecteur unitaire. Il vient alors que $M_x^2 + M_y^2 + M_z^2 = M_s^2$. Les N_i sont les facteurs de champ démagnétisant moyen et $N_x + N_y + N_z = 1$. Ils peuvent être évalués numériquement. L'énergie du système liée à l'apparition de ce champ démagnétisant est alors

² G. W. Crabtree, Phys. Rev. B **16**, 1117 (1977).

$$E_d = -\frac{1}{2} \vec{M}_s \vec{H}_d = 2\pi (N_x M_x^2 + N_y M_y^2 + N_z M_z^2) \quad (3.13)$$

Dans le cas d'un film mince d'épaisseur inférieure à 10 nm selon la direction z, N_z est quasiégal à 1. L'aimantation est alors confinée dans le plan de la couche et M_z est quasi nul. Le champ démagnétisant est égal à $H_d = 4\pi M_s$. Il joue le rôle d'un champ d'anisotropie.

De manière formelle, l'énergie par unité de volume d'une couche unique lorsque le champ H est appliqué perpendiculairement au plan de la couche est donnée par

$$E = -M_s H \cos(\theta) + 2\pi M_s^2 \cos^2(\theta) \quad (3.14)$$

où M_s est l'aimantation à saturation de la couche ferromagnétique et θ est défini dans la figure 3.10. La minimisation de l'énergie entraîne que

$$\cos(\theta) = \frac{H}{4\pi M_s} \quad (3.15)$$

Nous pouvons alors obtenir une variation linéaire du cosinus en fonction du champ appliqué et ainsi une variation linéaire de la résistance de la spin valve ou de la jonction tunnel selon la relation

$$R(\theta) = \frac{R_p + R_{ap}}{2} + \frac{R_p - R_{ap}}{2} \frac{H}{H_d} \quad (3.16)$$

2.2.2 Propriétés magnétiques

Pour avoir la configuration d'aimantations croisées, il faut alors stabiliser l'aimantation de la seconde couche perpendiculaire au plan de la couche. Il faut donc induire dans cette couche une anisotropie qui parvient à contrecarrer le champ démagnétisant.

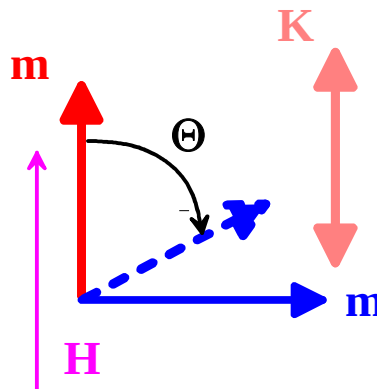


Figure 3.10 : Configuration d'aimantations croisées avec une aimantation perpendiculaire (rouge) stabilisée par l'anisotropie K induite par les interfaces entre la couche magnétique et le Pt. Le champ H est appliqué perpendiculairement au plan des couches et l'aimantation de la couche sensible (bleu) s'oriente progressivement selon H lorsque son intensité augmente.

Pour cela, nous utilisons le fait qu'à l'interface entre un matériau magnétique et un matériau non magnétique, une anisotropie de surface prend place. L'anisotropie totale effective K_{eff} de la couche magnétique par unité de volume est alors égale à³

$$K_{\text{eff}} = K_V + \frac{K_{S1}}{t_F} + \frac{K_{S2}}{t_F} \quad (3.17)$$

où K_V est l'anisotropie de volume de la couche magnétique, K_{S1} et K_{S2} sont les anisotropies d'interface et t_F est l'épaisseur de la couche ferromagnétique. Les K_{Si} dépendent naturellement du matériau non magnétique en contact avec la couche magnétique. Il est bien connu qu'à l'interface avec le Pt, le Co acquiert une aimantation perpendiculaire lorsque son épaisseur est inférieure à 1nm. Ce matériau semble tout indiqué pour obtenir une aimantation perpendiculaire pour notre application.

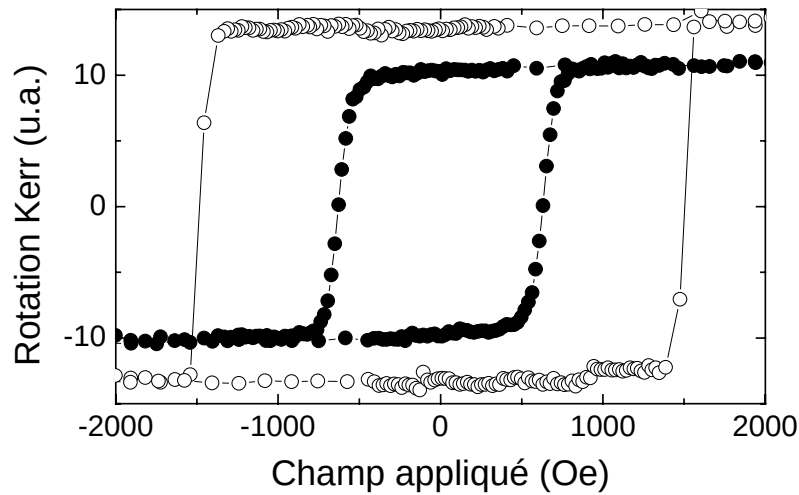


Figure 3.11 : Cycle de rotation Kerr pour une tricouche Pt/Co(6Å)/Pt (●) et pour une multicouche Pt/Co(6Å)/Pt(6Å)/Co(5Å)/Al₂O₃(15Å) (o).

Dans une première étape, après une optimisation d'une couche tampon de Ta/Pt sur substrat de verre, nous avons vérifié l'état d'aimantation perpendiculaire dans une tricouche de Pt/Co(6Å)/Pt (figure 3.11, ●). Cependant, en supprimant une interface de Co/Pt et en la remplaçant par une interface Co/Al₂O₃, l'aimantation dans la couche de Co se trouvait cantée et non plus perpendiculaire au plan de la couche. Une réduction de l'épaisseur de la couche de Co n'étant pas suffisante pour augmenter l'anisotropie malgré la relation (3.17), nous avons renforcé l'anisotropie en élaborant une multicouche Pt/Co(6Å)/Pt(6Å)/Co(5Å)/Al₂O₃(15Å). Dans ce cas, l'aimantation perpendiculaire a pu être obtenue (figure 3.11, o).

³ *Ultrathin Magnetic Structures I*, Editors J .A.C. Bland and B. Heinrich, Springer-Verlag (1994)

2.2.3 Résultats expérimentaux

La relation (3.16) a été vérifiée expérimentalement sur une multicouche Pt/Co(6Å)/Pt(6Å)/Co(5Å)/Al₂O₃(15Å)/Co(200Å)/Pt(50Å) après les étapes de lithographie nécessaires aux prises de contacts électriques. La géométrie de mesure est celle donnée dans la figure 3.10.

Nous constatons bien une relation linéaire entre la résistance et le champ appliqué (figure 3.12, gauche). Les deux sauts qui apparaissent aux champs de +/- 1500 Oe correspondent au renversement de la couche de Co à aimantation perpendiculaire comme le montre la figure (3.11, o).

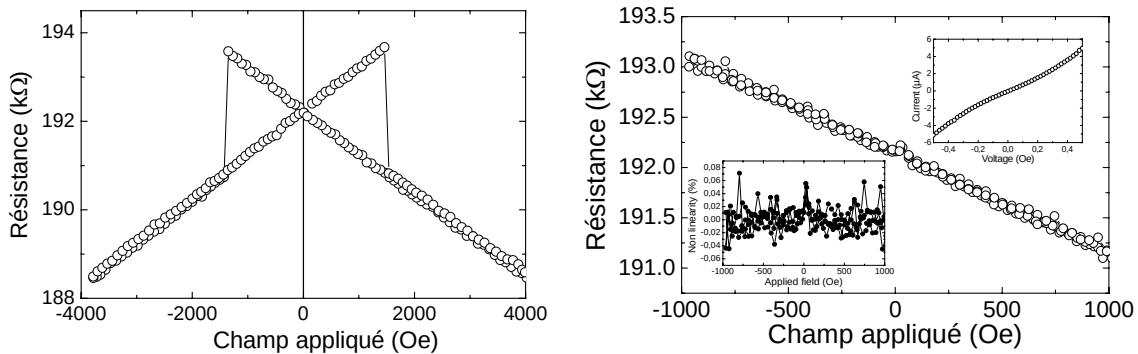


Figure 3.12 : A gauche : variation de résistance avec le champ appliqué pour une jonction tunnel réalisée à partir d'une multicouche Pt/Co(6Å)/Pt(6Å)/Co(5Å)/Al₂O₃(15Å)/Co(200Å)/Pt(50Å). A droite : cycle mineur de résistance en fonction du champ appliqué. Insert haut, droite : variation de courant avec la tension. Insert bas, gauche : écart à la linéarité.

Dans un premier temps, nous avons vérifié que le processus de transport était de type tunnel à partir de mesures de caractéristiques courant/tension (figure 3.12, droite, insert) mais aussi de caractéristiques résistance/température. En effet, nous pensons qu'aucun résultat n'a été jusqu'à présent obtenu sur une jonction tunnel dont l'une des électrodes possède une aimantation perpendiculaire à cause de la difficulté d'élaborer une barrière d'isolant, en général un oxyde, sur une couche fine de Co de quelques plans atomiques d'épaisseur sans l'oxyder.

Ensuite, nous constatons bien une relation linéaire entre la résistance et le champ appliqué (figure 3.12, gauche). Les deux sauts qui apparaissent aux champs de +/- 1500 Oe correspondent au renversement de la couche de Co à aimantation perpendiculaire.

Enfin, des cycles mineurs de variation de résistance avec le champ appliqué (figure 3.12, droite) ont été mesurés. Ils montrent que la réponse est réversible et que l'écart à la linéarité est inférieur à 0.05% dans la gamme de champ +/- 1000 Oe. La linéarité apparaît alors bien meilleure que celle obtenue avec la même architecture mais en remplaçant la barrière tunnel par une couche métallique de Cu⁴. En effet, dans ce cas, une non-linéarité apparaît à cause de l'anisotropie de magnétorésistance des électrodes. Ici, vu la résistance de la jonction, cette non-linéarité disparaît.

Par rapport au capteur du paragraphe 2.1, nous avons étendu la gamme de champ de mesure à +/- 1000 Oe. Le fonctionnement du capteur est à nouveau limité par le champ coercitif de la

⁴ F. B. Mancoff, J. Hunter Dunn, B. M. Clemens and R. L. White, Appl. Phys. Lett. **77**, 1879 (2000).

couche de référence. Ce dernier peut être augmenté en utilisant d'autres matériaux à aimantation perpendiculaire.

3 Conclusions du chapitre 3

Dans ce chapitre, nous avons présenté différentes architectures de capteurs de champs magnétiques dont soit le fonctionnement est novateur (paragraphe 1 et 2.1) et a été breveté par les différents partenaires impliqués dans le travail, soit la réalisation est difficile et n'a pu être faite expérimentalement jusqu'à présent (paragraphe 2.2). Du point de vue des applications, ce chapitre contient donc une somme d'innovations pour le spécialiste du domaine.

Ce travail de stabilisation et de contrôle d'anisotropies dans les couches magnétiques constitue également une base de travail pour les applications futures à l'électronique de spin. Comme nous allons le voir dans le chapitre suivant, l'utilisation de plusieurs couches magnétiques dont l'aimantation est adressable de manière individuelle nécessite l'utilisation de toutes les techniques développées dans le cadre des capteurs de champs magnétiques. Une belle preuve que recherches fondamentale et appliquée ont de forts liens et peuvent être menées de front.

Chapitre 4

Vers une électronique de spin

L'électronique de spin est entrée dans une phase de maturité avec en particulier l'identification d'un nombre restreint de nouveaux composants ou dispositifs apportant des fonctionnalités nouvelles. Le transistor à double jonctions, que nous avons développé ces deux dernières années, constitue le cadre essentiel de ce chapitre.

L'objectif consiste à étudier le transport électronique dépendant du spin dans des structures 'tout solide' à doubles barrières tunnel FM1/I1/FM2/I2/FM3 dont les électrodes ferromagnétiques FM1, FM2 et FM3 pourront ou non être polarisées de manière sélective. L'opportunité d'utiliser l'effet tunnel pour injecter des électrons au-dessus des niveaux de Fermi et d'y ajouter une *fonctionnalité supplémentaire* liée au magnétisme des électrodes laisse présager des caractéristiques programmables pour des dispositifs microélectroniques nouveaux et originaux (diodes tunnel redressantes et transistors à électrons chauds programmables et sans semi-conducteur, mémoires magnétiques non volatiles haute densité, etc).

Selon les longueurs caractéristiques électroniques d'une part et l'épaisseur de FM2 d'autre part, le régime de transport des électrons de FM1 vers FM3 sera cohérent, balistique ou diffusif.

Dans le régime cohérent, toute une gamme de nouveaux effets liés à l'effet tunnel résonant dépendant du spin est alors à attendre. En effet, lorsque la couche intermédiaire FM2 est suffisamment fine, un puits quantique est formé, l'énergie des électrons dans la direction perpendiculaire au plan des couches est quantifiée et *dépend du spin de l'électron*. La probabilité de transmission par effet tunnel d'une extrémité à l'autre de la structure est alors bien plus importante pour les électrons vérifiant les conditions de quantification. Elle est donc extrêmement sensible à l'énergie et donc au spin.

Dans le régime balistique, la cohérence de phase des électrons est perdue mais le transport d'électrons chauds de FM1 à FM3 est conservé. En faisant varier la tension de polarisation entre FM1 et FM2, on peut étudier précisément par spectroscopie d'électrons chauds les propriétés de magnéto-transport de la jonction FM2/I2/FM3. Cette jonction pourra également intégrer des éléments plus complexes comme une double barrière ou une multicouche métallique.

Enfin, l'injection d'électrons chauds polarisés dans un semi-conducteur peut être étudiée, la jonction FM2/x/FM3 étant alors une barrière Schottky.

1 Transport tunnel dans une jonction tunnel unique

Le courant tunnel entre deux électrodes séparées par une couche isolante est habituellement décrit comme étant proportionnel aux densités d'états des électrodes. Un exemple particulièrement frappant est donné par la mise en évidence du "gap" supraconducteur lorsqu'une des électrodes est supraconductrice. Cette sensibilité à la densité d'états est mise à profit dans la spectroscopie tunnel¹ et, grâce aux progrès de l'imagerie en champ proche, peut être utilisée pour la détermination de structures électroniques locales. C'est tout naturellement que cette propriété est utilisée dans des jonctions tunnel à électrodes ferromagnétiques. En effet, les densités d'états "vues" par les électrons dépendent de leur spin et de la direction de l'aimantation, une modification de l'angle entre les aimantations se traduit donc par un changement de résistance de la jonction. Dans le modèle simple de Jullière², la magnétorésistance, MRT, est décrite par

$$MRT = \frac{R_{ap} - R_p}{R_p} = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2} \quad (4.1)$$

où les quantités P_1 et P_2 quantifient la polarisation en spin de chacune des électrodes.

Cette vision ne permet toutefois pas d'expliquer tous les faits expérimentaux. Par exemple, la décroissance en tension de la magnétorésistance est généralement semblable quel que soit le type d'électrodes utilisées et non directement liée aux densités d'états. En effet, l'approche précédente occulte l'élément essentiel d'une jonction tunnel : la barrière.

Afin d'étudier théoriquement l'influence de la barrière tunnel sur la conductance et la magnétorésistance tunnel, F. Montaigne du LPM a développé un code de calcul utilisant les structures de bandes les plus simples : des bandes paraboliques décalées. Bien que pouvant paraître simpliste, cette approche s'avère réaliste puisque pour les métaux de transition, la bande contribuant le plus à la conduction tunnel est une bande d ayant une forte hybridation avec une bande s et présentant un caractère essentiellement parabolique³. L'utilisation de ces bandes paraboliques nous permet d'utiliser un formalisme simple dérivé de celui de Tsu et Esaki⁴. La probabilité de transmission à une énergie donnée est calculée par continuité de la probabilité de présence et du courant de probabilité. Cette probabilité est ensuite intégrée sur les énergies possibles afin d'obtenir le courant tunnel total.

Cette approche nous a permis de reproduire plusieurs faits expérimentaux. Nous avons ainsi montré que les caractéristiques de la barrière avaient une influence primordiale sur la magnétorésistance tunnel. A faible tension, nous avons testé la validité du modèle de Jullière en comparant les magnétorésistances de jonctions symétriques et asymétriques⁵. Dès lors que les résistances sont importantes, les électrodes peuvent être considérées comme indépendantes et le modèle de Jullière est valable. Mais les polarisations à considérer ne sont pas des caractéristiques intrinsèques des électrodes mais dépendent aussi des caractéristiques de la barrière et de sa forme, rendant moins universelle cette notion de polarisation. Notons que pour des jonctions à très faibles résistances (qui sont un objectif pour la réalisation de

¹ Principles of electrons tunnelling E.L.Wolf Oxford University Press (1985)

² M. Jullière, Phys. Lett. A **54**, 225 (1975)

³ W.H. Buttler, X.G. Zhang, T.C. Schulthess et J.M. MacLaren, Phys. Rev. B **63**, 54416 (2001)

⁴ R. Tsu et L. Esaki, Appl. Phys. Lett. **22**, 562 (1973)

⁵ F. Montaigne, M. Hehn et A. Schuhl, J. Appl. Phys. **91**, 7020 (2002)

matrices de mémoire à forte densité), le modèle de Julière cesse d'être valable et le système doit être considéré dans son ensemble (comme c'est le cas pour la magnétorésistance géante ou balistique). A plus forte tension, une diminution de la magnétorésistance est systématiquement observée. Cette diminution, comme c'est le cas expérimentalement, n'est que faiblement liée aux densités d'états des électrodes mais est intrinsèque aux jonctions tunnel magnétiques puisque directement reliée à la déformation de la barrière par la tension appliquée. Pour des tensions de l'ordre de la hauteur de barrière, la magnétorésistance peut devenir négative et osciller (cf. figure ci-dessous). Nous avons montré que ces oscillations (observées expérimentalement) étaient expliquées par des interférences de la fonction d'onde électronique dans la bande de conduction de la barrière.

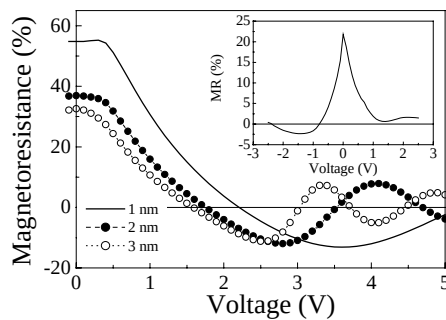


Figure 4.1 : Variation de la MRT avec la tension appliquée pour une jonction d'épaisseur égale à 1nm (-), 2nm (-.-) et 3nm (-o-). Dans ces calculs, la masse effective dans la barrière est prise égale à 0.4 et la hauteur de barrière à 2 eV. Insert : variation expérimentale de la MRT avec la tension appliquée pour une jonction Co/Al₂O₃/Co.

Les mêmes phénomènes d'interférences peuvent avoir lieu dans des barrières complexes. Nous avons ainsi montré qu'il était possible en associant deux barrières de hauteur différente d'observer des comportements complexes de la magnétorésistance avec, en particulier, un changement de signe de la magnétorésistance à faible tension. Ce comportement a en effet été observé dans des jonctions à barrière Ta₂O₃/Al₂O₃ mais avait été attribué à des différences d'hybridation entre les électrodes et les deux types de barrière⁶. Ainsi malgré sa simplicité, le modèle que nous avons développé s'est révélé très pertinent pour l'explication de plusieurs faits expérimentaux⁷. En plus de ceux déjà mentionnés, nous avons également étudié des barrières non homogènes et montré que les diminutions de magnétorésistance associées à ces inhomogénéités étaient parfaitement compatibles avec les différences expérimentales observées avant et après recuit de jonction et donc homogénéisation ou non de la stœchiométrie de la barrière. Nous avons également pu reproduire les comportements observés de puits quantiques à l'interface lors de la présence d'une couche non-magnétique à l'interface. Bien sûr, notre modèle ne reproduit pas toute la complexité des jonctions tunnel. Il faudrait pour cela considérer les effets de la température, des excitations et de l'effet tunnel non élastique, des différents types de défauts et des structures de bandes réelles des électrodes. Mais, justement en ne nous intéressant qu'à la barrière, nous avons montré son rôle prépondérant et souvent occulté.

Devant le succès de ce modèle, nous l'avons étendu à un autre type de dispositif étudié au laboratoire, des transistors associant deux barrières tunnel. La grande différence avec le cas précédent est que les électrons chauds peuvent traverser un certain nombre de fois la base entre les deux barrières par réflexions sur les barrières tunnel et par conséquent être diffusés. Il convient alors de prendre en compte cette diffusion qui peut être inélastique ou élastique et de surcroît mal connue pour des électrons d'une énergie de l'ordre de l'eV au-dessus du niveau de Fermi.

⁶ M. Sharma, S.X. Wang et J.H. Nickel, Phys. Rev. Lett. **82**, 616 (1999)

⁷ F. Montaigne, M. Hehn et A. Schuhl, Phys. Rev. B **64**, 144402 (2001)

2 Transport tunnel d'électrons chauds : théorie

2.1 Introduction

Sur la base d'une idée originale brevetée par Dr. M. Hehn et Dr. K. Ounadjela (brevet français (FR2791814) et européen (WO0059051) déposés au nom de l'Université Henri Poincaré de Nancy et de l'Université Louis Pasteur de Strasbourg), une étape supplémentaire par rapport aux études précédentes est franchie en empilant une ou plusieurs jonctions tunnel les unes sur les autres.

Toute une gamme de nouveaux effets liés à l'effet tunnel résonant est alors à attendre. En effet, lorsque la couche intermédiaire est suffisamment fine, un puits quantique est formé et l'énergie des électrons dans la direction perpendiculaire au plan des couches est quantifiée. La probabilité de transmission par effet tunnel d'une extrémité à l'autre de la structure est alors bien plus importante pour les électrons vérifiant les conditions de quantification et est donc extrêmement sensible à l'énergie. Dans un métal ferromagnétique, les niveaux quantifiés dépendent de la direction de spin et les probabilités de transmission peuvent alors considérablement différer pour chaque direction de spin, permettant d'atteindre des magnétorésistances bien plus importantes que dans les structures classiques. En allant encore plus loin, dans des structures métalliques à deux puits quantiques (donc trois barrières), le courant dépend de l'alignement des niveaux quantiques dans les deux puits. Cet alignement varie de façon non monotone avec la tension, il est donc possible d'obtenir des composants à conduction différentielle négative. Les diodes tunnel résonantes⁸ permettent ainsi de réaliser des oscillateurs ou des multiplicateurs de fréquence rapides. Leur bistabilité permet aussi de les utiliser comme portes logiques rapides⁹. L'introduction de métaux ferromagnétiques permettrait de contrôler l'alignement des niveaux, non seulement par la tension mais aussi par la configuration magnétique. On peut alors envisager des diodes tunnel résonantes programmables et des dispositifs magnétorésistifs à conduction différentielle négative.

La première étape de ce travail se limite toutefois à l'étude de structures à doubles barrières tunnel FM1/I1/FM2/I2/FM3 dont on pourra polariser de manière sélective les électrodes ferromagnétiques FM1, FM2 et FM3 et dont on pourra faire varier la nature et l'épaisseur des barrières tunnel I1 et I2. L'étude de ces structures dans le cadre du contrat européen *NanoMEM* vise la réalisation d'un transistor magnétique à électrons chauds et d'une mémoire magnétique non volatile ou MRAM (Mémoire Magnétique à Accès Aléatoire).

Le principe du transistor à électrons chauds est représenté sur la figure 4.2. La première jonction Emetteur-Base polarisée par une tension V_{EB} injecte des électrons chauds polarisés en spin dans la base. Si ces électrons ne sont pas diffusés dans la base, ils se retrouvent avec une énergie $e \times V_{EB}$ à l'attaque de la seconde jonction. Ils seront transmis à travers la seconde jonction Base-Collecteur suivant la valeur de $e \times V_{EB}$ par rapport à $e \times |V_{BC}| + \Phi_{BC}$ où Φ_{BC} est la hauteur de la barrière Base-Collecteur. Etant donné que les électrons passent la barrière Base-Collecteur par effet tunnel, une petite variation de V_{BC} et donc de I_B peut entraîner une variation significative de I_C . Le principe est analogue à un transistor bipolaire semi-conducteur NPN classique et a déjà été appliqué avec succès dans des structures III-V (tunnelling hot-electron transfer amplifier¹⁰). Etant donné que les métaux utilisés sont ferromagnétiques, la conduction à travers chaque barrière pour un point de fonctionnement

⁸ L.L. Chang, L. Esaki, R. Tsu, Appl. Phys. Lett. **24**(12), 593 (1974)

⁹ Technology roadmap for nanoelectronics, Commission Européenne (<http://cordis.lu/esprit/src/melna-rm.htm>)

¹⁰ T. S. Moise, Y.-C. Kao, A.C. Seabaugh, Appl. Phys. Lett **64**, 1138 (1994)

fixé dépend de l'alignement relatif des aimantations. Les caractéristiques du dispositif peuvent alors être modifiées par un champ magnétique.

Pour que ce dispositif puisse fonctionner de manière convenable, il est souhaitable que la seconde barrière soit moins haute que la première. En effet, la barrière I1 sera certainement composée d'alumine dont la fabrication est maîtrisée au laboratoire. Pour conserver un signal de magnétorésistance convenable et pour éviter tout claquage de la jonction, la tension de polarisation V_{EB} ne doit pas excéder 0.5 V. Il faut donc être capable de synthétiser d'autres barrières tunnel de hauteurs différentes et notamment de hauteurs inférieures à 0.5 V. C'est pour cela qu'une partie de mes recherches s'est focalisée sur l'élaboration de barrières alternatives dotées de paramètres intrinsèques différents. L'élaboration d'autres barrières alternatives de faible ou grande hauteur est donc d'une importance stratégique et l'influence des caractéristiques de la barrière a été démontrée par les études théoriques. Les modèles de bandes paraboliques prévoient des influences considérables de la hauteur de barrière et de la masse effective de l'électron dans la barrière sur la magnétorésistance.

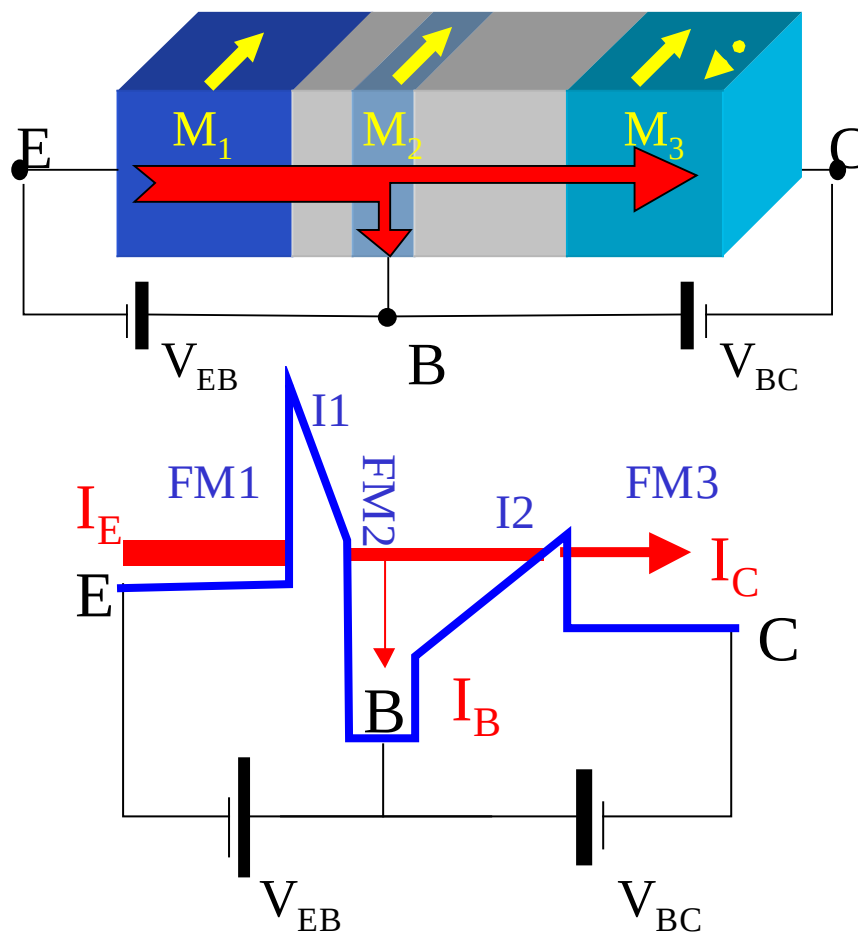


Figure 4.2 : Le dessin du dessus représente la structure FM1/I1/FM2/I2/FM3 avec ses connexions électriques. Chaque couche ferromagnétique FM_i comporte une aimantation M_i dont l'orientation est contrôlable indépendamment. Le courant injecté de l'émetteur E se transmet au collecteur C ou à la base B suivant les tensions de polarisation V_{EB} et V_{BC} et l'orientation des aimantations M_i . Le dessin du dessous représente le diagramme d'énergie vu par les électrons lors du passage des différentes couches de la structure. On voit bien que, suivant la tension V_{BC} pour une tension V_{EB} fixe, les électrons formant le courant I_C buttent ou traversent la barrière formée par l'isolant I_2 .

Le transistor à électrons chauds tel qu'il est décrit ci-dessus est également un formidable outil pour l'étude du transport des électrons chauds polarisés en spin et des processus de diffusion des électrons lors du transport tunnel.

En effet, d'une part, l'énergie des électrons collectés est fixée par V_{CE} alors que le courant est régi quasiment indépendamment par V_{BE} . On peut ainsi étudier précisément par spectroscopie d'électrons chauds les propriétés de magnéto-transport de la jonction Base-Collecteur. Cette jonction pourra également intégrer des éléments plus complexes comme une double barrière ou une multicouche métallique. Enfin l'injection d'électrons chauds polarisés dans un semi-conducteur peut être étudiée, la jonction Base-Collecteur étant alors une barrière Schottky ; d'autre part, suivant l'énergie d'injection et l'épaisseur de la base FM2, nous serons à même de déterminer les libres parcours moyens des électrons dans la base en fonction de l'énergie d'injection et de déterminer quelle est la part des électrons balistiques transmise dans la seconde jonction. Ces expériences permettront d'expliquer pourquoi les propriétés de transport de doubles jonctions magnétiques FM1/I1/FM2/I2/FM3 sont différentes de celles de deux jonctions FM1/I1/FM2 et FM2/I2/FM3 connectées en série¹¹.

Les expériences que je propose sont complémentaires de celles rencontrées dans les techniques de BEEM et d'injection d'électrons à partir d'une source d'électrons polarisés. Dans le premier cas, la source d'électrons elle-même n'est pas polarisée et dans le second cas, les énergies d'injection se situent dans une gamme d'énergies plus élevées, au-delà de 5 eV.

2.2 Modélisation du transport d'électrons chauds polarisés en spin

Sur la base du code développé par F. Montaigne dans le modèle des bandes paraboliques¹² pour une jonction unique, nous l'avons étendu pour calculer le courant d'électrons chauds dans une structure à barrières multiples¹³. Ce code nous permet de calculer les caractéristiques de transport électronique d'électrons chauds sous champ magnétique dans un terminal à 3 entrées composé de deux jonctions tunnel empilées l'une sur l'autre. Le profil de potentiel vu par les électrons est donné dans la figure 4.3 où ϕ_i et d_i sont respectivement les hauteur et largeur des barrières tunnel numéro i . Les barrières sont considérées comme rectangulaires en l'absence d'une tension appliquée. Etant donné la grande conductivité électrique des couches métalliques constituant les émetteur, base et collecteur, la chute de potentiel est distribuée de manière homogène seulement dans les barrières tunnel, ce qui engendre une déformation des barrières sous l'action d'une différence de potentiel. Les tensions appliquées à ces barrières sont notées V_{EB} et V_{BC} .

Un courant polarisé en spin est pompé de la jonction émetteur/base sous une différence de potentiel V_{EB} et est injecté dans la base qui est composée d'un matériau magnétique avec une énergie $e \times V_{EB}$ au-dessus du niveau de Fermi de la base. Si l'épaisseur de la base est grande par rapport au libre parcours moyen λ des électrons chauds, chaque électron extrait de l'émetteur est thermalisé dans la base et chaque jonction tunnel se comporte de manière indépendante. Si l'épaisseur de la base est petite ou comparable au libre parcours moyen des électrons chauds, une grande partie des électrons injectés par l'émetteur peut traverser la base sans collision et éventuellement passer la barrière BC. Comme la probabilité de transmission augmente exponentiellement avec l'énergie des électrons incidents, la transmission des

¹¹ F. Montaigne et al., *Appl. Phys. Lett.* 73(19), 2829 (1998)

¹² F. Montaigne, M. Hehn, A. Schuhl, *Phys. Rev. B.* **64**, 144402 (2001)

¹³ M. Hehn, F. Montaigne and A. Schuhl, *Phys. Rev. B.* **66**, 144411 (2002).

électrons chauds est beaucoup plus importante que celle des électrons provenant du niveau de Fermi de la base. De plus, la transmission des électrons chauds est contrôlée par la tension V_{BC} , ce qui permet d'obtenir des caractéristiques $I_c(V_{BC})$ à V_{EB} fixe très asymétriques.

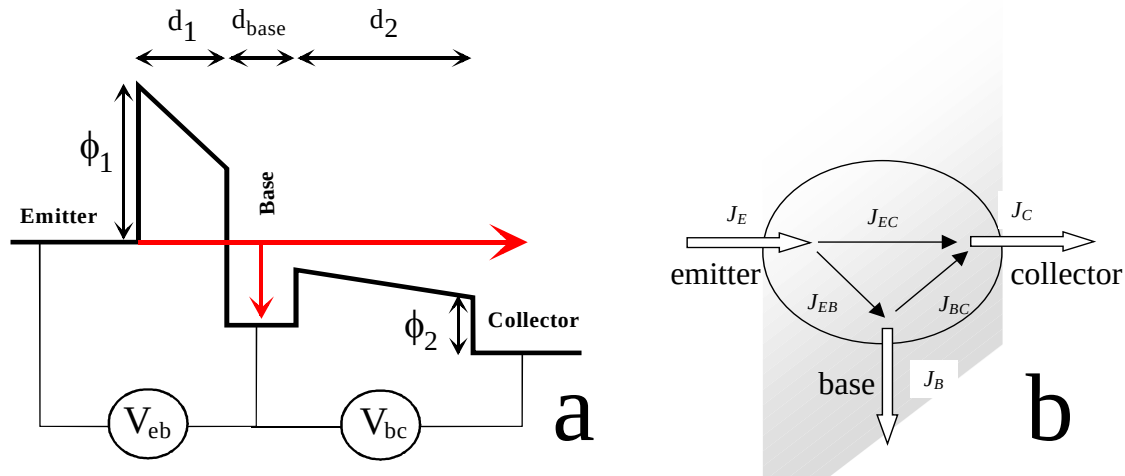


Figure 4.3 : (a) Profil de potentiel vu par les électrons traversant le terminal à trois entrées composé de deux jonctions tunnel magnétiques sous l'application des différences de potentiel;
(b) Définition des courants traversant le terminal à trois entrées.

La modélisation de ce dispositif nécessite le calcul de plusieurs courants : le courant total injecté J_E à travers la barrière EB qui dépend essentiellement des paramètres de cette barrière (en particulier la tension appliquée V_{EB}) et qui est indépendant des processus de relaxation d'énergie des électrons dans la base ou du fait que les électrons passent ou non la barrière BC; de manière similaire, le courant d'électrons thermalisés de la base au collecteur J_{BC} (ou du collecteur à la base si V_{BC} est négative) ne dépend que de la barrière BC. Nous considérons que les électrons thermalisés dans la base ont relaxé à la fois leur énergie et leur spin; l'évaluation du courant balistique J_{EC} est plus complexe. Il dépend de la probabilité de passage de la barrière EB par les électrons, des processus de relaxation d'énergie dans la base et de la probabilité de passage de la barrière BC par les électrons. Les réflexions multiples dans la base doivent aussi être prises en compte puisque les électrons peuvent être réfléchis par les barrières BC puis EB. Les autres courants sont déduits par la loi des nœuds. Un modèle simple pour le transport des électrons chauds a été considéré : tout électron ayant subi une collision ne contribue pas au courant balistique et ainsi J_{EC} est uniquement dû aux électrons ayant conservé leur énergie d'injection. De plus, le transport cohérent à travers la base n'a pas été considéré par simplicité mais aussi pour montrer que, même sans cohérence, ce qui est fort probable dans nos structures imparfaites, des phénomènes liés au transport d'électrons chauds peuvent être escomptés.

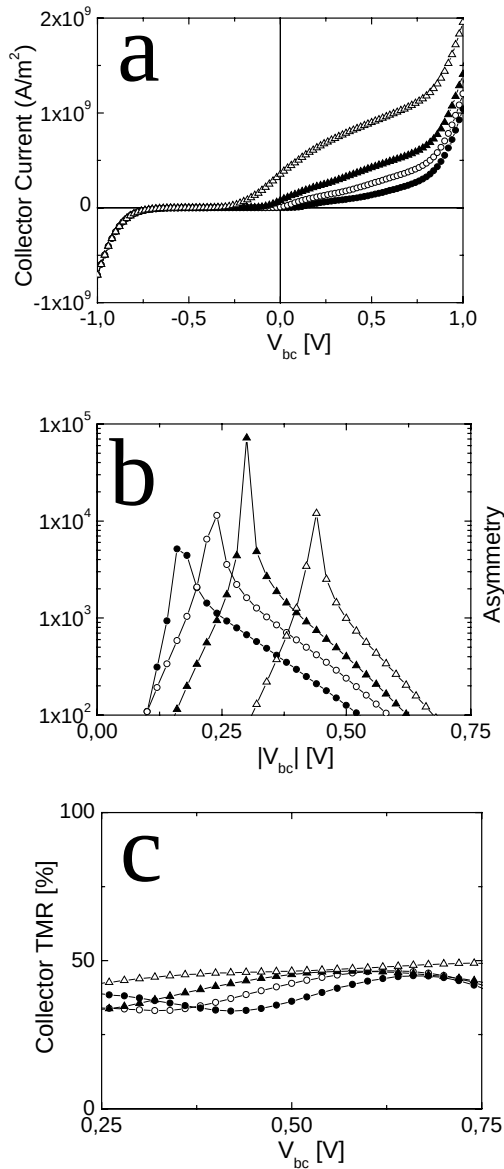


Figure 4.4 : Représentation des caractéristiques (courant collecteur)/(tension base-collecteur) (a), (asymétrie du courant collecteur)/(tension base-collecteur) (b) et (magnétorésistance du courant collecteur)/(tension base-collecteur) (c). Calculs réalisés avec une tension émetteur/base de 0.5 V (disque plein), 0.55 V (disque vide), 0.6 V (triangle plein) et 0.7 V (triangle vide).

Une asymétrie de courant collecteur peut être induite en conservant la tension V_{EB} fixe et en modifiant la tension V_{BC} . L'asymétrie de courant est mesurée par $J_C(V_{BC})/J_C(-V_{BC})$ et dépend de V_{BC} et V_{EB} . Les électrons peuvent passer la barrière BC suivant la valeur de la tension V_{BC} comme le montre la figure 4.4a. Notamment lorsque V_{BC} est négative, le courant d'électrons chauds est bloqué.

L'asymétrie du courant collecteur dépend fortement de la tension émetteur/base, et donc de l'énergie des électrons chauds (figure 4.4b). L'asymétrie est la plus grande lorsque la tension émetteur/base est proche et légèrement supérieure à la hauteur de la barrière base/collecteur. Elle peut atteindre 10 000 comme on peut le constater figure 4.4b. De plus, la valeur de la magnétorésistance reste élevée et quasi indépendante de V_{BC} .

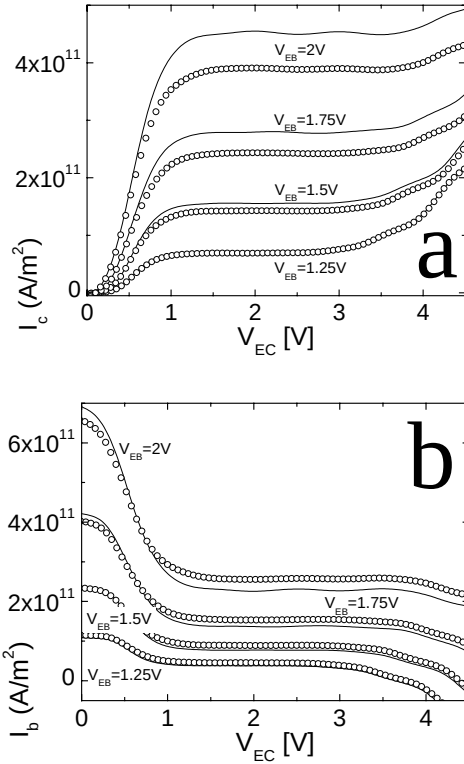


Figure 4.5 : Caractéristiques (Courant collecteur)/(tension émetteur-collecteur) (a) et (Courant base)/(tension émetteur-collecteur) (b) calculées en fonction de la tension émetteur-base et de la configuration magnétique pour un terminal à 3 entrées composé de barrières de 0.5eV de hauteur et d'épaisseurs d_1 et d_2 égales à 2 et 5 nm.

Ce dispositif peut également être utilisé comme un transistor (voir figure 4.5). En effet, les caractéristiques calculées ressemblent à celles obtenues sur les transistors bipolaires. Ici, l'utilisation de matériaux magnétiques permet d'avoir une fonctionnalité supplémentaire.

2.3 Nécessité des 3 couches magnétiques ?

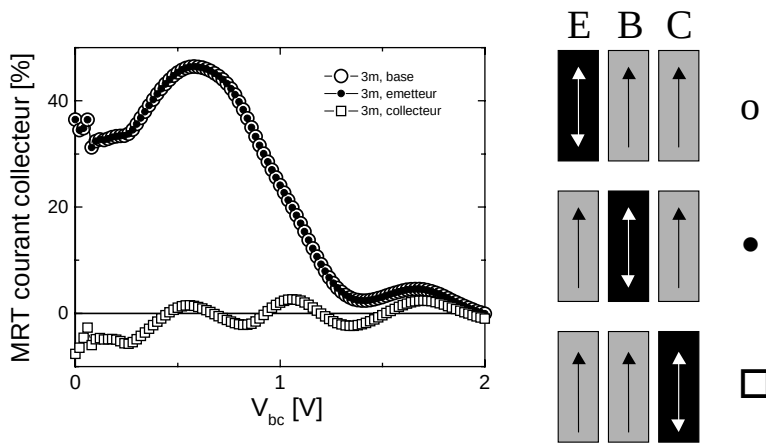


Figure 4.6 : Magnétorésistance du courant collecteur en fonction de la tension base/collecteur lorsque l'aimantation de l'émetteur (o), de la base (•) ou du collecteur (□) est inversée. A droite, configuration des aimantations dans chaque configuration.

Il est légitime de se poser la question du processus physique qui intervient dans la magnétorésistance du courant collecteur. C'est pour cela que nous avons réalisé les calculs en retournant une à une les aimantations des différentes couches magnétiques. Nous voyons qu'inverser l'aimantation de l'émetteur ou de la base est équivalent et entraîne une forte MRT

du courant collecteur alors qu'inverser l'aimantation du collecteur n'entraîne qu'une toute petite MRT. Cette observation se comprend en considérant deux effets :

- tout d'abord, il faut considérer l'effet de filtre à spin de la couche de base qui polarise le courant d'électrons chauds par la différence des libres parcours moyens des électrons de spin 'up' et 'down'. Ce filtrage entraîne l'apparition de la forte MRT par l'inversion de l'aimantation d'émetteur ou de base car le courant passant au collecteur est très fortement polarisé. Ainsi, le courant d'une direction de spin est plus thermalisé que l'autre et une forte perte de courant d'un spin s'effectue dans la base. La MRT du courant collecteur est alors grande.

- ensuite, il faut considérer que l'état de polarisation des états de réception dans le collecteur pour les électrons chauds est faible dans le cas des bandes paraboliques. En effet, plus on s'éloigne en énergie du niveau de Fermi, plus la polarisation chute. Ainsi, même si un courant fortement polarisé est injecté à haute énergie dans le collecteur, la MRT du collecteur sera faible. Cependant, dans la réalité, les structures de bandes sont plus complexes et des effets géants peuvent être attendus.

L'utilité des 3 couches magnétiques est donc incertaine dans le fonctionnement du transistor. Au niveau théorique, à l'aide des bandes paraboliques, un collecteur magnétique n'est pas nécessaire et une forte MRT a été observée¹⁴ en utilisant une barrière Schottky à la place de I2/FM3 de la figure 4.2. Cependant, au niveau expérimental, les structures de bandes sont plus complexes et en plus, avec 3 couches magnétiques, il est possible de sonder l'intégrité des deux jonctions tunnel après le procédé technologique comme nous allons le voir dans le paragraphe suivant.

3 Transport tunnel d'électrons chauds : expérience

Suite à la réalisation expérimentale des premières structures 'transistor de spin' en collaboration avec Frédéric Nguyen van Dau et Frédéric Petroff de Thalès dans le cadre de la thèse de Daniel Lacour, le dépôt étant réalisé à Nancy et la structuration à Orsay, nous avons été amenés à mesurer et à mettre en évidence un courant d'électrons chauds injecté par l'émetteur et récupéré par le collecteur dans une multicouche Substrat-verre/Ta₅/Co₈₀Fe_{20(7.5)}/Co₂/Al₂O₃₍₂₎/Py₁₀/TaO_{3.5}/Co₂₀/Ta₁₀.

Dans un premier temps, les caractéristiques de chaque jonction tunnel (Al₂O₃ et TaO) ont été mesurées de manière indépendante¹⁵. Alors que la jonction TaO possède bien les caractéristiques escomptées lorsqu'elle est élaborée sous forme de jonction simple et unique (figure 4.6), la jonction Al₂O₃ apparaît être de moins bonne qualité (hauteur de barrière de 0.5 eV au lieu de 1.2 eV, magnétorésistance, TMR, de 10% au lieu de 20%). A l'heure actuelle, nous cherchons les origines possibles de la détérioration de cette barrière. Il est fort probable qu'elle provienne de l'impact du faisceau d'Ar sur la surface non protégée de la barrière d'Al₂O₃.

¹⁴ S. van Dijken, X. Jiang, S. S. P. Parkin, Appl. Phys. Lett. **83**, 951 (2003).

¹⁵ D. Lacour, M. Hehn, F. Montaigne, H. Jaffrès, P. Rottländer, G. Rodary, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff and A. Schuhl, Eur. Phys. Lett. **60**, 896 (2002).

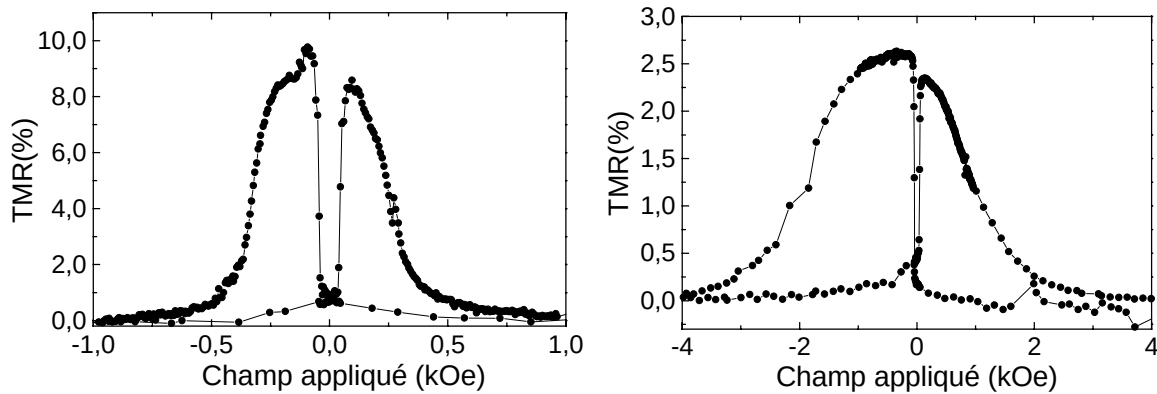


Figure 4.6: variation de magnétorésistance avec le champ magnétique appliqué pour la jonction composée d'alumine (gauche) et la jonction composée d'oxyde de tantale (droite).

Une gravure chimique est actuellement à l'étude. Cependant, même si la barrière d' Al_2O_3 n'est pas de bonne qualité, il est possible de mesurer les caractéristiques transistor du dispositif car la fonction de la jonction Al_2O_3 se limite à l'injection du courant dans la jonction de TaO. Par contre, la tension maximale avant claquage que l'on pourra appliquer à la jonction Al_2O_3 sera réduite et ne permettra pas d'accéder au vrai régime transistor.

Le courant collecteur en fonction de la tension V_{bc} pour une tension d'injection V_{eb} de 450 mV (●) et 625 mV (○) est représenté dans la figure 4.7. Lorsque V_{bc} est négative, les électrons chauds issus de l'émetteur sont bloqués par la jonction TaO. Par la jonction TaO, seul le courant injecté par le collecteur directement dans la base est permis et les courbes se superposent indépendamment de V_{eb} . Lorsque V_{bc} est positive, les électrons chauds issus de l'émetteur peuvent passer la jonction TaO. Plus V_{eb} est grand, plus le courant passant par la barrière de TaO est grand et plus l'asymétrie de la courbe courant collecteur/tension V_{bc} est grande. Nous avons développé un programme de calculs permettant de simuler les caractéristiques attendues pour un tel dispositif. A partir des caractéristiques électriques des jonctions Al_2O_3 et TaO, nous avons extrait leurs caractéristiques physiques (hauteur, ϕ , et largeur de barrière, d). Les courants collecteurs calculés à partir de ces paramètres pour V_{eb} égale à 450 mV (trait continu) et 625 mV (trait pointillé) sont représentés sur la figure 4.7. Un bon accord entre courants mesuré et calculé peut être observé étant donné leurs dépendances exponentielles avec ϕ et d .

Ainsi, même si de vraies caractéristiques transistor n'ont pas été obtenues jusqu'à présent, ce travail est unique en son genre et dans les années à venir, son développement devrait mener à la mise en évidence de la polarisation en spin du courant d'électrons chauds et à son étude. Pour cela, la croissance de nouveaux isolants à faible gap est étudiée (utilisation du MgO par exemple) et la mise au point des procédés technologiques de structuration des échantillons se poursuit.

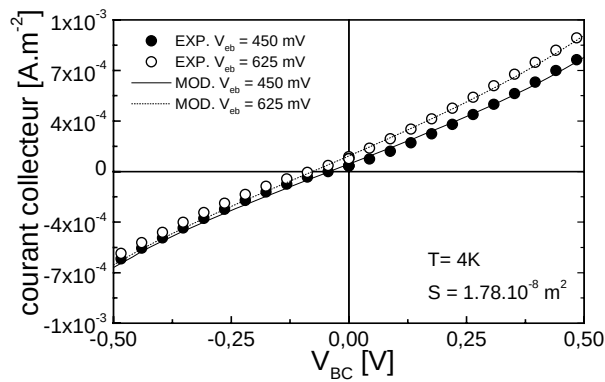


Figure 4.7: courant collecteur en fonction de la tension V_{bc} pour une tension d'injection V_{eb} de 450 mV (●) et 625 mV (○). Ces courants mesurés sont comparés aux courants calculés pour V_{eb} égal à 450 mV (trait continu) et 625 mV (trait pointillé).

4 Configuration d'aimantations tridimensionnelle : la spin diode

L'aboutissement de mon activité de recherches de ces 5 dernières années pourrait être la mise au point d'une 'spin diode'. Cette étude est actuellement en cours en collaboration avec W. Weber de l'IPCMS de Strasbourg et constitue mon projet de recherche à court terme. Elle utilise toute l'expertise que j'ai acquise tant sur le contrôle des propriétés magnétiques de couches minces que sur la réalisation de barrières isolantes. L'idée originale a été proposée par R. Mattheis dans une communication au Symposium on spin-electronics, Halle, Allemagne, 3-6 Juillet 2000.

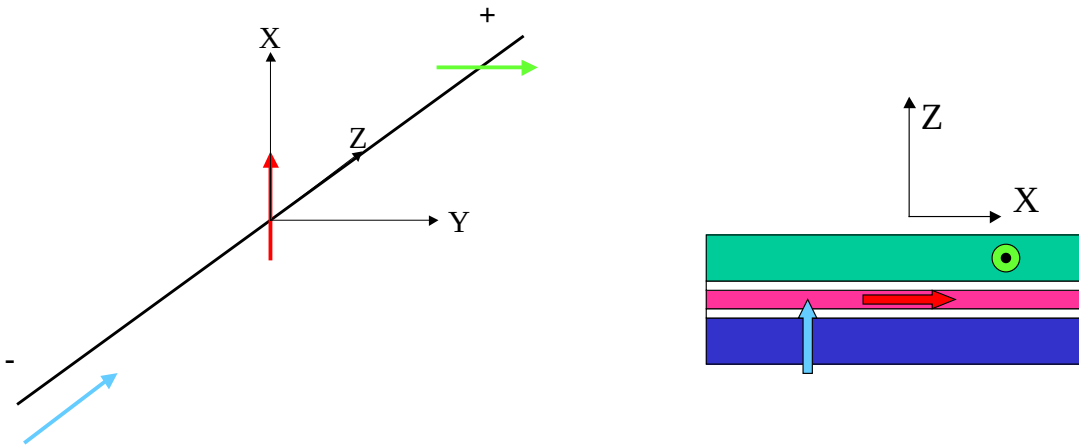


Figure 4.8: à gauche, vue schématique de la configuration d'aimantations pour l'obtention de l'effet 'spin diode' ; à droite, visualisation de l'empilement des couches magnétiques séparées par de fines couches isolantes (blanches).

4.1 Principe de fonctionnement

Considérons trois couches magnétiques (bleue, rouge et verte sur le schéma de la figure 4.8) séparées par de fines couches isolantes (blanches). La configuration d'aimantations en champ nul est représentée sur la figure 4.8, gauche.

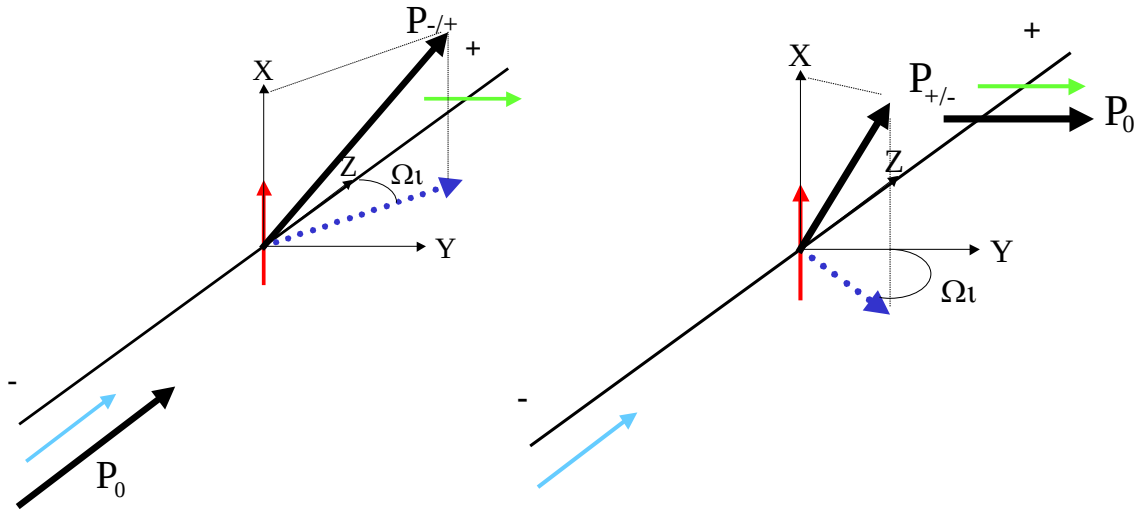


Figure 4.9: à gauche : trajet de – vers + ; injection d'un courant polarisé en spin par l'aimantation bleue et précession autour de l'aimantation rouge. La polarisation du courant d'électrons chauds se réoriente selon l'aimantation rouge (effet de filtrage en spin) mais tourne également dans le plan (Z,Y) d'un angle Ωt par rapport à l'axe Z. à droite : trajet de + vers - ; injection d'un courant polarisé en spin par l'aimantation verte et précession autour de l'aimantation rouge. La polarisation du courant d'électrons chauds se réoriente selon l'aimantation rouge mais tourne également dans le plan (Z,Y) d'un angle Ωt par rapport à l'axe Y.

Regardons tout d'abord ce qu'il se passe sur le trajet qui va de – vers + de la figure 4.9. Un courant polarisé en spin par l'aimantation bleue est injecté par effet tunnel dans la couche rouge. La polarisation du courant d'électrons chauds P_0 se réoriente selon l'aimantation rouge : c'est l'effet de filtrage en spin. Le spin de ces électrons va également précesser autour de l'aimantation rouge et ainsi tourne dans le plan (Z,Y) d'un angle Ωt par rapport à l'axe Z. Ensuite, si ce courant d'électrons chauds n'est pas thermalisé dans la couche rouge, il attaque la seconde barrière tunnel avec la polarisation $P_{-/ +}$. L'expression de cette polarisation est donnée par¹⁶

$$P_{-/ +} \begin{cases} \frac{S}{P_0 \sqrt{1-S^2}} \sin(\Omega \tau) \\ \frac{S}{P_0 \sqrt{1-S^2}} \cos(\Omega \tau) \end{cases} \quad (4.2)$$

Sur le trajet qui va de + vers -, un courant polarisé en spin par l'aimantation verte est injecté par effet tunnel dans la couche rouge. La polarisation du courant d'électrons chauds P_0 se réoriente selon l'aimantation rouge : c'est l'effet de filtrage en spin. Le spin de ces électrons va également précesser autour de l'aimantation rouge et ainsi tourne dans le plan (Z,Y) d'un angle Ωt par rapport à l'axe Y. Ensuite, si ce courant d'électrons chauds n'est pas thermalisé dans la couche rouge, il attaque la seconde barrière tunnel avec la polarisation $P_{+/-}$.

$$P_{+/-} \begin{cases} \frac{S}{P_0 \sqrt{1-S^2}} \cos(\Omega \tau) \\ -\frac{S}{P_0 \sqrt{1-S^2}} \sin(\Omega \tau) \end{cases} \quad (4.3)$$

¹⁶ D. Oberli, R. Burgermeister, S. Riesen, W. Weber, H. C. Siegmann, Phys. Rev. Lett. **81**, 4228 (1998) ; N. Rougemaille, H.-J. Drouhin, G. Lampel, J. Peretti, Y. Lassailly, A. Schuhl, J. of Appl. Phys. **91**, 8408 (2002).

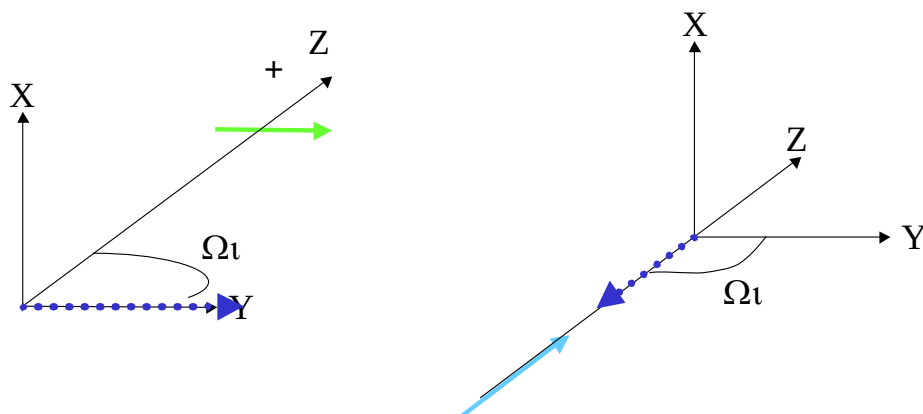


Figure 4.10: à gauche : trajet de – vers + ; en considérant que $\Omega_1=90^\circ$, que le filtrage en spin est nul et que la magnétorésistance des jonctions est positive, la polarisation du courant d'électrons chauds est selon +Y. La résistance de la jonction rouge/verte et donc du dispositif est faible ; trajet de + vers - ; en considérant que $\Omega_1=90^\circ$, que le filtrage en spin est nul et que la magnétorésistance des jonctions est positive, la polarisation du courant d'électrons chauds est selon -Z. La résistance de la jonction rouge/bleue et donc du dispositif est forte.

Pour simplifier, considérons que l'effet de filtrage en spin est négligeable devant l'effet de la précession de spin, que l'épaisseur de la couche rouge est telle que $\Omega_1 = 90^\circ$, qu'aucun électron n'est thermalisé dans la couche rouge et que la magnétorésistance des jonctions est positive. Dans ce cas, sur le trajet – vers +, les polarisations électroniques à l'interface de la seconde jonction tunnel séparée par les couches rouge et verte sont parallèles : la résistance est faible (figure 4.10, gauche). Sur le trajet + vers -, les polarisations électroniques à l'interface de la première jonction tunnel séparée par les couches rouge et bleue sont antiparallèles : la résistance est forte (figure 4.10, droite).

Ainsi, il est clair qu'une asymétrie de courant apparaît et que cette dernière est uniquement liée au transport tunnel dépendant du spin. Si les électrodes magnétiques sont remplacées par des électrodes métalliques, aucun effet d'asymétrie de courant n'est observable. Ici, l'utilisation de 3 couches magnétiques est totalement justifiée et nécessaire.

Il est également clair qu'outre les applications potentielles d'un tel dispositif, aucune publication ne fait état d'études de la précession du spin des électrons dans des couches magnétiques dans une gamme d'énergie aussi proche du niveau de Fermi. Un intérêt fondamental se dégage très fortement. Enfin, la prise de contact dans l'électrode rouge permettra de réellement faire varier l'énergie d'injection et donc d'accéder à la variation de Ω_1 avec l'énergie des électrons incidents.

4.2 Réalisation expérimentale

A la lecture du précédent paragraphe, il apparaît clairement que la difficulté majeure dans la réalisation de la diode de spin repose sur la stabilisation en champ nul de la configuration d'aimantations tridimensionnelle. Or, avec le travail que nous avons réalisé sur les capteurs, une telle configuration d'aimantations semble *triviale* à obtenir.

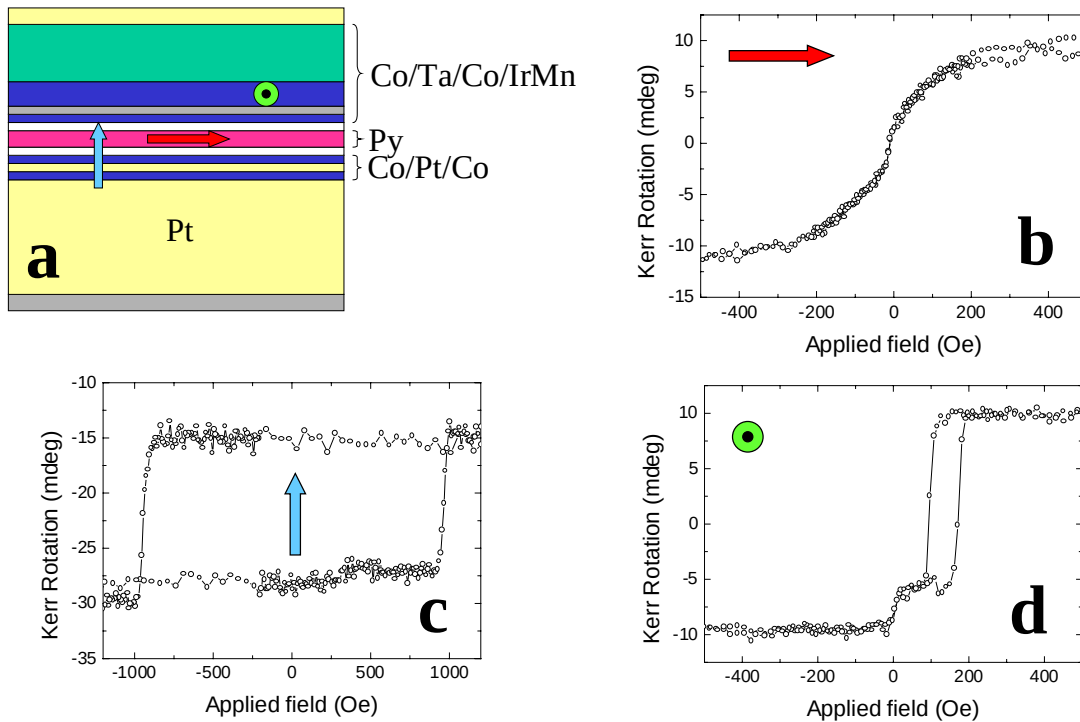


Figure 4.11: (a) visualisation de l'empilement multicouches séparées par de fines couches isolantes (blanches) lors de la réalisation expérimentale ; cycles d'aimantation mesurés selon l'axe facile d'aimantation de la couche rouge (b), bleue (c) et verte (d).

L'aimantation perpendiculaire de la couche bleue s'obtient à l'aide de la multicouche Pt/Co/Pt/Co du paragraphe 2.2.2 du chapitre 3. L'orientation de l'aimantation dans le plan de la couche rouge s'obtient par dépôt d'une couche de Py. L'anisotropie de la couche provient du champ magnétique résiduel du bâti de pulvérisation cathodique. L'orientation dans le plan de la couche verte, à 90° de celle de l'aimantation de la couche rouge, s'obtient à l'aide d'une bicouche ferromagnétique/antiferromagnétique qui a été recuite sous champ magnétique afin que son axe d'anisotropie soit perpendiculaire à celui de la couche rouge. C'est une application de l'étude de bicouches ferromagnétique/antiferromagnétique du paragraphe 2.1 du chapitre 3. Enfin, pour séparer ces trois systèmes magnétiques, deux barrières d'alumine ont été insérées sur la base des travaux du chapitre 2. Il sera intéressant par la suite de combiner asymétrie de spin avec asymétrie de barrière tunnel¹⁷ en alliant une barrière d'alumine à une barrière de MgO.

Les cycles d'aimantation, mesurés dans les trois directions de l'espace, montrent bien que l'état magnétique global de l'échantillon est bien celui qui a été schématisé sur la figure 4.11(a). Les étapes technologiques nécessaires à la prise des contacts électriques sont en cours et nous espérons avoir des résultats rapidement.

¹⁷ C. Tiusan, M. Chshiev, A. Iovan, V. da Costa, D. Stoeffler, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, Appl. Phys. Lett. **79**, 4231 (2001).

Conclusion

Le magnétisme dans les couches minces et dans les nanostructures magnétiques a été largement évoqué dans le cadre de mon activité de recherche avec une forte implication du transport tunnel dépendant du spin. L'ensemble des connaissances acquises lors de mon travail personnel ou lors de travaux de thèse dont j'ai assuré l'encadrement théorique et expérimental, officiel ou officieux, a été appliqué à l'élaboration de dispositifs originaux à électronique de spin. Les perspectives d'évolution de ces thématiques de recherche sont nombreuses et juste limitées par l'imagination des chercheurs....

Outre les développements à venir sur le transistor à électrons chauds polarisés en spin, sur la diode de spin et tous les effets fondamentaux non soupçonnés à ce jour dans de telles architectures, des extensions évidentes des travaux exposés sont envisagées.

Transport tunnel dans les jonctions magnétiques planaires

- La nécessité de nouveaux matériaux pour la réalisation de barrières de faible hauteur.

Il a été clairement établi expérimentalement et théoriquement que pour avoir de fortes asymétries de courant dans les systèmes FM1/I1/FM2/I2/FM3, I1 et I2 sont des barrières tunnel qui doivent avoir des hauteurs différentes. Avec TaOx, cet effet a été démontré. Cependant, TaOx n'est pas un oxyde stable. L'effort expérimental doit se poursuivre avec le MgO par exemple ou d'autres matériaux.

- Vers la mise en évidence des effets liés à la structure de bandes des électrodes en contact avec la barrière tunnel.

Les premiers résultats expérimentaux obtenus sur la mesure de jonctions Fe/MgO/Fe sont encourageants. La forte magnétorésistance et l'évolution de la magnétorésistance avec la tension sont directement liées à la structure de bandes des électrodes en contact avec la barrière tunnel. Ce travail est amené à se développer fortement car Fe/MgO/Fe est un système modèle tant pour la croissance épitaxiale que pour les calculs théoriques. Les deux approches devraient converger.

- Le développement d'un nouveau bâti de pulvérisation cathodique : masque *in situ* et complexe ultravide.

L'étude de nouveaux matériaux se trouvera grandement facilitée par la mise en place d'un nouveau bâti de pulvérisation cathodique. En effet, à l'aide de ce bâti dont j'assure la coordination de sa construction ainsi que de sa mise en place dans une nouvelle salle blanche, il sera possible de fabriquer des jonctions à l'aide d'un changement de masques *in situ* et de transférer des multicouches du bâti de pulvérisation au bâti d'épitaxie sans mise à l'air. Il sera tout particulièrement intéressant de combiner la barrière de MgO faite par épitaxie à la barrière d'Al₂O₃ ou MgO faite par pulvérisation cathodique pour mettre à jour les effets de structure de bandes d'interface.

L'utilisation des propriétés du transport tunnel dans les jonctions magnétiques planaires et l'utilisation de couches minces antiferromagnétiques pour des applications

Les perspectives de cette activité de recherche sont nombreuses et dans un premier temps reposent sur les développements théoriques. Il est clairement établi que le couplage d'échange par effet tunnel quantique observé dépend de l'épaisseur relative des électrodes en contact avec la barrière tunnel et de la tension appliquée à la jonction. Or ces deux effets n'ont pas encore été observés expérimentalement. Un effort particulier sera porté sur ces deux aspects étant donné que le système Fe/MgO/Fe s'y prête. Dans un second temps, ce couplage d'échange sera utilisé pour réaliser des dispositifs originaux basés sur l'utilisation de systèmes antiferromagnétiques artificiels avec couche isolante et sur la dépendance du couplage avec la tension si elle est observée. Cette dernière permettrait une écriture d'informations magnétiques sans apport de champ extérieur.

En ce qui concerne le domaine de la mesure de champs magnétiques, le capteur basé sur l'utilisation d'une couche de détection couche antiferromagnétique/ couche ferromagnétique sera perfectionné et l'électronique de traitement du signal sera optimisée pour la réalisation d'un démonstrateur haute résolution.

Transport électronique dépendant du spin dans des structures métalliques à barrières multiples – Application à l'étude des électrons chauds

L'étude de dispositifs à électronique de spin reposant sur l'utilisation de jonctions tunnel magnétiques a débuté ces deux dernières années et son extension est à prévoir dans les années à venir. L'étude de doubles barrières tunnel FM1/I1/B/I2/FM3 avec ou sans contact électrique sur B, la base du système, est en forte progression avec des idées originales quant aux matériaux et multicouches à insérer en B. En parallèle, les codes de calcul sont déjà développés et nous permettront de prédire les alternances de matériaux à mettre en œuvre. L'utilisation notamment de l'épitaxie nous permettra de faire croître des multicouches de grande qualité cristalline.

Des jonctions multiples pour la mise en évidence d'états résonants dans des structures du type Substrat-MgO/Fe/MgO/Fe_x/MgO/Fe/Pd où l'épaisseur de la couche Fe_x est de l'ordre du nanomètre ont d'ores et déjà été réalisées. Les premières réalisations montrent que des couches très fines mais continues de Fe peuvent être synthétisées. De plus, notre projet de réalisation d'un bâti de pulvérisation cathodique relié sous vide au bâti d'épitaxie par jets moléculaires devrait encore nous permettre d'étendre l'utilisation du système Fe/MgO/Fe à d'autres matériaux. Une base de Fe/MgO/Fe pourra être réalisée dans le bâti d'épitaxie par jets moléculaires et transférée dans le bâti de pulvérisation cathodique pour compléter avec d'autres matériaux non cristallins.

Du micromètre vers le nanomètre : manipulation d'aimantation, de parois, etc

La miniaturisation des systèmes électroniques est aujourd'hui devenue une réalité. Cette réalité est depuis longtemps connue et maîtrisée dans le domaine des semi-conducteurs où l'utilisation de couches minces a été intégrée dans la production des dispositifs commercialisés. L'adaptation des techniques de la microélectronique aux matériaux métalliques a permis de reporter ces efforts dans le domaine des matériaux magnétiques où, depuis une vingtaine d'années, l'étude des couches minces s'était intensifiée. Pour répondre à la demande d'augmentation des densités de stockage ou de composants au micromètre carré,

les dimensions latérales visées, de l'ordre du micromètre il y a dix ans, sont maintenant de l'ordre de la dizaine de nanomètres. La mise en place de la lithographie électronique à l'UHP ouvre le champ d'investigation de dispositifs de tailles latérales proches des 100 nm. Cette taille est typiquement de l'ordre de grandeur de la taille des parois de domaines. Cette thématique sur laquelle j'ai travaillé avant mon embauche au CNRS est déjà très étudiée au laboratoire et son extension est donc à prévoir dans les années à venir.

Au niveau du magnétisme et du transport d'électrons cohérents, tous les mécanismes ont des longueurs caractéristiques inférieures à 100 nm. Réduire les dimensions latérales de la couche revient alors à fortement perturber les caractéristiques connues des matériaux massifs. Si au niveau des longueurs, une taille latérale de 100 nm semble n'être qu'une réduction d'une taille latérale de 1 μm , il n'en est pas de même des effets physiques escomptés. D'importants effets sur les ordres magnétiques, les conductivités électriques et les propriétés optiques sont attendus car leur tailles physiques sont comparables aux longueurs d'onde optique, longueurs de pénétration, longueurs d'échange et de diffusion de spin.

Dans le domaine du magnétisme, le renversement du moment magnétique de petits objets, en tant que tels ou insérés dans une matrice de mémoires magnétiques non volatiles à haute densité, nécessite souvent la création et la propagation d'une entité, appelée paroi. Pour des dimensions d'objet de 10 à 100 nm, la taille de la paroi est comparable à celle de l'objet. Défauts, blocages, interaction entre objets sont autant de paramètres qui vont modifier fondamentalement la réponse de l'objet à l'application d'un champ magnétique. La configuration d'aimantation sera dictée par la forme des objets. Une partie de la thèse de C. de Buttet sera notamment axée sur cet aspect.

L'autre aspect de ma future activité de recherche concerne l'étude des propriétés de transport électronique de ces nanostructures, sous forme de couche magnétique unique ou d'empilements de couches magnétiques, semi-conductrices et isolantes.

Michel HEHN

Né le 10 mars 1971 à Forbach (57)

Marié

Nationalité Française

Laboratoire de Physique des Matériaux

Université Henri Poincaré

Boulevard des Aiguillettes, B.P. 239

54506 VANDOEUVRE LES NANCY

E-mail : Hehn@lpm.u-nancy.fr

-
- 11/2002** Prix du meilleur chercheur en Lorraine décerné par le conseil régional.
- 10/2001** Chargé de Recherche première classe au Laboratoire de Physique des Matériaux de Nancy (UMR 7556).
- 10/1998** Chargé de Recherche seconde classe au Laboratoire de Physique des Matériaux de Nancy (UMR 7556).
- 1997-1998** Séjour post-doctoral à l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg (UMR 7504).
Activité de recherche principale : *élaboration et caractérisation de Jonctions Tunnel Magnéto-résistives à base de couches antiferromagnétiques artificielles Co/Ru/Co.*
Activités de recherche annexes : *élaboration et étude de nanostructures magnétiques sous forme de fils, plots et structures auto-organisées.*
- 1996-1997** Séjour post-doctoral à l'UMR CNRS/Thomson à Orsay dans le cadre du Service National.
Activité de recherche principale : *élaboration et caractérisation de Jonctions Tunnel Magnéto-résistives NiFe / Al₂O₃ / Co.*
Activités de recherche annexes : *élaboration et étude de nanostructures magnétiques sous forme de fils, plots et structures auto-organisées.*
- 1994-1996** Thèse de doctorat à l'Université Louis Pasteur de Strasbourg sous la direction du Dr. K. Ounadjela avec mention très honorable et les félicitations du jury.
Sujet : *Elaboration, étude des propriétés structurales et magnétiques de couches et réseaux de plots submicroniques à base de cobalt.*
- 1991-1994** Préparation et obtention du Diplôme d'Ingénieur à l'Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse, option Génie Physique des Matériaux.
Mention TB, major de promotion.
- 1993-1994** DEA de Physique du Solide I à l'Université Paul Sabatier à Toulouse.
Mention TB, major de promotion.

RESPONSABILITES SCIENTIFIQUES

Co encadrement de travaux de recherches

Co encadrements de travaux de thèse :

- Thèse de Marc Demand portant sur l'étude du magnétisme de basse dimensionnalité dans des réseaux réguliers de plots lithographiés par rayons X et dans des réseaux irréguliers d'îlots obtenus directement par croissance. Soutenance faite le 3 décembre 1999. Mention très honorable avec les félicitations du jury.
- Thèse de Coriolan Tiusan portant sur le transport tunnel dépendant du spin dans des hétérostructures Métal/Isolant et la relation existant entre la magnétorésistance tunnel et le comportement magnétique des électrodes métalliques. Soutenance faite le 26 juin 2000. Mention très honorable avec les félicitations du jury.
- Thèse de Daniel Lacour portant sur le transport tunnel dépendant spin dans des hétérostructures Métal/Isolant. Soutenance faite le 19 Décembre 2002. Mention très honorable avec les félicitations du jury.
- Thèse de Grégory Malinowski portant sur la réalisation de capteurs reposant sur le transport tunnel dépendant du spin dans des hétérostructures Métal/Isolant. Soutenance prévue en Décembre 2004.
- Thèse de Côme de Buttet portant sur la réalisation de mémoires magnétiques à base de jonctions tunnel magnétiques. Soutenance prévue en Septembre 2006.

Co encadrement de stages de DEA :

- Stage de DEA de Joël Moser portant sur la détermination des constantes d'anisotropie dans les couches de Co et multicouches Co/Pt. Soutenance de DEA septembre 1995.
- Stage de DEA de Wilfried Grange portant sur les structures à dimensions latérales réduites : étude de la réorientation de l'aimantation dans des réseaux de plots de cobalt sub-microniques. Soutenance de DEA septembre 1996.
- Stage de DEA de Marc Demand portant sur l'évolution du désordre dans des structures magnétiques lamellaires par microscopie à force magnétique. Soutenance de DEA septembre 1996.
- Stage de DEA de Daniel Lacour portant sur le transport tunnel dépendant spin dans des hétérostructures Métal/Isolant. Soutenance de DEA septembre 1999.
- Stage de DEA de Jérôme Moritz portant sur l'élaboration et la caractérisation de jonctions tunnel magnétiques et application à des capteurs de champs magnétiques. Soutenance de DEA le 19 juin 2000.
- Stage de DEA de Fanny Elhoussine portant sur l'élaboration et la caractérisation de jonctions tunnel magnétiques. Soutenance de DEA en Juillet 2001.

Co encadrement de stages de Magistère :

- Stage de Magistère de Fanny Elhoussine portant sur l'élaboration et la caractérisation de jonctions tunnel magnétiques. Soutenance de magistère en septembre 1999.
- Stage de Magistère de Julien Philbert portant sur l'élaboration et la caractérisation de jonctions tunnel magnétiques. Soutenance de magistère le 3 Novembre 2000.

Co encadrement de stages de Maîtrise :

- Stage de Maîtrise de J. C. Perrin et P. Savoy portant sur l'élaboration et la caractérisation de jonctions tunnel magnétiques. Soutenance de maîtrise en juin 2002.
- Stage de Maîtrise de S. Léonard et C. Didiot portant sur l'élaboration et la caractérisation de petits éléments de Co et Py. Soutenance de maîtrise en juin 2003.

Co encadrement de séjours post doctoraux :

- Séjour postdoctoral du Dr. Peter Rottländer portant sur l'étude de dispositifs micro-électroniques utilisant des jonctions tunnel magnétiques (2000-2002).

Jury de thèse

J'ai participé au jury de trois thèses de doctorat en tant qu'invité.

- Thèse de M. Marc Demand. Soutenance faite le 3 décembre 1999. Mention très honorable avec les félicitations du jury.
- Thèse de M. Coriolan Tiusan. Soutenance faite le 26 Juin 2000. Mention très honorable avec les félicitations du jury.
- Thèse de M. Lacour Daniel. Soutenance faite le 19 Décembre 2002. Mention très honorable avec les félicitations du jury.

Activités liées aux conférences

- Animateur de la session orale 'Spin Manipulation' lors de la conférence 'The 47th annual conference on magnetism and magnetic materials', Tampa, Florida, 11-15 Novembre 2002.

VALORISATION DE LA RECHERCHE

Brevet

Brevet français n°FR2791814 du 31 mars 1999 déposé au nom de l'Université Louis Pasteur de Strasbourg et de l'Université Henri Poincaré de Nancy par Dr. Kamel Ounadjela et Dr. Michel Hehn. Il demande la protection de l'invention intitulée « Dispositif microélectronique à jonctions tunnel et réseau de mémoires et capteur comprenant de tels dispositifs ».

Brevet européen n°WO0059051 du 16 mars 2000 déposé au nom de l'Université Louis Pasteur de Strasbourg et de l'Université Henri Poincaré de Nancy par Dr. Kamel Ounadjela et Dr. Michel Hehn. Il demande la protection européenne de l'invention intitulée « Dispositif microélectronique à jonctions tunnel et réseau de mémoires et capteur comprenant de tels dispositifs ».

Brevet français n°FR0303189 du 14 mars 2003 déposé au nom de la société SNR Roulements par les inventeurs M. Hehn, A. Schuhl et G. Malinowski. Il demande la protection de l'invention intitulée « Capteur magnétorésistif comprenant un élément sensible ferromagnétique / antiferromagnétique ».

Organisation de réunions scientifiques

- Coorganisateur du 4^{ème} colloque Louis Néel "couches minces et nanostructures magnétiques", 25-26 Janvier 1996, Couvent du Mont Sainte-Odile, Alsace.
- Coorganisateur de la réunion du Groupement De Recherches POMMES, 4-5 Décembre 2000. Intitulé : POMMES ET APPLICATIONS, Abbaye des Prémontrés, Pont à Mousson.
- Coorganisateur du colloque de l'Institut Lorrain des Matériaux sur le thème "nanomatériaux", 14 mars 2001, Metz.

- Coorganisateur du 8^{ème} colloque Louis Néel “couches minces et nanostructures magnétiques”, 24-26 Septembre 2002, Espace LAC, Gérardmer, Vosges.

Articles de vulgarisation

1995

Les nanostructures magnétiques, rapport annuel 1995 du CNRS.

1996

Les étranges comportements des plots magnétiques, CNRS-Info 326, 5-6 (1996).

M. Hehn, K. Ounadjela, IPCMS, Strasbourg

Les plots magnétiques, Pour la science, Décembre (1996).

M. Hehn, K. Ounadjela, J.-P. Bucher, IPCMS, Strasbourg

Les plots magnétiques effacés ont-ils des îlots de mémoire ?, Revue du palais de la découverte n°242, page 6, Novembre (1996).

Prix

- Lauréat du Prix Régional du Chercheur 2002 attribué par le Conseil Régional de Lorraine pour les recherches en physique des matériaux entrepris au sein du Laboratoire de Physique des Matériaux.

Contrats

Contrats français

- Participation à la rédaction du Contrat de Plan Etat-région 2000-2006, thématique B : Ingénierie intégrée de conception de produits de matériaux et de procédés industriels, sous-programme : Nouveaux matériaux fonctionnels et microtechnologies, microcapteurs et microsystèmes magnétiques, piézoélectriques, optiques, alliages à mémoire de forme. Responsable : Pr. Patrick Alnot.

- J'ai participé de manière active à la rédaction d'un dossier pour une action concertée incitative « Nanostructures : effet physique et fonctionnalité ». Intitulé : NanoDYN. Projet financé sur trois ans. Coordinateur IPCMS, Dr. Kamel Ounadjela.

Contrats européens

1997 - 2000

J'ai été impliqué dans la rédaction et le suivi de deux contrats européens sous la direction du Dr. Kamel Ounadjela.

1997 - 2000

Responsable IPCMS et coordinateur européen : Dr Kamel Ounadjela

Contrat Européen Training and Mobility of Researchers ERBFMRX-CT97-0124, 'High Frequency Dynamics of Mesomagnetic systems' incluant les laboratoires suivants :

Laboratoires Universitaires: IPCMS, Clarendon laboratory (Oxford), University of York (York), Marx Plank Institute (Halle), Kaiserslautern University, Demokritos (Athens), Université Paris-Sud (Orsay), CEA-Saclay
Laboratoires industriels: Thomson (Orsay)

1998 - 2001

Responsable IPCMS : Dr Kamel Ounadjela

Contrat européen BRITE EURAM Applications, 'Wafer scale High performance Magnetic sensors based on spin dependent tunnelling' qui regroupe les laboratoires suivants :

Laboratoires Universitaires: IPCMS, KUN (Nijmegen)

Laboratoires industriels: Siemens (Erlangen), Thomson (Orsay), Selet (Turin)

2000 - 2002

J'ai été fortement impliqué sous la direction du Pr. Alain Schuhl dans la rédaction d'un projet de contrat européen qui est financé par la CEE depuis le 1^{er} Janvier 2000. Ce dernier repose sur le brevet que nous avons déposé en mars 1999 et vise le développement d'une nouvelle génération de composants magnétoélectroniques (transistors de dimensions latérales submicroniques à gain ajustable magnétiquement, mémoires magnétiques de dimensions latérales submicroniques). Dans le cadre de ce contrat européen, je contribue à la coordination du contrat.

2000 - 2002

Responsable UHP et coordinateur européen : Pr. Alain Schuhl

Contrat Européen « NanoMEM » IST – 1999 - 13471, '*Semiconductor free nanoscale non-volatile electronics and memories based on magnetic tunnel junctions* ' incluant les laboratoires suivants :

Laboratoires Universitaires: UHP (Nancy), IPCMS (Strasbourg), Clarendon laboratory (Oxford),

Marx Plank Institute (Halle), Université Paris-Sud (Orsay)

Laboratoires industriels: Thomson (Orsay), Siemens (Erlangen)

PRODUCTION SCIENTIFIQUE

Publications (revues à comité de lecture)

1996

Giant Magnetoresistive effects in a single element magnetic thin film

J. F. Gregg, W. Allen, K. Ounadjela, M. Viret, M. Hehn, S. M. Thompson et J. M. D. Coey, Phys. Rev. Lett. **77**, 1580-1583 (1996).

Nanoscale magnetic domains in epitaxial cobalt films

M. Hehn, S. Padovani, K. Ounadjela et J.-P. Bucher, Phys. Rev. B **54**, 3428 (1996).

Nanoscale magnetic domains in mesoscopic magnets

M. Hehn, K. Ounadjela, J.-P. Bucher, F. Rousseaux, D. Decanini, B. Bartenlian et C. Chappert, Science **272**, 1782-1785 (1996).

1997

Reorientational magnetic transition in nano-structured epitaxial cobalt dots

M. Hehn, K. Ounadjela, R. Ferré, W. Grange et F. Rousseaux, Appl. Phys. Lett. **71**, 2833 (1997).

Domain confinement in mesoscopic epitaxial cobalt patches

K. Ounadjela, M. Hehn et R. Ferré, NATO ASI Series E, Vol. 338, pages 485-487 (1997).

1998

Magnetoresistance of ferromagnetic tunnel junctions with Al₂O₃ barriers formed by rf sputter etching in Ar/O₂ plasma

J. Nassar, M. Hehn, A. Vaurès, F. Petroff and A. Fert, Appl. Phys. Lett. **73**, 698 (1998).

1999

Application to dielectric, metallic and magnetic samples of a transmission mode scanning near field optical microscope with normal force distance regulation on bent optical fiber

R. David, C. Chicanne, N. Richard, J. R. Krenn, F. Scheurer, K. Ounadjela, M. Hehn, Y. Lacroute, J. P. Goudonnet, Review of Scientific Instruments **70**, 4587 (1999).

2000

Correlation between micromagnetism and tunnel magnetoresistance in magnetic tunnel junctions using artificial ferrimagnets

C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, H. A. M. van den Berg, V. Da Costa, Y. Henry, Phys. Rev. B **61**, 580 (2000)

Tunnel Magneto-Resistance and Induced Domain Structure in Al₂O₃ based junctions

M. Hehn, O. Lenoble, D. Lacour, C. Féry, M. Piécuch, C. Tiusan and K. Ounadjela, Phys. Rev. B **61**, 11643 (2000).

Roughness-induced instability in stripe domain patterns

J. V. Kim, M. Demand, M. Hehn, K. Ounadjela, R. L. Stamps, Phys. Rev. B **62**, 6467 (2000).

Magnetic anisotropy and domain duplication in transport properties of tunnel junctions
M. Hehn, O. Lenoble, D. Jacour, A. Schuhl, Phys. Rev. B **62**, 11344 (2000).

2001

Domain duplication in magnetic tunnel junctions studied by Kerr microscopy
O. Lenoble, M. Hehn, D. Jacour, A. Schuhl, D. Hrabovsky, J.F. Bobo, B. Diouf, A.R. Fert, Phys. Rev. B **63**, 52409 (2001).

Tantalum oxide as an alternative low height tunnel barrier in magnetic junctions
P. Rottländer, M. Hehn, O. Lenoble, A. Schuhl, Appl. Phys. Lett. **78**, 3274 (2001).

Field-dependent domain structure evolution in artificial ferrimagnets analyzed by spin polarized tunnel transport in magnetic tunnel junctions
C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, Phys. Rev. B. **64**, 104423 (2001)

Domain duplication in ferromagnetic sandwiches
D. Lacour, M. Hehn, O. Lenoble, A. Schuhl, C. Tiusan and K. Ounadjela, J. of Appl. Phys. **89**, 8006 (2001).

Tunnel barrier parameters and magnetoresistance in the parabolic band model
F. Montaigne, M. Hehn, A. Schuhl, Phys. Rev. B. **64**, 144402 (2001)

2002

Structure and magnetic properties of epitaxial cobalt islands
M. Demand, M. Hehn, R.L. Stamps, C. Meny, K. Ounadjela, Eur. Phys. Journal B **25**, 167 (2002).

Magnetic field induced instabilities and irreversible evolution in modulated ferromagnetic phases of cobalt films
M. Demand, M. Hehn, S. Padovani, J. P. Bucher, K. Ounadjela, J. of Mag. Mag. Mat. **247**, 147 (2002).

Determining the interfacial barrier height and its relation to tunnel magnetoresistance
P. Rottländer, M. Hehn and A. Schuhl, Phys. Rev. B. **65**, 054422 (2002).

Hot electron 3-terminal devices based on magnetic tunnel junction stacks
M. Hehn, F. Montaigne and A. Schuhl, Phys. Rev. B. **66**, 144411 (2002).

Magnetic-roughness-induced magnetostatic interactions in magnetic tunnel junctions
C. Tiusan, M. Hehn and K. Ounadjela, Eur. Phys. J. B **26**, 431 (2002).

Epitaxial MgO layer for low-resistance and coupling-free magnetic tunnel junctions
E. Popova, J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, H. Fischer, M. Hehn, F. Montaigne, M. Alnot, S. Andrieu, A. Schuhl, E. Snoeck, V. da Costa, Appl. Phys. Lett. **81**, 1035 (2002).

Interlayer magnetic coupling interactions of two ferromagnetic layers by spin polarized tunneling

J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, A. Schuhl, Phys. Rev. Lett. **89**, 107206 (2002).

Hot electron transport in 3-terminal devices based on magnetic tunnel junctions

D. Lacour, M. Hehn, F. Montaigne, H. Jaffrès, P. Rottländer, G. Rodary, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff and A. Schuhl, Eur. Phys. Lett. **60**, 896 (2002).

The defining length scales of mesomagnetism : a review

C. L. Dennis, R. P. Borges, L. D. Buda, U. Ebels, J. F. Gregg, M. Hehn, E. Jouguelet, K. Ounadjela, I. Petej, I. L. Prejbeanu, M. J. Thornton, J. Phys. : Condens. Matter **14**, R1175-R1262 (2002)

2003

High TMR in epitaxial Fe/MgO/Fe tunnel junctions

J. Faure-Vincent, C. Tiusan, E. Jouguelet, F. Canet, M. Sajieddine, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, A. Schuhl, Appl. Phys. Lett. **82**, 4507 (2003).

Magnetic origin of enhanced top exchange biasing in Py/IrMn/Py multilayers

G. Malinowski, M. Hehn, O. Lenoble, A. Schuhl, Phys. Rev. B **68**, 184404 (2003).

Using antiferromagnetic/ferromagnetic bilayers as detection layers in magnetic tunnel junctions

G. Malinowski, M. Hehn, M. Sajieddine, F. Montaigne, E. Jouguelet, F. Canet, M. Alnot, D. Lacour, A. Schuhl, Appl. Phys. Lett. **83**, 4372 (2003).

A two-axis magnetometer using a single magnetic tunnel junction tunnel junctions

J.-B. Kammerer, L. Hebrard, M. Hehn, F. Braun, P. Alnot, A. Schuhl, acceptée pour publication dans IEEE sensors (2003).

Intrinsic thermal-compensated field sensor based on single magnetic tunnel junctions

G. Malinowski, M. Hehn, F. Montaigne, E. Jouguelet, A. Schuhl, acceptée pour publication dans Appl. Phys. Lett. (2003).

Domain walls unmasked during domain duplication in ferromagnetic tunnel junctions

P. Rottlaender, M. Hehn, F. Elhoussine, O. Lenoble, A. Schuhl, acceptée pour publication dans Phys. Rev. B (2003).

Publications (proceedings à comité de lecture)

1995

A phase shift in the coupling in $\text{Co}_{1-x}\text{Ag}_x/\text{Cu}/\text{Co}_{1-x}\text{Ag}_x$ systems

L. Zhou, P. E. Wigen, R. L. Stamps, Z. Zhang, K. Ounadjela, M. Hehn et J. Gregg, IEEE Trans. Mag. **31**, 3924 (1995).

INTERMAG'95, 18-21 April 1995, San Antonio, USA.

1996

Dependence of the interlayer exchange coupling on the constitution of the magnetic layers

K. Ounadjela, L. Zhou, R. L. Stamps, P. E. Wigen, M. Hehn et J. Gregg, J. Appl. Phys. **79** (1996).

Fortieth Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 6-9 November 1995, Philadelphia, USA.

Structural and magnetic study of submicronic single crystal cobalt box arrays

M. Hehn, K. Ounadjela, S. Padovani, J.-P. Bucher, J. Arabski, N. Bardou, B. Bartenlian, C. Chappert, F. Rousseaux, D. Decanini, F. Carcenac, E. Cambril et M. F. Ravet, J. Appl. Phys. **79** (1996).

Fortieth Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 6-9 November 1995, Philadelphia, USA.

Interlayer magnetic coupling in Co/Ru/CoAg and Co/Cu/CoAg trilayers films : effect of Ag impurities on the exchange coupling

K. Ounadjela, Li Zhou, R. Stamps, M. Hehn, Z. Zhang, P. Wigen et J. Gregg, J. Mag. Mag. Mat. **156**, 267-268 (1996).

2nd International Symposium on Metallic Multilayers, 11-14 September 1995, Cambridge, UK.

1997

Nanoscale magnetic domains in mesoscopic dots : experimental and theoretical investigations of zero field domain structures

M. Hehn, R. Ferré, K. Ounadjela, J.-P. Bucher et F. Rousseaux, J. Mag. Mag. Mat. **165**, 5 (1997).

E-MRS Spring Meeting, Symposium E : Magnetic Ultrathin Films, Multilayers and Surfaces, 4-7 June 1996, Strasbourg, France.

Nanoscale magnetic domains in mesoscopic dots : micromagnetic investigation of magnetisation processes

R. Ferré, M. Hehn et K. Ounadjela, J. Mag. Mag. Mat. **165**, 9 (1997).

E-MRS Spring Meeting, Symposium E : Magnetic Ultrathin Films, Multilayers and Surfaces, 4-7 June 1996, Strasbourg, France.

The ferromagnetic domain wall as a GMR trilayer

W. Allen, J. F. Gregg, K. Ounadjela, M. Viret, M. Hehn, S. M. Thompson et J. M. D. Coey, J. Mag. Mag. Mat. **165**, 121 (1997).

E-MRS Spring Meeting, Symposium E : Magnetic Ultrathin Films, Multilayers and Surfaces, 4-7 June 1996, Strasbourg, France.

Observation of an ordered new compound Co_{1-x}Ru_x prepared by MBE on a Ru buffer layer

V. Pierron-Bohnes, N. Ringelstein, A. Michel, S. Boukari, L. Bouzidi, N. Persat, E. Beaurepaire, M. Hehn, D. Muller et M. C. Cadeville, J. Mag. Mag. Mat. **165**, 176 (1997).

E-MRS Spring Meeting, Symposium E : Magnetic Ultrathin Films, Multilayers and Surfaces, 4-7 June 1996, Strasbourg, France.

Magnetic configurations in multilayers : temperature dependent cone states and narrow stripe domains.

L. Louail, K. Ounadjela, M. Hehn, K. Cherifi-Khodjaoui, M. Gester, H. Danan et R. L. Stamps, J. Mag. Mag. Mat. **165**, 387 (1997).

E-MRS Spring Meeting, Symposium E : Magnetic Ultrathin Films, Multilayers and Surfaces, 4-7 June 1996, Strasbourg, France.

Compositional control of interlayer magnetic coupling in Co/Ru/Co(Ag) and Co/Cu/Co(Ag) trilayers films

P. Wigen, Li Zhou, R. Stamps, K. Ounadjela, M. Hehn et J. Gregg, J. Mag. Mag. Mat. **165**, 465 (1997).

E-MRS Spring Meeting, Symposium E : Magnetic Ultrathin Films, Multilayers and Surfaces, 4-7 June 1996, Strasbourg, France.

Engineering magnetic responses in hcp cobalt thin films

M. Hehn, K. Cherifi-Khodjaoui, K. Ounadjela, J.-P. Bucher et J. Arabski, J. Mag. Mag. Mat. **165**, 520 (1997).

E-MRS Spring Meeting, Symposium E : Magnetic Ultrathin Films, Multilayers and Surfaces, 4-7 June 1996, Strasbourg, France.

Anisotropies, cone states, and stripe domains in Co/Pt multilayers

R. L. Stamps, L. Louail, M. Hehn, M. Gester and K. Ounadjela, J. Appl. Phys. **81**, 4751 (1997).

41th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 12-15 November 1996, Atlanta, USA.

Reorientational magnetic transition in nanostructured epitaxial cobalt patches

K. Ounadjela, M. Hehn, R. Ferré and F. Rousseaux, J. Appl. Phys. **81**, 5470 (1997).

41th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 12-15 November 1996, Atlanta, USA.

1998

Magnetic singularities in self-organized epitaxial cobalt structures.

M. Demand, M. Hehn, S. Cherifi, K. Cherifi, K. Ounadjela, IEEE Trans. Magn. Mater, **34**, 1084 (1998).

Seventh Joint Magnetism and Magnetic Materials-Intermag Conference, 6-9 January 1998, San Francisco, USA.

Magnetic properties of self-organized epitaxial cobalt structures

M. Demand, M. Hehn, K. Ounadjela, J.-V. Kim, A. Vagov, R.L. Stamps, J. of Appl. Phys **85**, 5498 (1999).

43rd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 9-12 November 1998, Miami, USA.

Artificial antiferromagnetic tunnel junction sensors based on Co/Ru/Co sandwiches

C. Tiusan, M. Hehn, K. Ounadjela, Y. Henry, J. Hommet, C. Meny, H. A. M. van den Berg, L. Baer and R. Kinder, J. of Appl. Phys. **85** (1999).

43rd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 9-12 November 1998, Miami, USA.

1999

Tunnel magnetoresistance versus micromagnetism in magnetic tunnel junctions

C. Tiusan, T. Dimopoulos, M. Hehn, K. Ounadjela, V. Da Costa, Y. Henry, H. A. M. van den Berg, J. of Appl. Physics **87**, 4676 (2000).

44th annual conference on magnetism and magnetic materials, 15-18 November 1999, San Jose, Californie, USA.

Enhanced robustness and tunnel magnetoresistance in artificial ferrimagnet based tunnel junctions

T. Dimopoulos, C. Tiusan, K. Ounadjela, M. Hehn, H. A. M. van den Berg, Y. Henry, V. Da Costa, J. of Appl. Physics **87**, 4685 (2000).

44th annual conference on magnetism and magnetic materials, 15-18 November 1999, San Jose, Californie, USA.

Magnetic domain structure in submicrometer Co dot arrays studied with magnetic force microscopy

M. Demand, M. Hehn, K. Ounadjela, R. L. Stamps, E. Cambril, A. Cornette, F. Rousseaux, J. of Appl. Physics **87**, 5111(2000).

44th annual conference on magnetism and magnetic materials, 15-18 November 1999, San Jose, Californie, USA.

2000

Magnetostatic interactions in artificial ferrimagnet based magnetic tunnel junctions

C. Tiusan, T. Dimopoulos, L. Buda, V. Da Costa, K. Ounadjela, M. Hehn, H. A. M. van den Berg, J. of Appl. Physics **89**, 6811 (2001).

The 8th Joint MMM-Intermag conference, 7-11 January 2001, San Antonio, Texas, USA.

Spin polarized tunneling as a probe for quantitative analysis of field dependent domain structure in magnetic tunnel junctions

C. Tiusan, M. Hehn, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, J. of Appl. Physics **89**, 6668 (2001).

The 8th Joint MMM-Intermag conference, 7-11 January 2001, San Antonio, Texas, USA.

2001

Magneto-resistance and induced domain structure in tunnel junctions

M. Hehn, O. Lenoble, D. Lacour, A. Schuhl, C. Tiusan, D. Hrabovsky and J.F. Bobo

Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. **674**, T2.9 (2001).

E-MRS Spring Meeting, April 16-20 (2001), San Francisco, Californie

To which extent is the influence of each electrode of a magnetic tunnel junction separable ?

F. Montaigne, M. Hehn and A. Schuhl, J. of Appl. Phys. **91**, 7020 (2002).

The 46th annual conference on magnetism and magnetic materials, Seattle, Washington, 12-16 Novembre 2001.

2002

Antiferromagnetic coupling by spin polarized tunneling

J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, A. Schuhl, J. of Appl. Physics **93**, 1 (2003). The 47th annual conference on magnetism and magnetic materials, Tampa, Florida, 11-15 Novembre 2002.

Communications orales à des congrès, symposium

1995

Structural and magnetic study of submicronic single crystal cobalt box arrays

M. Hehn, K. Ounadjela, S. Padovani, J.P. Bucher, J. Arabski, N. Bardou, B. Bartenlian, C. Chappert, F. Rousseaux, D. Decanini, F. Carcenac, E. Cambril, M.F. Ravet, 40th annual conference on magnetism and magnetic materials, 6-9 novembre 1995, Philadelphie (ref).

1996

Effet de la microstructuration sur la structure en domaines magnétiques de couches de cobalt épitaxiées.

M. Hehn, K. Ounadjela, S. Padovani, J.-P. Bucher, J. Arabski, N. Bardou, B. Bartenlian, C. Chappert, F. Rousseaux, D. Decanini, F. Carcenac, E. Cambril et M. F. Ravet, Colloque Louis Néel : couches minces et nanostructures magnétiques, 25-26 janvier 1996, Couvent du Mont Sainte Odile.

Domain confinement in small epitaxial cobalt patches

M. Hehn, K. Ounadjela, J.-P. Bucher, F. Rousseaux, C. Chappert, B. Bartenlian et D. Decanini, The IEEE International Magnetism Conference, Seattle, 1996.

Nanoscale magnetic domains in mesoscopic dots : experimental and theoretical investigations of zero field domain structures.

M. Hehn, R. Ferré, K. Ounadjela et J.-P. Bucher, EMRS Spring Meeting, Strasbourg, 1996 (ref).

Reorientational magnetic transition in nanostructured epitaxial cobalt patches

K. Ounadjela, M. Hehn, R. Ferré, F. Rousseaux, 41th annual conference on magnetism and magnetic materials, 12-15 novembre 1996, Atlanta.

1997

Instabilités de domaines dans des couches de Cobalt

M. Hehn, M. Demand, J.-P. Bucher et K. Ounadjela, Colloque Louis Néel : couches minces et nanostructures magnétiques, 5-7 juin 1997, Banyuls sur Mer.

1998

Magnetic instabilities in self-organized epitaxial Cobalt structures

M. Demand, K. Ounadjela, K. Cherifi-Khodjaoui, S. Cherifi, M. Hehn et R. L. Stamps, 7th joint MMM-Intermag conference, 6-9 janvier 1998, San Francisco.

Magnetization in self-organized epitaxial cobalt structures.

M. Demand, M. Hehn, K. Cherifi, K. Ounadjela, R.L. Stamps, Workshop 'High Frequency Dynamics', Strasbourg, 18-19 mai 1998.

Croissance et magnétisme de structures auto-organisées à base de cobalt épitaxié.

M. Demand, M. Hehn, K. Cherifi, K. Ounadjela, R.L. Stamps, Réunion 'Croissance auto-organisée de nanostructures ' dans le cadre du Groupement de Recherche POMMES, Nancy, 30 juin 1998.

Shape controlled domain structures in mesoscopic systems

K. Ounadjela, Y. Henry, M. Hehn and L. Piroux. 7th European Magnetic Materials and Applications Conference (Saragosse, 9-12 septembre 1998).

Artificial antiferromagnetic tunnel junction via sputter-etching oxidation

C. Tiusan, M. Hehn, Y. Henry, V. Da Costa, J. Hommet, C. Mény, K. Ounadjela, L. Baer, H.A.M. van den Berg. 43rd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (Miami, 9-12 novembre 1998).

Jonctions Magnétiques à effet Tunnel à base du système antiferromagnétique artificiel

C. Tiusan, M. Hehn, K. Ounadjela, Y. Henry, Reunion GDR POMMES, Gif-sur-Yvette, 7-8 décembre 1998.

1999

Croissance et propriétés magnétiques d'îlots de cobalt épitaxiés.

M. Demand, K. Ounadjela, M. Hehn, J.-V. Kim, R.L. Stamps, 6^{ième} Colloque Louis Néel 'Couches Minces et Nanostructures Magnétiques', Dieppe, 3-5 juin 1999.

Structures en domaines et transport dépendant du spin dans les jonctions tunnel magnétiques

C. Tiusan, T. Dimopoulos, V. Da Costa, Y. Henry, K. Ounadjela, M. Hehn, H.A.M. van den Berg, 6^{ième} Colloque Louis Néel 'Couches Minces et Nanostructures Magnétiques', Dieppe, 3-5 juin 1999.

Tunnel magnetoresistance versus micromagnetism in magnetic tunnel junctions

C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, V. Da Costa, Y. Henry, M. Hehn, H. A. M. van den Berg, 44th annual conference on magnetism and magnetic materials, San Jose, Californie, 15-18 Novembre 1999.

Enhanced tunnel magnetoresistance in artificial antiferromagnet based magnetic tunnel sensors

T. Dimopoulos, C. Tiusan, K. Ounadjela, Y. Henry, V. Da Costa, H. A. M. van den Berg, M. Hehn, 44th annual conference on magnetism and magnetic materials, San Jose, Californie, 15-18 Novembre 1999.

Manipulating the onset of the magnetization reversal in magnetic nanowires

U. Ebels, Y. Henry, M. Hehn, K. Ounadjela, A. Radulescu, L. Piraux, J.-L. Duvail, J.-M. George, 44th annual conference on magnetism and magnetic materials, San Jose, Californie, 15-18 Novembre 1999.

2000

Relation entre transport polarisé et magnétisme

C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, H.A.M. van den Berg, V. da Costa, Y. Henry, Journée thématique IPCMS: Nanostructures Magnétiques, 8 mars 2000.

Jonctions tunnel à base d'oxyde de tantale

P. Rotländer, M. Hehn, O. Lenoble, F. Montaigne, A. Schuhl

Réunion du Groupement De Recherches POMMES, Abbaye des Prémontrés, Pont à Mousson, 4-5 Décembre 2000.

Spin polarized tunneling as a probe for quantitative analysis of field dependent domain structure in magnetic tunnel junctions

C. Tiusan, M. Hehn, T. Dimopoulos, K. Ounadjela

The 8th Joint MMM-Intermag Conference, San-Antonio, Texas, January 7-11, 2000

Magnetostatic interactions in artificial ferrimagnet based magnetic tunnel junctions

C. Tiusan, M.Hehn, T. Dimopoulos, L. Buda, V. Da Costa, K. Ounadjela, H.A.M. van den Berg

The 8th Joint MMM-Intermag Conference, San-Antonio, Texas, January 7-11, 2000

2001

Paramètres gouvernant la duplication de domaines magnétiques dans les jonctions tunnel

D. Lacour, M. Hehn, O. Lenoble, A. Schuhl, 7^{ième} Colloque Louis Néel ‘Couches Minces et Nanostructures Magnétiques’, Dourdan, 8-9 mars 2001.

Jonctions tunnel à base d’oxyde de tantale

P. Rottländer, M. Hehn, O. Lenoble, F. Montaigne, A. Schuhl, 7^{ième} Colloque Louis Néel ‘Couches Minces et Nanostructures Magnétiques’, Dourdan, 8-9 mars 2001.

Effet des interactions magnétostatiques dans les jonctions tunnel sur le transport tunnel polarisé

C. Tiusan, M. Hehn, T. Dimopoulos, V. da Costa et K. Ounadjela, 7^{ième} Colloque Louis Néel ‘Couches Minces et Nanostructures Magnétiques’, Dourdan, 8-9 mars 2001.

Magneto-resistance and induced domain structure in tunnel junctions

M. Hehn, O. Lenoble, D. Lacour, A. Schuhl, C. Tiusan, D. Hrabovsky and J.F. Bobo
E-MRS Spring Meeting, April 16-20 (2001), San Francisco, Californie

Tunnel magnetoresistance and coherent effects in the parabolic band model

F. Montaigne, M. Hehn and A. Schuhl

The 46th annual conference on magnetism and magnetic materials, Seattle, Washington, 12-16 Novembre 2001.

2002

Antiferromagnetic coupling by spin polarized tunneling

J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, A. Schuhl
The 47th annual conference on magnetism and magnetic materials, Tampa, Florida, 11-15 Novembre 2002.

Hot electron transport in 3-terminal devices based on magnetic tunnel junctions

D. Lacour, M. Hehn, F. Montaigne, H. Jaffrès, P. Rottländer, G. Rodary, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff and A. Schuhl

The 47th annual conference on magnetism and magnetic materials, Tampa, Florida, 11-15 Novembre 2002.

Application of Spin Electronics

A. Schuhl, M. Hehn, F. Montaigne, C. Tiusan

Nanofair, 25-26 November 2002, Palais des Congrès, Strasbourg

Communications poster à des congrès, symposium

1995

Structural and magnetic study of submicronic single crystal cobalt box arrays fabricated using x-ray lithography

M. Hehn, K. Ounadjela, J. Arabski, M. Romeo, J.-P. Jay, N. Bardou, B. Bartenlian, C. Chappert, F. Rousseaux, D. Decanini, F. Carcenac, E. Cambril, M.F. Ravet, The first International Symposium on Metallic Multilayers, Cambridge, 1995.

1996

Domaines magnétiques nanométriques à aimantation perpendiculaire dans des couches de cobalt épitaxiées

M. Hehn, S. Padovani, K. Ounadjela et J.-P. Bucher, Colloque Louis Néel : couches minces et nanostructures magnétiques, 25-26 janvier 1996, Couvent du Mont Sainte Odile.

Caractérisation structurale et magnétique de multicouches Co/Pt

K. Cherifi-Khodjaoui, L. Louail, M. Hehn, R. Stamps et K. Ounadjela, SFP 5ème Journée de la Matière Condensée, 28-30 Août 1996, Orléans.

Cobalt thin films, a model system for various investigations

M. Hehn, K. Khodjaoui, K. Ounadjela, J. P. Bucher et J. Arabski, EMRS Spring Meeting, Strasbourg, 1996 (ref).

Magnetic configurations in multilayers : temperature dependent cone states and narrow stripe domains.

L. Louail, K. Ounadjela, M. Hehn, K. Cherifi-Khodjaoui, M. Gester, H. Danan et R. L. Stamps, EMRS Spring Meeting, Strasbourg, 1996 (ref).

Anisotropies, cone states and stripe domains in Co/Pt multilayers

R. L. Stamps, K. Ounadjela, L. Louail, K. Khodjaoui, M. Hehn, 41th annual conference on magnetism and magnetic materials, 12-15 novembre 1996, Atlanta (ref).

1999

Transport polarisé en spin dans les jonctions tunnel utilisant le système antiferromagnétique artificiel

C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, H.A.M. van den Berg, V. da Costa, Y. Henry, Ecole 'Magnéto-électronique de spin', Aussois, 3-8 janvier 1999.

Processus d'aimantation dans des nanofils de Cobalt et de Nickel

Y. Henry, U. Ebels, M. Hehn, K. Ounadjela, L. Piraux et J. M. George, 6^{ième} Colloque Louis Néel 'Couches Minces et Nanostructures Magnétiques', Dieppe, 3-5 juin 1999.

Domain structure and spin dependent transport in magnetic tunnel junctions

C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, H.A.M. van den Berg, V. da Costa, Y. Henry, Ecole 'Magnéto-électronique de spin', Rhodes, 12-18 septembre 1999.

2000

Domain structure duplication in Al₂O₃ Tunnel Junctions

M. Hehn, O. Lenoble, D. Lacour, A. Schuhl, C. Tiusan and K. Ounadjela
Symposium on Spin Electronics, Halle, Germany, 3-6 juillet 2000.

Electrode domain structure, magnetic switching and TMR of Co-AlO_x-Co lithographed devices

J.F. Bobo, B. Diouf, Ch. Fery, D. Hrabovsky, N. Bardou, A.R. Fert, M. Hehn, O. Lenoble, D. lacour, A. Schuhl
Symposium on Spin Electronics, Halle, Germany, 3-6 juillet 2000.

Magnétisme et transport polarise en spin dans les jonctions tunnel magnétiques. Utilisation du transport tunnel comme une sonde micromagnétique.

C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, V. Da Costa, M. Hehn, H. van den Berg
Réunion du Groupement De Recherches POMMES, Abbaye des Prémontrés, Pont à Mousson, 4-5 Décembre 2000.

2001

Magnétorésistance tunnel dans le modèle des bandes paraboliques

F. Montaigne, M. Hehn, A. Schuhl, 7^{ième} Colloque Louis Néel 'Couches Minces et Nanostructures Magnétiques', Dourdan, 8-9 mars 2001.

Tantalum oxide as a low height tunnel barrier for magnetic junctions

P. Rottländer, M. Hehn, O. Lenoble, F. Montaigne, A. Schuhl
E-MRS Spring Meeting, April 16-20 (2001), San Francisco, Californie

Articles de vulgarisation

1995

Les nanostructures magnétiques, rapport annuel 1995 du CNRS.

1996

Les étranges comportements des plots magnétiques, CNRS-Info 326, 5-6 (1996).

M. Hehn, K. Ounadjela, IPCMS, Strasbourg

Les plots magnétiques, Pour la science, Décembre (1996).

M. Hehn, K. Ounadjela, J.-P. Bucher, IPCMS, Strasbourg

Les plots magnétiques effacés ont-ils des îlots de mémoire ?, Revue du palais de la découverte n°242, page 6, Novembre (1996).

Chapitre de livre – article de revue

Observation of Micromagnetic Configurations in Mesoscopic Magnetic Elements

K. Ounadjela, I. L. Prejbeanu, L. D. Buda, U. Ebels, M. Hehn, 'Spin Electronics', Chapitre 14, Springer Verlag (2001).

La magnétorésistance géante et électronique de spin

M. Hehn, F. Montaigne, A. Schuhl, Les Techniques de l'ingénieur, **E 2 135**, 1-15 (2002).

The defining length scales of mesomagnetism : a review

C. L. Dennis, R. P. Borges, L. D. Buda, U. Ebels, J. F. Gregg, M. Hehn, E. Jouguelet, K. Ounadjela, I. Petej, I. L. Prejbeanu, M. J. Thornton, J. Phys. : Condens. Matter **14**, R1175-R1262 (2002).

UNE SELECTION D'ARTICLES

1-Nanoscale magnetic domains in epitaxial cobalt films

M. Hehn, S. Padovani, K. Ounadjela et J.-P. Bucher, Phys. Rev. B **54**, 3428 (1996).

2-Nanoscale magnetic domains in mesoscopic magnets

M. Hehn, K. Ounadjela, J.-P. Bucher, F. Rousseaux, D. Decanini, B. Bartenlian et C. Chappert, Science **272**, 1782-1785 (1996).

3-Magnetoresistance of ferromagnetic tunnel junctions with Al₂O₃ barriers formed by rf sputter etching in Ar/O₂ plasma

J. Nassar, M. Hehn, A. Vaurès, F. Petroff and A. Fert, Appl. Phys. Lett. **73**, 698 (1998).

4-Tunnel Magneto-Resistance and Induced Domain Structure in Al₂O₃ based junctions

M. Hehn, O. Lenoble, D. Lacour, C. Féry, M. Piécuch, C. Tiusan and K. Ounadjela, Phys. Rev. B **61**, 11643 (2000).

5-Tantalum oxide as an alternative low height tunnel barrier in magnetic junctions

P. Rottländer, M. Hehn, O. Lenoble, A. Schuhl, Appl. Phys. Lett. **78**, 3274 (2001).

6-Interlayer magnetic coupling interactions of two ferromagnetic layers by spin polarized tunneling

J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, A. Schuhl, Phys. Rev. Lett. **89**, 107206 (2002).

7-Using antiferromagnetic/ferromagnetic bilayers as detection layers in magnetic tunnel junctions

G. Malinowski, M. Hehn, M. Sajieddine, F. Montaigne, E. Jouguelet, F. Canet, M. Alnot, D. Lacour, A. Schuhl, acceptée pour publication dans Appl. Phys. Lett. (2003)

8-Tunnel barrier parameters and magnetoresistance in the parabolic band model

F. Montaigne, M. Hehn, A. Schuhl, Phys. Rev. B. **64**, 144402 (2001)

9-Hot electron 3-terminal devices based on magnetic tunnel junction stacks

M. Hehn, F. Montaigne and A. Schuhl, Phys. Rev. B. **66**, 144411 (2002).

10-Hot electron transport in 3-terminal devices based on magnetic tunnel junctions

D. Lacour, M. Hehn, F. Montaigne, H. Jaffrès, P. Rottländer, G. Rodary, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff and A. Schuhl, Eur. Phys. Lett. **60**, 896 (2002).

Nanoscale magnetic domain structures in epitaxial cobalt films

M. Hehn, S. Padovani, K. Ounadjela, and J. P. Bucher

Institut de Physique et de Chimie des Matériaux de Strasbourg, UMR 46 du CNRS, 23 rue du Loess, F-67037 Strasbourg, France

(Received 26 February 1996)

We have analyzed the magnetic domain structure in high quality molecular beam epitaxy (MBE) grown (0001)-hcp cobalt films of thicknesses varying from 10 to 500 nm for which the magnetic domain width is of the order of the film thickness. As the thickness of the film is increased, the magnetization turns from fully in plane (10 nm) to fully out of plane (50 nm) over a relatively large thickness range. Above 50 nm, the local domain imaging by magnetic force microscopy (MFM) together with overall magnetization measurements confirm the characteristic multidomain structure with perpendicular orientation predicted by Kittel. The periodicity of domains is then described by a $\sqrt{d}$ law (where d is the film thickness) that leads to the determination of domain wall energies. The occurrence of magnetic bubbles and periodic stripe patterns is visualized by variable field MFM. [S0163-1829(96)05429-X]

I. INTRODUCTION

A key issue in magnetic thin films is to find out under which conditions a film shows preferential orientation of the magnetization perpendicular to the film plane. This question was at the beginning of a great wealth of studies motivated mainly by the technological relevance of these films for data storage devices and sensors.¹⁻³ Recently, techniques like SEMPA (secondary electron microscopy with polarization analysis) (Refs. 1 and 2) and MFM (magnetic force microscopy) (Ref. 3) have been used to investigate films with perpendicular magnetization in the thickness range from 2 ML to several nanometers. These systems are usually dominated by a strong surface-interface anisotropy that holds the magnetization perpendicular to the plane of the film. As far as Co on Au (111) is concerned, it was shown from SEMPA that the domain structures in Co films a few monolayers thick are made of large irregular domains (typically 1 μm) with perpendicular “up” and “down” magnetization.^{1,2} For Co films thicker than about 7 ML, the surface contribution is no longer sufficient to overcome the shape anisotropy term and the magnetization switches in plane.

As the film thickness increases, it was predicted by Kittel⁴ on energetic arguments (competition between wall and shape energy) that for films of materials with a strong perpendicular magnetocrystalline anisotropy K , the magnetization may switch again out of plane. The predicted value of the film thickness d for which the magnetization turns from in plane to out of plane was calculated to be^{4,5}

$$d_1 \approx 6.8 \sigma_w \left(\frac{M_s}{K} \right)^2, \quad (1)$$

where M_s is the saturation magnetization and σ_w is the wall energy. When this condition is applied to hcp cobalt films, the crossover is predicted to occur at about 30 nm.⁶ The only way for the system to lower its energy is then to split up into small domains with up and down magnetization. Therefore, these films are expected to show an interesting magnetic history with a magnetic bubble to stripe transition.⁷⁻⁹ Macroscopic and mesoscopic arrangements of bubbles and stripes

have been observed on a wide class of systems ranging from magnetic garnets to organic films. In all these systems, the patterns are stabilized by competing interactions leading to periodic variations of the order parameter.¹⁰

Magnetic domain structures have been observed by the Kerr effect in Co slabs 3–75 μm thick, cut into a single crystal with hexagonal c axis normal to the plane of the slice.¹¹ However only recently have films of sufficiently high crystallinity (to show the expected effects) been synthesized by MBE.^{12,13} In a recent study Donnet *et al.*¹² analyzed the magnetic domain structure of MBE-grown Co films in a narrow range of thicknesses (20–60 nm), close to the predicted transition. Interestingly, from their Lorentz microscopy study in the phase contrast mode, they found that a 40-nm film exhibits periodic stripe domains whose weak contrasts are produced by an alternatively up and down deviation of the mainly in plane magnetization.

This paper is devoted to the detailed MFM investigation of magnetic domains of hcp Co films grown by MBE. Up to 11 samples have been analyzed in the thickness range from 10 to 500 nm. We have identified the presence of bubbles and periodic stripes with perpendicular magnetization for thicknesses of 50 nm and above as a function of magnetic history. To our knowledge, this is the first MFM investigation of Co films in this thickness range. The smallness of the observed domains shown in our work (of the order of the film thickness) clearly demonstrate the power of MFM. Their width D was found to obey the predicted $D \propto \sqrt{d}$ dependence.⁴

II. EXPERIMENT

Cobalt films with thicknesses varying from 10 to 500 nm were prepared by molecular-beam epitaxy at 400 °C. An initial 20-nm-thick Ru layer was deposited onto an (1,1,–2,0) sapphire substrate, the Co film of thickness d was then deposited and capped by another 5-nm-thick Ru layer. The crystallographic structure of the films was studied *in situ* by reflection high-energy electron diffraction (RHEED) and *ex situ* by x-ray diffraction. The RHEED patterns obtained during the growth of the film reveal well-defined rods which

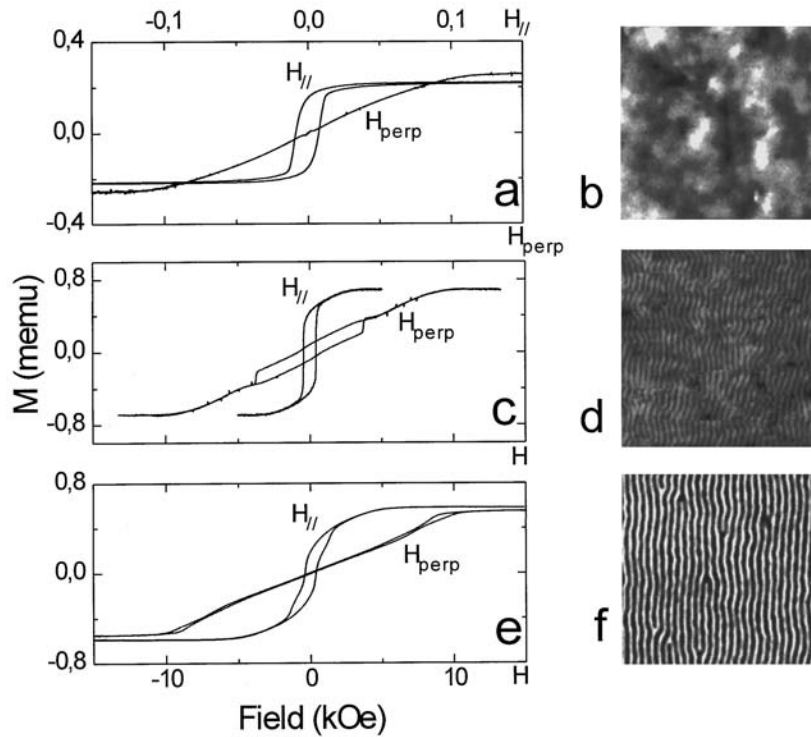


FIG. 1. M - H curves in a configuration with the magnetic field perpendicular and parallel to the plane of the film: (a) 10 nm, (c) 25 nm, (e) 50 nm. Corresponding MFM images $3\ \mu\text{m} \times 3\ \mu\text{m}$ of films previously demagnetized in plane: (b) 10 nm, (d) 25 nm, (f) 50 nm.

suggests good surface crystalline quality and a smooth surface. Using three-dimensional (3D) RHEED diffraction analysis (relative position of the spots on the rods), we observe that the free surface crystal structure is mostly hcp (0001). $\Theta-2\Theta$ x-ray-diffraction scans of the (222)fcc/(0004)hcp Bragg peak revealed one peak located at the expected angle for the hcp stack. The dominant (0001)hcp structure gives rise to a large perpendicular magnetocrystalline anisotropy of $K = 4.6 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ which locks the magnetization perpendicular to the layer. The average roughness over the whole surface was estimated to be 1.5 nm by atomic force microscopy.

Magnetic force microscopy was shown to be a very efficient technique to study a wide range of micromagnetic problems.^{14,15} Up to now, most of the knowledge about this novel technique has been gained from a systematic study of magnetic recording media where well-defined magnetic information can be inscribed in magnetic films.¹⁴ In particular, it has been shown that previously developed analytical forms for domain walls¹⁶ could be applied to the description of MFM data.¹⁷ On the other hand, tip effects have been addressed and from experiments on well-controlled samples it was even possible to determine the orientation of the tip magnetization.¹⁸

The domain structure has been observed in zero and finite fields up to $|H| = 500 \text{ Oe}$ by MFM. We used a CoCr coated Si tip magnetized along the tip axis in a permanent magnet. A Nanoscope III equipped with a magnetic tip, scanned 40 nm above the surface, was used in the interlace mode developed by Digital Instruments. This mode allows one to disentangle the long-range magnetic and the short-range topographic information during the same image acquisition. Since the detected signal (frequency shift of the vibrating cantilever) is proportional to the second derivative of the local field, this technique provides a good signal over noise ratio, unfortunately it does not allow the local field informa-

tion to be recovered easily. The interpretation is simplified in the case of samples with perpendicular magnetization, since only contrasts from magnetic walls between “up” and “down” domains are visible by MFM. Independent magnetization measurements were performed for all samples at room temperature in an alternating gradient field magnetometer (AGFM) with the field applied perpendicular and parallel to the film plane.

III. RESULTS

A. From 10 to 50 nm: The transition

We first investigate the reorientation of the magnetization direction from in plane to out of plane as the thickness of the film increases from 10 to 50 nm. Figure 1 shows a first set of magnetization curves, with the field applied either perpendicular or parallel to the plane of the film, measured by AGFM together with the corresponding zero-field MFM images.

The perpendicular magnetization curve obtained for the 10-nm-thick film [Fig. 1(a)] is characteristic for a film with in-plane magnetization.¹⁹ The corresponding MFM image shows large domains typically $1\ \mu\text{m}$ wide [Fig. 1(b)]. On the other hand, the perpendicular M - H curve for the 50-nm-thick film [Fig. 1(e)] is characteristic of perpendicular alternately up and down stripe domains⁹ for which the magnetization in the middle of the stripe is fully perpendicular to the film. Interestingly, the in-plane hysteresis loop in Fig. 1(e) shows considerable remanence, which we attribute to the magnetization at the center of the walls, turning from one in-plane direction to the opposite in-plane direction when sweeping the field from one direction to the other.²⁰ The characteristic domain structure shown in the MFM image of Fig. 1(f) has been evidenced for all thicknesses above 50 nm and will be discussed together with the full MFM interpretation in the next section.

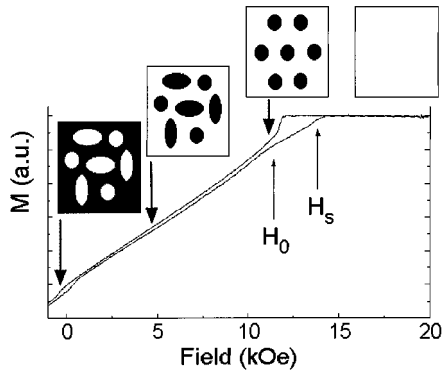


FIG. 2. Positive field branch, of the perpendicular M - H characteristics of a 150-nm-thick Co film. The nucleation field of bubbles H_0 as well as the saturation field H_s are indicated by arrows. The insets show schematically the magnetic domain contrasts.

The 25-nm-thick film depicts an intermediate regime. A hysteresis loop of extension ± 4 kOe opens up into the core of the perpendicular M - H curve as shown in Fig. 1(c), while the corresponding MFM image [Fig. 1(d)] already exhibits a weak stripe domain structure characteristic for a nonzero perpendicular component. While MFM provides the periodicity of the domain structure, it hardly informs on the profile of the magnetization across the domains. Our results however are quite similar to those obtained for a 40-nm-thick Co film grown under similar conditions,¹² where the hysteresis has been shown (on the basis of Lorentz microscopy), to correspond to a mainly in-plane magnetization with a small perpendicular component, oriented alternatively up and down.^{12,21} Within a simple model²¹ the thickness at which the weak stripe domain structure first appears is given by

$$d_2 \approx 27 \left(\frac{8}{\pi^2} \right)^2 \left(\frac{AM_s^4}{K^3} \right)^{1/2}, \quad (2)$$

where A is the exchange constant. It is equal to 20 nm for a hcp cobalt film in good agreement with our experimental results. As can be seen from our figures, the MFM contrast for the 25-nm-thick film is weaker than for the 50-nm-thick film, denoting that the main component of magnetization is still in plane.

B. From 50 to 500 nm

In Fig. 2 we show a detail of the magnetization curve for the 150-nm-thick sample. The field is applied in the easy direction perpendicular to the surface of the film. The curve of Fig. 2 appears like a signature of domains with perpendicular magnetization and can be understood quite well in the model developed by Cape and Lehmann⁷ for films with an easy axis perpendicular to the film plane (see also an earlier work by Kooy and Enz⁹). By describing the hysteresis loop counterclockwise from the high-field saturation, where all magnetic moments are oriented in the field direction, towards lower positive fields, a singularity of the M versus H curve appears at some point H_0 . This singularity is ascribed to a sudden nucleation of magnetic bubbles with opposite magnetization. It is due to the existence of a critical bubble radius R_0 (H_0) under which a bubble network does not form a stable configuration. Thiele⁸ has shown that the nucleation

field is subject to geometrical constraints, namely that H_0 is a growing function of the film thickness. This fact nicely shows why in a real systems, where the film thickness may vary from one point to another, a dispersion in nucleation fields may occur, resulting in a smoothening of the transition. Note in Fig. 2 the narrow range of fields (300 Oe) over which the nucleation of bubbles spreads throughout the whole film.

By further decreasing H , the bubbles grow larger while the lattice parameter of the bubble network shrinks.⁷ The problem now becomes one of wall motion that also explains the quasilinear decrease of M with H .⁹ It was shown by Thiele⁸ that above a given radius R_1 the bubbles tend to adopt an elliptic shape which is the precursor state of stripes. Interestingly, the repulsive interaction between the bubbles²² may prevent their growth as H decreases so that in some cases bubbles may be the stable configuration even at $H=0$ as is confirmed by our MFM measurements on thick Co films [Fig. 3(c)]. The dependence of saturation fields and nucleation fields on the film thickness has been analyzed in detail elsewhere.¹³ From the saturation field in the parallel configuration we were able to find an estimate of the perpendicular demagnetizing field which is close to zero for a 500-nm-thick Co film, confirming independently the perpendicular easy-axis interpretation. Furthermore, the onset of fully perpendicular magnetization was found to be 50 nm determined both from the appearance of a kink in the M - H curve and from the detection of stripes by MFM in good agreement with the prediction.⁷

C. Interpretation of MFM data

To achieve an unequivocal interpretation of our MFM data, we calculated the second derivative of the local field in the z direction for various domain configurations,²³ assuming that the tip can be approximated by a dipole (which is reasonable in first approximation), and taking the magnetization across the wall to be of the form $\arctan(x/w)$, where w is the wall width. Figure 4 shows the calculated MFM response to a stripe domain structure of normalized width D/d where d is the film thickness. The calculation was done for a tip magnetization perpendicular to the surface and $(z+w)/d = 0.5$, where z is the tip to surface distance. Similar profiles have been obtained for bubbles.²³ Contrasts are always due to domain walls, however, real experimental situations cover the range $D/d = 0.3$ – 1.5 for which the walls are so close to each other that they produce one single bright or dark area centered on the domain itself. Therefore the contrasts in Fig. 3 may be unequivocally identified as corresponding to domains (not to domain walls). That contrasts are identical to domains is seen quite well on the images on the basis of topological arguments: in Figs. 3(a) and 3(b), bright stripes that come to an end in an otherwise dark environment are virtually forbidden in a domain-wall type of interpretation. Unfortunately, wall widths cannot be determined easily by fitting the data since w and z take on the same status in the equations. Also small magnetic domain closures at the surface²⁴ would hardly be detectable by MFM.

In order to analyze the samples by MFM, we have performed both magnetization and demagnetization experiments in the direction either *perpendicular or parallel to the plane of the film*. During the *parallel demagnetization* the field is

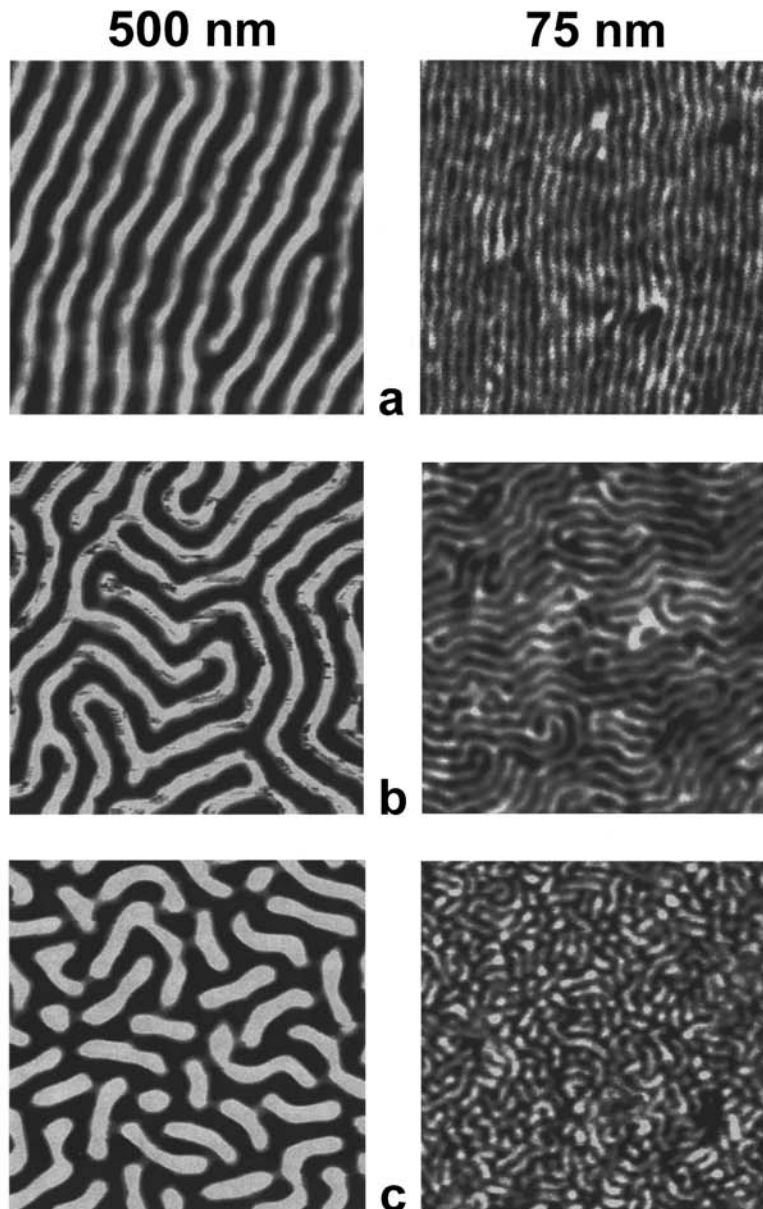


FIG. 3. Zero-field MFM images $5\ \mu\text{m} \times 5\ \mu\text{m}$. (a) Demagnetized parallel, (b) demagnetized perpendicular, and (c) magnetized perpendicular states for 500- and 75-nm-thick Co films.

swept from positive to negative values while reducing simultaneously the area of the hysteresis loop. The magnetic moments first follow the field direction and the system evolves in a quasistatic way. At some small value of the magnetic field, the magnetic moments get trapped out of plane (due to the strong crystalline anisotropy). The alignment of the parallel component of the magnetization with the field in order to minimize the Zeeman energy leads to a periodic pattern of parallel stripes [Fig. 3(a)] predicted by Muller.²⁴ Qualitatively similar results are obtained for the *parallel magnetization*, in which the sample is brought to saturation and the field turned off. MFM images reveal evenly spaced parallel stripes oriented in the direction of the applied field (not shown). The additional degree of freedom introduced during *perpendicular demagnetization* leads to labyrinthine stripes [Fig. 3(b)]. Finally, a quite different situation is obtained for *perpendicular magnetization* [Fig. 3(c)], where the remnant state is reminiscent of the elliptic bubbles predicted by Thiele.⁸ Although these films have a complicated magnetic behavior it is generally admitted that the stripe state is ener-

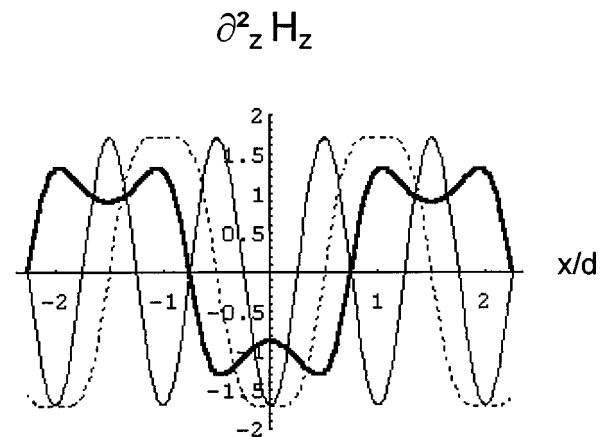


FIG. 4. MFM response to a perpendicularly magnetized stripe for normalized widths (—) $D/d=0.5$, (---) $D/d=1.0$, (— · —) $D/d=1.5$. The calculation has been done for $(z+w)/d=0.5$. Real experimental situations cover the range $D/d=0.3-1.5$.

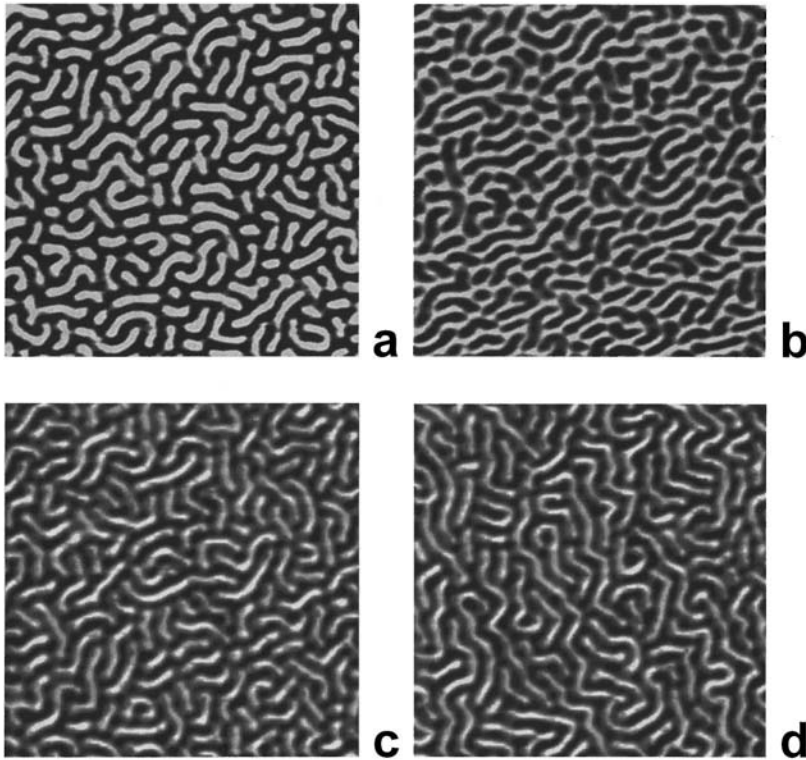


FIG. 5. MFM images $10\ \mu\text{m} \times 10\ \mu\text{m}$ for 500-nm Co films. At finite field values on the major loop (a) $H = +400$ Oe, (b) $H = -400$ Oe. At $H = 0$ after interrupted perpendicular demagnetization at (c) 13 kOe and (d) 12 kOe, respectively.

getically more favorable at $H = 0$.⁷ This is clearly what we observe after *parallel* [Fig. 3(a)], as well as after *perpendicular* [Fig. 3(b)] demagnetization. While in the first case, the symmetry breaking along an in-plane direction forces the stripes to align in one direction, in the latter case, only the local order is preserved and free-energy minimization leads to a globally disordered pattern. It is the unbinding of disclination defects, visible in the Y shape of domain bifurcation in the stripe pattern of Fig. 3(b) ($d = 500$ nm), that preludes to disorder. The threefold symmetry comes about because 120° chevrons form the precursor state for the labyrinthine structure.¹⁰

D. Variable field MFM

Whether stripe domains occur or not along the major hysteresis loop is the next question we tried to address using variable field MFM. We found that the stripe pattern never occurs. Instead we show that when a major loop is described counterclockwise from large positive fields to negative fields, bubbles of originally bright contrasts (oriented opposite to the applied field) begin to expand lengthwise so as to touch each other and to coalesce. This is the point where the identity of dark bubbles emerges in an otherwise bright background. Therefore the transition from bright to dark bubbles proceeds continuously in a wall motion type of procedure. MFM images of Figs. 5(a) and 5(b) have been taken on the major loop at fields of $+400$ and -400 Oe, respectively, they clearly show bubbles with opposite contrast. It is only during field cycling to minor loops that more ramified patterns are observed. How bubbles go over to stripes during the demagnetization procedure is nicely shown for 500-nm films ($H_s = 16$ kOe) in Figs. 5(c) and 5(d) where the perpendicular field has been interrupted at two different values of the maximum field, namely 13 and 12 kOe leaving behind a remnant

state. The bubbles are first subject to elongation and bending [Fig. 5(c)] only then does domain branching start [Fig. 5(d)]. The pattern obtained at 9 kOe (not shown) is already very close to the one of Fig. 3(b) for demagnetization down to zero field. The labyrinthine structure resulting from the *perpendicular demagnetization* is seen over the whole thickness range from 50 to 500 nm. This experiment shows that the stripe and bubble patterns must be very close in energy at $H = 0$ as anticipated from the analysis.⁷

E. Thickness dependence of the domain width

In Fig. 6, we have reported the period L of the striplike patterns observed in Figs. 3(a) and 3(b) as well as the one

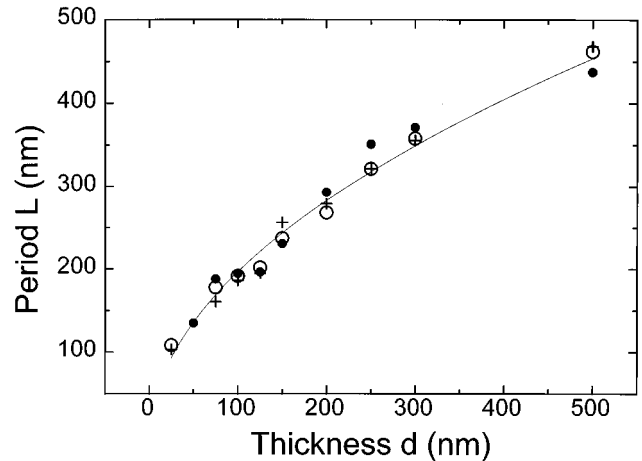


FIG. 6. Period L of the stripe pattern as a function of Co film thickness d (see text). (O) demagnetized parallel, (●) demagnetized perpendicular, (+) magnetized parallel.

from parallel magnetization (not shown) as a function of film thickness d . On the basis of minimum energy arguments, Kooy and Enz⁹ found the following analytical expression for the period:

$$L^2 = 2\pi^2 d \sigma_w (1 + \sqrt{\mu}) / (16M_s^2 \varepsilon), \quad (3)$$

where $\mu = l + 2\pi M_s^2 / K$; σ_w is the wall surface energy; and ε is a numerical factor that depends on μ , on the film thickness d , and on the period L [see Eq. (10) of Ref. 9]. For our ranges of parameters, this leads to $\varepsilon = 1.04 \pm 0.01$ which is put equal to a constant in the calculation. This expression fits all three states well (solid line in Fig. 6) indicating that domain periods do not depend significantly on the magnetic state at $H=0$. The wall energy is found to be $\sigma_w = 25 \pm 3$ erg cm⁻² and does not vary significantly with the film thickness. This value is in good agreement with recent 2D micromagnetic calculations performed for a 100-nm-thick Co film for which energies of about 20 erg/cm² are found.²⁵

IV. CONCLUSION

Using both, conventional magnetometric measurements and local MFM domain imaging, we have identified a con-

tinuous reorientation of the magnetization in thin epitaxial cobalt films from in plane to out of plane for thicknesses comprised 10 and 50 nm. For film thicknesses above 50 nm we found that a continuous bubble-to-bubble transition through irreversible wall motion occurs along the major hysteresis loop when the field is applied perpendicular to the film. The earlier predicted lowest-energy periodic stripe pattern is obtained only after an appropriate demagnetization procedure, and the nanoscale domain width is comparable in size to the film thickness. The periodicity of stripelike structures is then found to obey a $L \propto \sqrt{d}$ law in good agreement with theoretical predictions. In a forthcoming paper we will show how a confinement of domains by geometrical boundaries down to nanometer scale modifies the magnetic properties of epitaxial Co films.

ACKNOWLEDGMENTS

We would like to thank H. van den Berg, R. Allenspach, and F. Gautier for fruitful discussions and Jacek Arabski for the MBE synthesis of the cobalt films. This work was supported in part by European Capital and Mobility Program entitled "Mesoscopic Magnetic Nanostructures."

-
- ¹R. Allenspach, M. Stampanoni, and A. Bischof, Phys. Rev. Lett. **65**, 3344 (1990).
 - ²M. Speckmann, H. P. Oepen, and H. Ibach, Phys. Rev. Lett. **75**, 2035 (1995).
 - ³G. Bochi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **75**, 1839 (1995).
 - ⁴C. Kittel, Phys. Rev. **70**, 965 (1946).
 - ⁵D. J. Craik and P. V. Cooper, Phys. Lett. **41A**, 255 (1972).
 - ⁶R. Allenspach and M. Stampanoni, in *Magnetic Surfaces, Thin Films, and Multilayers*, edited by S. S. P. Parkin *et al.*, MRS Symposia Proceedings No. 231 (Materials Research Society, Pittsburgh, 1992), p. 17.
 - ⁷J. A. Cape and G. W. Lehman, J. Appl. Phys. **42**, 5732 (1971).
 - ⁸A. A. Thiele, Bell Syst. Tech. J. **50**, 725 (1971).
 - ⁹C. Kooy and U. Enz, Philips Res. Rep. **15**, 7 (1960).
 - ¹⁰M. Seul, and D. Andelman, Science, **267**, 476 (1995), and references therein.
 - ¹¹A. Hubert, Physica, **22**, 709 (1967).
 - ¹²D. M. Donnet, K. M. Krishnan, and Y. Yajima, J. Phys. D **28**, 1942 (1995).
 - ¹³M. Hehn *et al.*, J. Appl. Phys. **79**, (1996).
 - ¹⁴P. Grütter, H. J. Mamin, and D. Rugar, in *Scanning Tunneling Microscopy II*, edited by R. Wiesendanger and H. J. Güntherodt (Springer, Berlin, 1992), pp. 151–207, and references, therein.
 - ¹⁵R. B. Proksch *et al.*, Appl. Phys. Lett. **66**, 2582 (1995).
 - ¹⁶This point has been carefully addressed in a review by J. Miltat, in *Applied Magnetism, NATO Advanced Study Institute: Series E*, Vol. 253, edited by R. Guber, C. B. Wright, and G. Anti (Kluwer, Dordrecht, 1994), pp. 221–308.
 - ¹⁷A. Wadas *et al.*, J. Appl. Phys. **67**, 3462 (1990).
 - ¹⁸P. Grütter *et al.*, J. Appl. Phys. **66**, 6001 (1989).
 - ¹⁹E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, Philos. Trans. R. Soc. A **240**, 599 (1948).
 - ²⁰The in-plane remanence is about 30% of the saturation value for the 50-nm-thick film. It decreases as $d^{-1/2}$ in good agreement with a simple theory and amounts 10% for the 500-nm-thick film. This point will be discussed in detail in a forthcoming paper of this group.
 - ²¹N. Saito, H. Fujiwara, and Y. Sugita, J. Phys. Soc. Jpn. **19**, 1116 (1964).
 - ²²A. H. Eschenfelder, *Magnetic Bubble Technology* (Springer, Berlin, 1980), p. 48.
 - ²³S. Padovani, Diploma work, Université Louis Pasteur, Strasbourg 1995.
 - ²⁴M. Muller, J. Appl. Phys. **38**, 2413 (1967).
 - ²⁵M. Labrune *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **104-107**, 343 (1992).

Nanoscale Magnetic Domains in Mesoscopic Magnets

Michel Hehn, Kamel Ounadjela,* Jean-Pierre Bucher,
Françoise Rousseaux, Dominique Decanini, Bernard Bartenlian,
Claude Chappert

The basic magnetic properties of three-dimensional nanostructured materials can be drastically different from those of a continuous film. High-resolution magnetic force microscopy studies of magnetic submicrometer-sized cobalt dots with geometrical dimensions comparable to the width of magnetic domains reveal a variety of intricate domain patterns controlled by the details of the dot geometry. By changing the thickness of the dots, the width of the geometrically constrained magnetic domains can be tuned. Concentric rings and spirals with vortex configurations have been stabilized, with particular incidence in the magnetization reversal process as observed in the ensemble-averaged hysteresis loops.

Mesoscopic magnets are currently being studied for their fundamental and technological properties. These magnets are found in several forms: as particles or patterned

submicrometer-sized dots in close interaction with a substrate (1–5) or as free atomic clusters in beams (5, 6). Very small monodomain Co particles (a few tens of atoms) do not show any hysteretic behavior at room temperature (6), whereas in bigger particles, which are relevant to high-density data storage materials, anisotropies build up that lock the magnetic moment in a given direction. Interesting properties are expected as the geometrical dimensions of the particles become comparable to character-

M. Hehn, K. Ounadjela, J.-P. Bucher, Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg, 23 rue du Loess, 67037 Strasbourg Cedex, France.

F. Rousseaux and D. Decanini, L2M/CNRS, 196 Avenue Henri Ravera, 92225 Bagneux, France.

B. Bartenlian and C. Chappert, Institut d'Electronique Fondamentale, Université Paris-Sud, 91405 Orsay Cedex, France.

*To whom correspondence should be addressed.

istic nanoscopic length scales such as the magnetic exchange length and mesoscopic dimensions such as domain width (7).

In order to study static and dynamic magnetism in very small particles with diameters of tens to hundreds of nanometers, one can either study one particle at a time with a local technique such as a superconducting quantum interference device (SQUID) loop surrounding the particle to be studied (8) or perform average magnetic measurements on assemblies of many identical (monodisperse, similarly shaped) dots (1, 2, 4). The latter approach has been adopted by several groups, and reliable x-ray (9), electron beam (10, 11), and scanning tunneling microscopy-assisted (2) techniques have been developed to synthesize large arrays of identical dots, in which the magnitude of the interaction between the particles can be tuned by varying the period of the array. Magnetic domain configurations and reversal processes that have been extensively studied since the turn of the century now had to be reexamined for nanostructured materials (12).

We focused on submicrometer-sized Co dots, magnetized perpendicular to the plane of the array. The dots were patterned by x-ray photolithography in single crystalline Co films and contained several magnetic domains whose sizes we could tune by adjusting the thickness of the film (13). Effects of the boundaries then became apparent, and the domain geometry was found to be strongly dependent on the aspect ratio (the ratio of the height to the length of the dots). The film properties before the photolithographic process were compared with the properties of the dot arrays. We used conventional magnetometry to characterize the overall magnetic properties of a large number of identical dots. The domain structure of individual particles was studied by local magnetic force microscopy (MFM).

Arrays of square dots $5 \times 5 \text{ nm}^2$ with a lateral dimension of $0.5 \text{ }\mu\text{m}$ and a lattice periodicity of $1 \text{ }\mu\text{m}$ were patterned from epitaxial Co films grown in ultrahigh vacuum with thicknesses, t_{Co} , varying from 10 to 150 nm (Fig. 1). Before the Co deposition, a 20-nm-thick Ru buffer layer was grown onto an $\text{Al}_2\text{O}_3(1,1,2,0)$ sapphire substrate; the Co layer was subsequently grown and capped by 5-nm Ru. The high crystalline quality of the hexagonal close-packed (hcp) (0001) phase of the Co films was confirmed by in situ and ex situ techniques (14). We patterned the films by x-ray lithography and ion-beam etching, using a soft technique developed earlier to avoid the deterioration of fragile multilayered samples (9).

We performed magnetization measurements for all samples at room temperature,

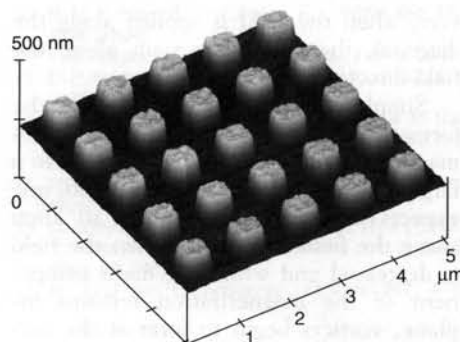


Fig. 1. Oblique view of a 25-nm-thick Co dot array obtained with an atomic force microscope. The lateral size of the dot is $0.5 \text{ }\mu\text{m}$, and the lattice periodicity is $1 \text{ }\mu\text{m}$. The edges are straight with nearly a vertical profile, and the surfaces of the dots have retained the smoothness observed on the as-grown films. This quality of patterning was retained for Co films up to 150 nm thick.

using an alternating gradient force magnetometer with the field applied perpendicular and parallel to the film plane. The magnetization curves for a 100-nm-thick film and for the same film patterned into an array of dots (Fig. 2), with the field applied perpendicular to the substrate, are reminiscent of perpendicularly magnetized multidomain structures (15). The singularity at H_n in the magnetization versus field curve of Fig. 2 is ascribed to a nucleation of magnetic bubbles in an otherwise saturated environment (all magnetic moments oriented along the field direction). The linear variation at smaller fields is due to irreversible magnetic wall motion. Differences between arrays and films appear in both the nucleation field H_n and the saturation field H_s (Fig. 2). Instead of increasing with thickness up to $4\pi M_s$ (where M_s is the saturation magnetization) as in continuous films, both of these fields decrease as the dot thickness is increased.

In MFM, the resolution is solely limited by the distance at which the tip is scanned above the surface and by the tip radius, typically 50 nm. A Nanoscope III, equipped with a CoCr-coated Si tip magnetized along the tip axis, was used in the vibrating-lift mode developed by Digital Instruments. The detected signal (frequency shift of the vibrating cantilever) is proportional to the second derivative of the local field, and therefore this technique provides a good signal-to-noise ratio. For domain sizes under consideration here, we have shown that MFM contrasts can be identified unequivocally with mainly "up" and "down" perpendicularly oriented domains (14). Before the MFM measurements, the samples were either magnetized or demagnetized in fields perpendicular or parallel to the film plane. During the demagnetization processes, we swept the field alternately from positive to

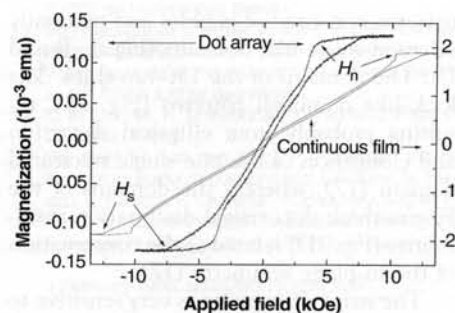


Fig. 2. Perpendicular magnetization curves for both film and arrays with the external field applied perpendicular to the film plane. The thickness of the Co film and array is 100 nm; emu, electromagnetic unit.

negative values while simultaneously reducing the field amplitude. For perpendicular or parallel magnetization, the field was abruptly turned off after saturation.

Two parameters can be used to consider the effects of geometry: (i) the dot height, which determines the domain size in much the same way as film thickness does in the case of infinite films, and (ii) the dot shape, determined primarily by the aspect ratio, which induces the particular pattern of the domain structure. In this work, the square base of the dot was kept constant ($0.5 \text{ }\mu\text{m}$ by $0.5 \text{ }\mu\text{m}$) and the aspect ratio was varied from 0.05 for $t_{\text{Co}} = 25 \text{ nm}$ to 0.3 for $t_{\text{Co}} = 150 \text{ nm}$. When the domain size is much smaller than the base of the dot, the magnetostatic energy at any point inside a dot is determined primarily by nearby domains, although the dipolar interaction is a long-range interaction. Therefore, identical stripe periods are expected for a continuous film and for dot arrays. Shape effects, by contrast, dominate the orientation of domains in the dots and distinguish patterned array behavior from continuous film behavior.

The domain configurations in the perpendicular remnant state consist of magnetic bubbles (Fig. 3, A and C). A predominantly single bubble configuration is seen for the 150-nm-thick dot array (Fig. 3A), although the precision of the MFM experiment is not sufficient to exclude the presence of small domains or nonuniform "flower" states at the dot edges (16). The circular bubble is nucleated at the center of the dot where the demagnetizing field is the highest and does not grow bigger as a result of the repulsive interactions with the edges. The space available within each dot is just sufficient to accommodate one single bubble. The domain structure observed in the 50-nm-thick dots array (Fig. 3C) consists of a metastable network of bubbles, similar to the bubble array found in the continuous film with the same thickness (14). After perpendicular demagnetization, the domain

patterns consisted of bubbles and randomly oriented stripe-like domains (Fig. 3, B and D). The domains of the 150-nm-thick dots look like dumbbell patterns (Fig. 3B), resulting probably from elliptical distortion and elongation of the one single nucleated domain (17), whereas the domains of the 50-nm-thick dots reveal disclination instabilities (Fig. 3D) related to the conservation of the in-plane symmetry (17).

The stripe orientation is very sensitive to the direction of the in-plane component of the applied field (Fig. 4). For the 50-nm-thick Co dots (Fig. 4, C and D), the stripe direction is aligned with the in-plane magnetic field component applied before the MFM measurements. The tendency of the domain walls to avoid the edges of the dot and of the domains to increase their length is clearly apparent in the case of an in-plane demagnetization along the diagonal of the array. This tendency results from the geometrical constraints and is enhanced when the dot height is reduced (see Fig. 4, E and F, for results from a 25-nm-thick dot array). In this instance, the domain pattern consists of spirals or concentric cylinders of alternate magnetization irrespective of the direction of the applied field. The 150-nm-thick dot array (Fig. 4, A and B) presents an interesting limiting case in which the width of the domain becomes comparable to the lateral size of the dot. Although the shape of the domain patterns is similar to that of dumbbells, the preferential diagonal direction along which they orient depends on the direction of the applied field. If the field is applied parallel to the side of a dot, the domains reorient $\pm 45^\circ$ away from the direction of the demagnetization field. How-

ever, when the field is applied along the diagonal, the domains remain along the field direction.

Simple arguments can account for the formation of domains during in-plane demagnetization. As the dot is exposed to a large enough in-plane magnetic field, one expects all magnetic moments to align along the field direction. When the field is decreased and while the main component of the magnetization remains in-plane, vortices begin to form at the corners of the dots to reduce the in-plane demagnetizing field (18). The system minimizes the exchange energy by having the magnetization at the center of the vortex perpendicular to the surface. During the field decrease the magnetization rotates coherently out-of-plane; this results in a magnetization perpendicular to the film with regions (where vortices were created, that is, mostly at corners) that have opposite magnetization.

When the bubble diameter is comparable to the lateral dimensions of the dot (as for the 150-nm-thick dot array), only two bubbles nucleate at opposite corners; this reduces their dipolar interaction, and the bubbles

partly coalesce to form dumbbell-shaped domains because of their large diameter (Fig. 4, A and B). For symmetry reasons, when the field is applied along the side of a dot, the dumbbells align either along one diagonal or the other (Fig. 4A). When the bubble diameter is small compared to the lateral dimensions of the dot (as for the 50-nm-thick dot array), the bubble nucleated at the edge remains pinned on it but can run out into stripes (Fig. 4, C and D). Although the domain structures never look exactly the same from one dot to the next, their energies are very close because they are for the most part reproducible mirror images of each other.

The high geometrical quality of the dots is reflected in the concentric ring configurations obtained after parallel demagnetization of 25-nm-thick dots (Fig. 4, E and F). At this reduced dot thickness, the energy is smallest for in-plane magnetic moments. The main component of the magnetization therefore remains in-plane and parallel to the edges of the dots, which results in a circular domain structure with a singularity at the center of the dot where the in-plane magnetization reorients fully perpendicular to form a vortex. The concentric ring structure observed in the MFM images is due to small, alternately up and down, perpendicular components also observed in the stripe structure of hcp Co films (14, 19).

How domain confinement proceeds in the 25-nm-thick Co dot array is particularly interesting. The curve of the first perpendicular magnetization (Fig. 5), taken after the sample had undergone in-plane demagnetization, displays one pronounced jump of the magnetization which occurs within a field interval of 2 Oe. The dipolar interaction between dots is so weak that no collective behavior can be invoked to explain this phenomenon, and thus the observation of the simultaneous switching of millions of dots necessarily implies that the collapse field is most sensitive to local parameters such as the thickness and quality of the

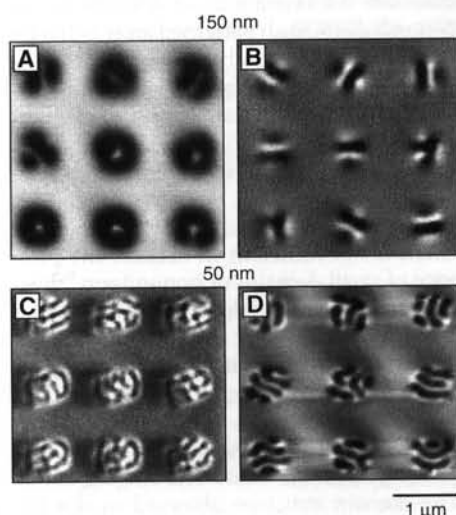


Fig. 3. MFM images in zero applied field after perpendicular saturation for (A) 150-nm-thick and (C) 50-nm-thick Co dot arrays and after perpendicular demagnetization for (B) 150-nm-thick and (D) 50-nm-thick Co dot arrays.

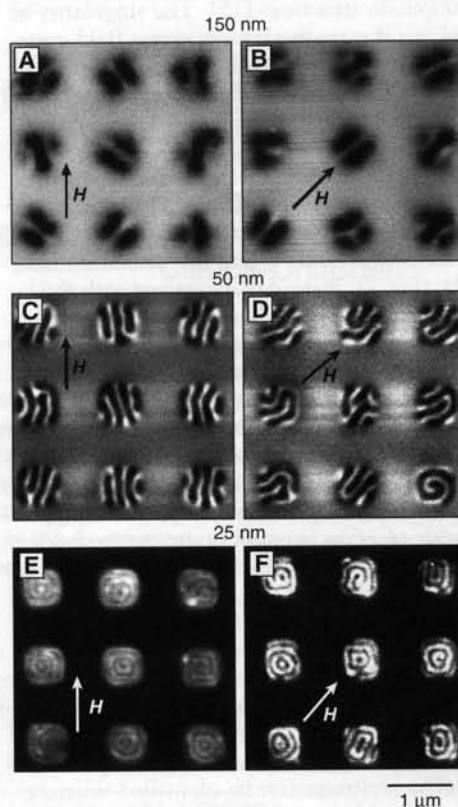


Fig. 4. MFM images in zero applied field after parallel demagnetization along the side of the dot for (A) 150-nm-thick, (C) 50-nm-thick, and (E) 25-nm-thick Co dot arrays and after parallel demagnetization along the diagonal of the dot for (B) 150-nm-thick, (D) 50-nm-thick, and (F) 25-nm-thick Co dot arrays.

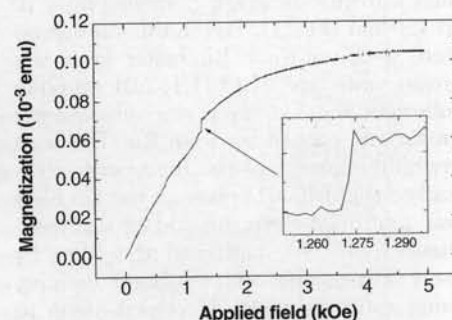


Fig. 5. First perpendicular magnetization curve for the 25-nm-thick Co dot array. (Inset) A close-up of the region where the jump occurs and gives evidence of the field transition within 2 Oe.

material, in principle identical over the whole sample surface. We attribute this singularity, which corresponds to about 6% of the magnetization at saturation, to the collapse of the central domain in roughly half of the dots oriented antiparallel to the field direction. This switching field is expected to be most sensitive to the local parameters of the material and less sensitive to the finite size and shape of the dots. This result is due to a combination of the central position of the domain, which is far away from the edges, and the presence of the nearby alternately oriented magnetic domains, which ensure efficient screening of the edges. Close examination of the magnetization curve (Fig. 5) reveals at least two more, although weaker, jumps at lower field (reproducible under identical conditions) that can be attributed to the initial collapse of part of the outer rings. Such a distribution of jumps may result because the height of one jump depends on both the size of the domain to be reversed and the number of dots with the same configuration. Not surprisingly, after the dots have become single-domain, a further increase in the field is necessary to overcome the strong demagnetizing field near the bottoms and the tops of the dots and to completely align the moments along the field direction.

Our results demonstrate that two length scales determine the magnetic domain structures and magnetic domain reversal processes in Co dot arrays. One length scale is set by the geometry of the dots, and the other is imposed by the size of a domain wall separating two adjacent domains. When starting from a previously stabilized concentric ring configuration, we observe clear jumps in the first magnetization curve of an array that are clearly linked to specific domain annihilation processes.

Investigating domain patterns in magnetic storage devices is becoming increasingly necessary for industrial applications as written bits become smaller and smaller. In order to prevent accidental switching of magnetic domains, stringent control of the quality of the material and the dot geometry is required.

REFERENCES AND NOTES

1. G. A. Gibson and S. Schultz, *J. Appl. Phys.* **73**, 4516 (1993).
2. A. D. Kent, S. von Molnar, S. Gider, D. D. Awschalom, *ibid.* **76**, 6656 (1994).
3. J. Shi *et al.*, *Nature* **377**, 707 (1995).
4. S. Manalis *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 2585 (1995).
5. J. Shi, S. Gider, K. Babcock, D. D. Awschalom, *Science* **271**, 937 (1996).
6. J. P. Bucher and L. A. Bloomfield, *Int. J. Mod. Phys.* **7**, 1079 (1993).
7. *Phys. Today* **48** (1995).
8. W. Wernsdorfer *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.* **145**, 33 (1995).
9. F. Rousseaux *et al.*, *J. Vac. Sci. Technol. B* **13**, 2787 (1995).
10. R. M. H. New, R. F. W. Pease, R. L. White, *ibid.* **12**, 3196 (1994).
11. P. R. Krauss, P. B. Fischer, S. Y. Chou, *ibid.*, p. 3639.
12. D. R. Fredkin, T. R. Koehler, J. F. Smyth, S. Schultz, *J. Appl. Phys.* **69**, 5276 (1991).
13. The width of the domains is proportional to the square root of the thickness of the film as predicted by C. Kittel in *Phys. Rev.* **70**, 965 (1946).
14. M. Hehn, S. Padovani, K. Ounadjela, J. P. Bucher, *Phys. Rev. B*, in press.
15. C. Kooy and U. Enz, *Philips Res. Rep.* **15**, 7 (1960).
16. Y. Nakatani, Y. Uesaka, N. Hayashi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **28**, 2485 (1989).
17. M. Seul and D. Andelman, *Science* **267**, 476 (1995) and references therein.
18. The mechanism is similar to the one described for Permalloy particles with in-plane magnetization (12), where the vortices move toward the center of the dot as the field is further decreased.
19. D. M. Donnet, K. M. Krishnan, Y. Yajima, *J. Phys. D* **28**, 1942 (1995).
20. We thank H. van den Berg, P. Panissod, and R. Stamps for fruitful discussions and J. Arabski, N. Bardou, E. Cambril, F. Carcenac, S. Padovani, and M. F. Ravet for technical support. Supported in part by the European Human Capital and Mobility Program.

1 February 1996; accepted 15 April 1996

Magnetoresistance of ferromagnetic tunnel junctions with Al_2O_3 barriers formed by rf sputter etching in Ar/O_2 plasma

J. Nassar,^{a)} M. Hehn,^{b)} A. Vaurès, F. Petroff, and A. Fert

Unité Mixte de Recherche CNRS/Thomson-LCR, Domaine de Corbeville, 91404 Orsay, France

(Received 20 March 1998; accepted for publication 2 June 1998)

$\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ tunnel junctions were grown by sputtering at room temperature on glass and Si substrates, the barrier being formed by rf sputter etching of aluminum in a Ar/O_2 plasma. The resistance is controlled for a given junction area by adjusting the oxide barrier thickness. Magnetoresistance ratios of 16% at 4.2 K and 6% at room temperature are obtained with good reproducibility over three orders of magnitude of resistance. Effects related to substrate shunting and oxidation of the bottom Co electrode are discussed. © 1998 American Institute of Physics. [S0003-6951(98)04031-5]

Much attention has been focused in the last years on magnetoresistive FM1/I/FM2 tunnel junctions (FM1 and FM2 are thin layers of ferromagnetic metals and I is a thin insulating spacer layer) since the publication of large tunnel magnetoresistance (TMR) values at room temperature.¹ The possibility of adjusting the resistance of such junctions over a wide range makes them interesting for high-resistance, low-power magnetic devices.

Few groups have achieved good control of the junction resistance while maintaining a reasonable compatibility with current technological processes. Difficulties arise mainly from the requirements on the barrier layer: this layer must be thin enough to allow spin-dependent tunneling to play a significant role among other conduction mechanisms, like impurity hopping, and it must be continuous and free of metallic short circuits. Several authors report high MR values in low-resistance junctions (compared to electrode resistance). However, some difficulty is known to arise in the interpretation of such results, due to inhomogeneities of the current distribution through the trilayer area in the cross-strip geometry.²

Until now reproducible results have been reported essentially on junctions whose barrier is formed through oxidation of a thin Al layer in an oxygen dc glow discharge. Successful oxidation of Al in a pure oxygen rf plasma has been reported by Plaskett *et al.*³ In this letter we report on reproducible magnetotransport properties measured on $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ tunnel junctions formed using an alternative oxidation technique based on earlier work described by Greiner.

Greiner⁴ showed that tunnel barriers with good insulating properties and well-controlled thicknesses can be formed by fixing a metallic film to the cathode of a standard sputtering system and generating a rf Ar/O_2 plasma. At the cathode, sputter etching competes with self-limited oxidation. The oxide thickness increases in time until it reaches a stationary value. The balance between sputter etching and oxidation is controlled through the rf power and the oxygen partial pressure.

Our junctions are grown at room temperature in a commercial Alcatel A610 sputtering system. The bottom electrode, barrier and counterelectrode are deposited on 300 Ω cm Si, thermally oxidized Si or glass substrates through successive metallic shadow masks changed *ex situ* to form ten identical 0.3×0.3 mm² wide junctions in cross-strip geometry. Trilayers are simultaneously deposited on substrate pieces clamped near the masks for structural and magnetic characterization. A 150 Å thickness was chosen for the bottom Co electrode as a compromise between the requirements of keeping the surface roughness low (it was shown by atomic force microscopy that the roughness of 150 Å thick cobalt films grown at a rate 0.1 Å/s in a 2 mTorr Ar plasma is as low as 6 Å peak to peak) and keeping the electrode resistance small compared to the junction resistance (in order to avoid the aforementioned artifacts in four-points measurements). The barriers are formed by sputtering 10 to 40 Å aluminum and subsequent exposure to a Ar/O_2 plasma, obtained by biasing the substrate holder at a constant rf power density of 0.1 W/cm². The partial pressures of both gases are 2 mTorr. Exposure time is varied from 40 s to 3 min. The 150 Å thick $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ counterelectrode is capped by a Al layer.

A necessary condition for the observation of TMR is the possibility to switch the magnetizations of the two electrodes between parallel and antiparallel configurations. This was checked through measurements of the hysteresis loops using an alternating gradient magnetometer. Magnetic decoupling of the electrodes is obtained for all Al thicknesses and oxidation times. The reversal of the magnetization of the bottom Co layer takes place over less than 0.2 Oe [Fig. 1(a)]. This remarkable steepness is also observed on the MR curves [Fig. 1(b)].

The room-temperature I – V curve of the junctions was checked using a probe station before performing temperature dependent four-point dc or ac measurements. About 200 out of 250 junctions (from 25 different depositions) exhibit resistance values of more than 2 k Ω and nonlinear I – V curves, as predicted by tunnel conduction theories.⁵ The other ones are low-resistance junctions likely to be shorted. All the high-resistance junctions that were measured in magnetic field exhibit TMR. Large magnetoresistance values were ob-

^{a)}Electronic mail: nassar@thomson-lcr.fr

^{b)}Present address: Groupe d'étude des matériaux métalliques, IPCMS, 67037 Strasbourg, France.

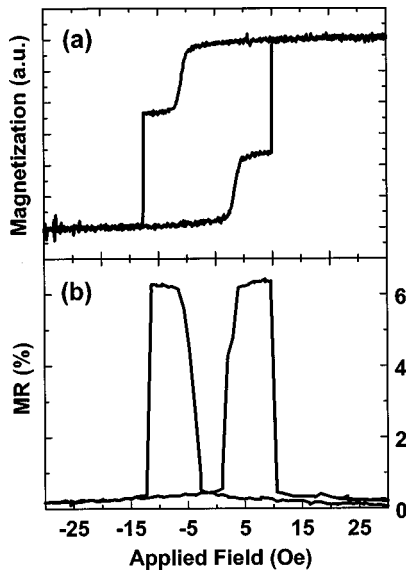


FIG. 1. (a) Magnetization and (b) Magnetoresistance at low bias voltage curves measured at room temperature on a junction with a 15 Å Al layer oxidized 1 min. The reversal of the cobalt magnetization occurs within 0.2 Oe.

tained over three orders of magnitude of resistance by varying the oxidation time τ and adjusting the Al thickness t (see below): we obtained the same low-temperature magnetoresistance ratio $MR_{4.2\text{ K}} = 16\%$ for $R_{4.2\text{ K}} = 4\text{ k}\Omega$ ($\tau = 1\text{ min}$, $t = 15\text{ Å}$), $R_{4.2\text{ K}} = 80\text{ k}\Omega$ ($\tau = 2\text{ min}$, $t = 25\text{ Å}$), and $R_{4.2\text{ K}} = 4\text{ M}\Omega$ ($\tau = 3\text{ min}$, $t = 35\text{ Å}$). The increase of resistance with τ shows that the stationary oxide thickness predicted by Greiner is not reached; however, even in the transitional regime the use of an Ar/O₂ plasma is believed to slow down the growth of oxide and thereby allow a better control of its thickness.⁶

The temperature behavior of the junctions whose resistance exceeds 20 k Ω depends dramatically on the substrate used (Fig. 2): the resistance ratio $R_{295\text{ K}}/R_{4.2\text{ K}}$ is less than 0.1 for a junction on Si with $R_{4.2\text{ K}} = 500\text{ k}\Omega$, and $MR_{295\text{ K}}$ is below 0.5%. Similar junctions grown on glass show only a weak decrease of resistance with temperature ($R_{295\text{ K}}/R_{4\text{ K}} = 0.7$) with $MR_{295\text{ K}}$ above 5%. We attribute this difference to temperature-dependent shunting through the Si substrates: at room temperature, conduction through Si is easier than tunneling through Al₂O₃, leading to strongly asymmetric, Schottky-diode like $I-V$ curves (inset in Fig. 2). At low temperature, the resistivity of Si is strongly increased, symmetric $I-V$ curves are recovered and the $R(T)$ curve reflects the weakly varying tunnel component. Intrinsic tunnel $I-V$ curves are obtained at any temperature for junctions grown on glass. Little shunting occurs in junctions on Si whose resistance does not exceed a few k Ω , leading to little difference with the behavior of similar junctions grown on glass.

Therefore the intrinsic transport properties of the junctions grown by this technique can be investigated with less ambiguity on samples grown on glass. Systematic features are obtained as long as the Co electrode is not oxidized by the plasma (see below): the dI/dV curves show an overall parabolic shape. Below 30 mV a «zero bias anomaly» is observed at low temperature (not shown). This structure, already reported by several authors, is ascribed to spin excita-

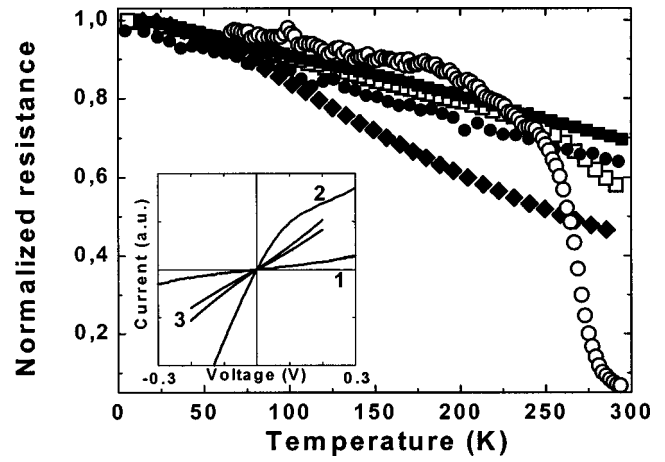


FIG. 2. Normalized resistance $R/R_{4.2\text{ K}}$, as a function of temperature for junctions with 15 Å Al oxidized 1 min on glass (■) and Si (□) substrates ($R_{4.2\text{ K}} \sim 5\text{ k}\Omega$), junctions with 25 Å Al oxidized 3 min on glass (●) and Si (○) ($R_{4.2\text{ K}} \sim 500\text{ k}\Omega$), and a junction with 10 Å Al oxidized 1 min on glass (◆). The inset shows the $I-V$ curves measured at (1) 4.2 K and (2) 295 K for a junction with 20 Å Al oxidized 3 min on Si, and the ones obtained for (●) at (3) 4.2 and 295 K.

tions localized at the interfaces⁷ and is blurred at room temperature. The MR decreases with increasing bias voltage, and its value at 0.2 V is approximately half the value at 1 mV.

For a given oxidation time, an optimum Al thickness t_0 is expected, below which oxidation of the bottom Co layer sets in after full oxidation of the Al, and above which some Al is left unoxidized, both situations leading to a decrease of TMR.⁸ To estimate t_0 for our oxidation technique, a detailed temperature study was conducted on samples whose barriers were 20, 15, and 10 Å thick aluminum layers oxidized dur-

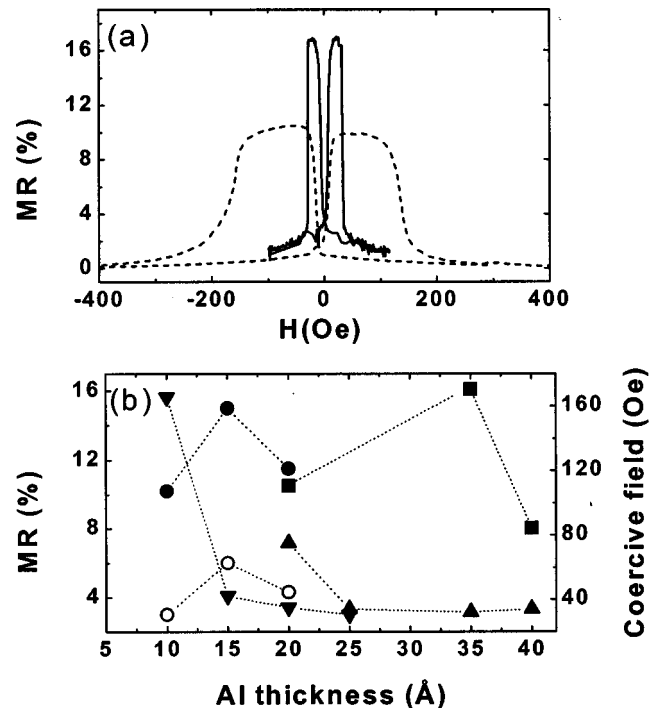


FIG. 3. (a) Low-temperature MR loops of junctions formed by a 1 min oxidation of 15 Å Al (straight line) and 10 Å Al (dotted line); (b) coercive field H_c of the cobalt bottom electrode at 4.2 K (▼), magnetoresistance $MR_{295\text{ K}}$ (○) and $MR_{4.2\text{ K}}$ (●) as a function of Al thickness for a 1 min oxidation time. $MR_{4.2\text{ K}}$ (■) and H_c (▲) are also plotted for a 3 min oxidation time.

ing 1 min. The first two junctions exhibit very similar features: the decrease of resistance with temperature is weak ($R_{295\text{ K}}/R_{4\text{ K}}=0.7$); very close values of barrier widths and heights can be extracted from low-temperature I - V curves using the Brinkman's formula (19 and 20 Å, 1.2 and 1.3 eV, respectively); the abrupt reversal of the Co electrode magnetization already mentioned is also observed at 4.2 K [Fig. 3(a); complete reversal occurs within 5 Oe] and the switching field H_c remains below 40 Oe. The third junction exhibits qualitatively different properties: a more pronounced decrease of resistance with temperature ($R_{295\text{ K}}/R_{4\text{ K}}=0.45$), significantly different Brinkman barrier thickness and height (29 Å and 0.6 eV), a much broadened reversal of the bottom electrode (it extends over 100 Oe) and an increase of H_c to about 160 Oe [Fig. 3(a)]. These observations are fully consistent with the formation of an interfacial antiferromagnetic cobalt oxide layer for the 10 Å Al sample, with semiconductor-like transport properties. The $MR_{295\text{ K}}$ ratio for that sample (3%) is significantly lower than for the 15 Å sample (6%); the difference between the $MR_{4.2\text{ K}}$ values is less marked (10% and 15%). Both $MR_{4.2\text{ K}}$ and $MR_{295\text{ K}}$ are smaller for the 20 Å sample than for the 15 Å sample, confirming $10\text{ Å} < t_0^{1\text{ min}} < 20\text{ Å}$. A larger t_0 is expected for longer plasma exposure. Junctions formed by a 3 min oxidation of 20 Å Al indeed exhibit a significantly larger H_c at 4.2 K (74 Oe) and smaller MR than junctions formed by oxidizing the same thickness for 1 min (34 Oe) or by oxidizing a larger Al thickness (35 Å) for 3 min [Fig. 3(b)]; this indicates $t_0^{3\text{ min}} > 20\text{ Å}$.

In conclusion we have demonstrated a barrier oxidation technique based on Ar/O₂ rf sputter etching of aluminum at room temperature that enables the growth of magnetic tunnel junctions by sputtering on various substrates, with reproducible features and control of the junction resistance over three orders of magnitude without a loss of TMR. A significant enhancement of the TMR ratio is expected for *in situ* masks changing and patterning of the junctions by lithography.

This work was supported in part by the European Community and the NEDO of Japan. The authors thank F. Montaigne for many fruitful discussions, S. David and E. Gouardes for help with the experiments and P. Seneor for a critical reading of the manuscript.

¹J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong, and R. Meservey, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3273 (1995).

²R. J. M. van de Verdoonk, J. Nowak, R. Meservey, J. S. Moodera, and W. J. M. de Jonge, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 2839 (1997).

³T. S. Plaskett, P. P. Freitas, J. J. Sun, R. C. Sousa, F. F. da Silva, T. T. P. Galvao, N. M. Pinho, S. Cardoso, M. F. da Silva, and J. C. Soares, *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* **475**, 469 (1997).

⁴J. H. Greiner, *J. Appl. Phys.* **42**, 5151 (1971).

⁵W. F. Brinkman, R. C. Dynes, and J. M. Rowell, *J. Appl. Phys.* **41**, 1915 (1971).

⁶P. C. Karulkar and J. Nordman, *J. Appl. Phys.* **50**, 7051 (1979).

⁷S. Zhang, P. M. Levy, A. C. Marley, and S. S. P. Parkin, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3744 (1997).

⁸J. S. Moodera, E. Gallagher, K. Robinson, and J. Nowak, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 3050 (1997).

Tunneling magnetoresistance and induced domain structure in Al_2O_3 -based junctions

M. Hehn, O. Lenoble, D. Lacour, C. Féry, and M. Piécuch

Laboratoire de Physique des Matériaux, UMR CNRS 7556, Université H. Poincaré–Nancy 1, Boîte Postale 239, 54506 Vandoeuvre Les Nancy Cedex, France

C. Tiusan and K. Ounadjela

Institut de Physique et de Chimie des Matériaux de Strasbourg, 23 rue du Loess, F-67037 Strasbourg Cedex, France

(Received 1 July 1999; revised manuscript received 30 November 1999)

Magnetization reversal in sputtered Co and oxidized Co (CoOx) layers are studied using transport measurements and magneto-optic Kerr effect. When associated in a magnetic tunnel junction, the two magnetic layers show a strong ferromagnetic coupling. Using the tunnel magnetoresistive effect as a probe for micromagnetic studies, we show the existence of an unexpected domain structure in the soft Co layer. This domain structure originates from the duplication of the domain structure of the hard CoOx magnetic layer template into the soft Co layer via the ferromagnetic coupling.

I. INTRODUCTION

Since the discovery of a tunnel magnetoresistance (TMR) effect at room temperature in oxide barrier based magnetic tunnel junctions, this research area is the subject of intense developments with many possible application prospects. The numerous studies devoted to different aspects of this topic permit to get a better understanding of the fundamentals of spin polarized tunneling transport. Up to now, much attention has been paid on the study of the tunnel barrier properties and their optimization during the fabrication procedure. Indeed, this part of the junction is subjected to many diseases and some of them have been already addressed: natural¹ or artificial² defects, roughness of the barrier,^{3,4} depth chemical homogeneity⁵ and under or over oxidation of the barrier.⁶ In contrast, since the forerunner model proposed by Jullière⁷ which predicts the dependence of the TMR signal with the magnetic electrode polarization and its experimental proof, less attention has been concentrated on topics related to the use of magnetic electrodes. However, many other effects such as magnetization reversal processes, domain formation and implication of the domain structure in each magnetic layer in contact with the tunnel barrier on the TMR signal height have not been considered so far or have only recently emerged.^{8–10} For instance, it has been shown that the existence of a domain structure in hard magnetic layers may induce extra current channels in TMR junctions due to the current perpendicular to plane (CPP) geometry.¹⁰ The amount of shortened tunnel current, directly dependent on the domain structure, may rule out any potential applications as memory or heads applications.

In this paper, we report the relationship between tunnel transport and magnetic domain structure which occurs during the reversal of the magnetic layers in Co(10 nm)/AlOx/CoOx(10 nm) tunnel junctions. Tunnel junctions appear to be good candidates to study the magnetization reversal or the domain structure of ferromagnetic layers (FL's) in contact with the barrier because of the large sensitivity of the spin dependent tunnel current to nanoscale magnetic fluctuations. When the reversal of either the soft layer or the hard layer is

known, it allows to extract the magnetic behavior of the other magnetic layer. From the measurements of the TMR curves in Co(10 nm)/AlOx/CoOx(10 nm) tunnel junctions, an unexpected domain structure in the soft cobalt (Co) layer has been evidenced. This domain structure is induced from the hard oxidized Co (CoOx) magnetic layer template via a strong indirect ferromagnetic coupling.

II. EXPERIMENTAL PROCEDURES

Single films and junctions are deposited onto float-glass substrates maintained at room temperature in an *Alcatel SCM 650* automated sputtering apparatus. 99.95% pure Co and aluminum (Al) targets are mounted on respectively 10 cm diameter rf and dc magnetron cathodes. The substrate-to-target distance is set to 10 cm. The base pressure is less than 5×10^{-7} mbar and 99.999% purified argon is introduced into the chamber through a pressure-regulated valve up to an operating pressure fixed to 5×10^{-3} mbar. All films are deposited in the dynamic mode: the substrate is scanned over the cathodes at 2 rpm in the case of Co and 4 rpm in the case of Al. The power applied by the generator to the target is chosen to have 3.0 Å/scan deposition rate for both Co and Al. To obtain the oxidized Al (AlOx) barrier and CoOx electrode, the oxidation is realized just after deposition of the metallic Al or Co layer using a dc glow discharge under a pure 10^{-1} mbar O_2 plasma in the sputtering load-lock. The samples are transferred to this chamber without breaking the vacuum.

To prepare junctions suitable for current perpendicular to plane (CPP) transport geometry measurements, we have used contact masks made in a 100 μm thick CuBe foil which allow us to prepare 16 junctions at each run on a sample. The patterning of the CuBe foil is achieved by a standard chemical etching technique with a path width of 200 μm . In the first place, Cr/Au contacts are evaporated onto each $20 \times 20 \text{ mm}^2$ float-glass substrate. Then, the masks are sequentially set close to the substrate. Samples are transferred back to the load-lock for each *ex situ* contact mask change. Then, the load-lock is quickly vented with nitrogen, the mask is

changed and the load-lock is pumped down so that, the air exposure is less than 2 min. Details on the junction geometry can be found elsewhere.¹¹ Electrical resistivity and magnetoresistance are measured with a standard two-probe dc technique. Magnetization curves of the single magnetic films and the junctions are recorded at room temperature with a magneto-optic Kerr effect (MOKE) apparatus operating with a 6328 Å He-Ne laser in the longitudinal geometry.

III. MAGNETIZATION CURVES AND REVERSAL IN THE SOFT AND HARD MAGNETIC ELECTRODES

Tunnel magnetoresistance relates to the fact that the tunneling probability of electrons in a hybrid ferromagnetic/insulator/ferromagnetic layered structure depends on the relative orientation of the two FL magnetizations. This implies a pair of FL's for which the orientation of each magnetization can be reversed independently. For this purpose, we take advantage of the experimental setup used to grow our samples. Initially used to get films with uniform thickness, substrates are scanned over the cathodes in a dynamic mode in order to induce a small morphological uniaxial anisotropy (H_A). This first step leads to FL with square Kerr magnetization curves ($\theta-H$ curves) when measured along the easy axis with a coercive field (H_c) around 30 Oe. In a second step, the hard layer (the topmost in the three layers structure), grown in the same conditions, is 1 min oxidized using the experimental conditions and setup optimized to make up the tunnel barriers. After this oxidation, H_c increases drastically to values around 110 Oe at room temperature and the $\theta-H$ curves keep a squarelike shape, rounded for applied fields around H_c . The oxidation has then two effects on the magnetization reversal; (i) the switching of the magnetic layer is less abrupt and occurs in a field range of several tens of oersteds while the magnetization remanence (M_r/M_s) maintains a high value (about 95%), and (ii) the coercive field is increased by a factor of 4. These changes could not be explained by simple arguments.¹²

The origin of the Co layer hardening after oxidation and the change in the magnetization reversal mechanism have been addressed using magnetic force microscopy with an *in situ* applied field and anisotropy magnetoresistance (AMR) measurements.

In this last case, measurements have been performed on the junction electrodes individually probed using the typical cross architecture of the junction. Since both electrodes have parallel easy axis and the junction has a cross geometry, the Co (respectively CoOx) electrode has its easy magnetization axis perpendicular (respectively parallel) to its length. As far as the pure Co layer is concerned (bottom electrode), no evidence of a magnetization component perpendicular to H_A is observed during the reversal when the field is applied along the easy axis [Fig. 1(a), $-\circ-$]. Considering the low value of H_c and the squareness of the $\theta-H$ curve, the magnetization reverses its direction by nucleation and propagation of domain walls.

The reversal of the top electrode appears to be substantially different after oxidation of the Co layer. The AMR response shown in Fig. 1(b) with the magnetic field parallel ($-\circ-$) and perpendicular ($-\bullet-$) to H_A is consistent with a reversal occurring through the appearance of ripples do-

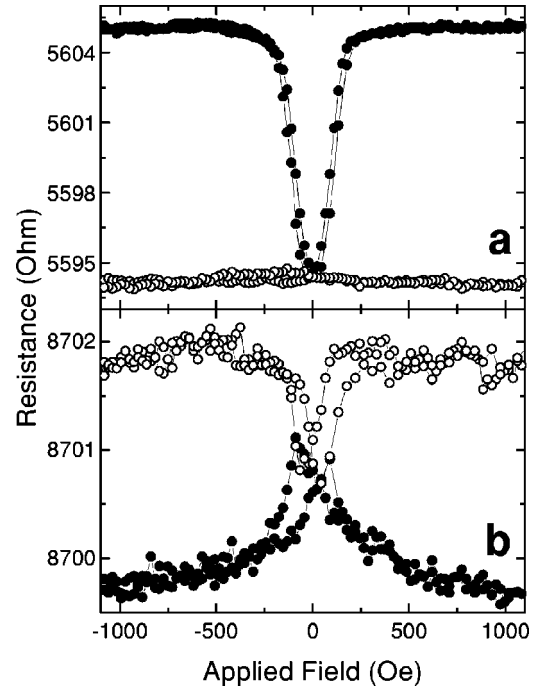


FIG. 1. Anisotropy of magnetoresistance measurements performed on the Co (a) and CoOx (b) junction electrodes. The Co (respectively CoOx) electrode has its easy axis of magnetization perpendicular (respectively parallel) to its length. Measurements are made with the field applied parallel ($-\circ-$) and perpendicular ($-\bullet-$) to the easy axis of magnetization.

main structures.¹³ When the value of the field applied along the easy axis is reduced from positive saturation to zero, magnetization rotates continuously in the film plane in a reversible process and a component perpendicular to H_A appears. The magnetic moments are then aligned within an angle bisected by the direction of the positive saturation field. On a microscopic scale, the sense of rotation is defined by the angle between the local effective magnetocrystalline anisotropy and the external applied field imposing that regions distributed over the whole sample may rotate clockwise or counterclockwise. When the applied field is reversed in the negative direction, regions with the lowest local effective anisotropy switch first their magnetization in a direction close to the one of the negative applied field. This reversal leads undoubtedly to reversals of other regions coupled either by exchange or by dipolar interactions. This generates regions with main magnetization oriented in the negative direction which coexist with regions with main magnetization oriented in the positive field direction. Increasing the negative applied field increases the proportion of reversed magnetized regions until negative saturation is reached.

This reversal mechanism was supported using magnetic force microscopy with an *in situ* applied field.^{10,14} In the field range of interest (from 0 to -300 Oe after positive saturation), no correlated walls could be observed during the magnetization reversal, only small dipolar contrasts compatible with small leakage fields. The MFM pattern is mainly composed of lines without contrast directed in the applied field direction and a white and black checkerboard, the position of each contrast depending on the applied field. These last contrasts are due to the lateral fluctuation of the magnetization

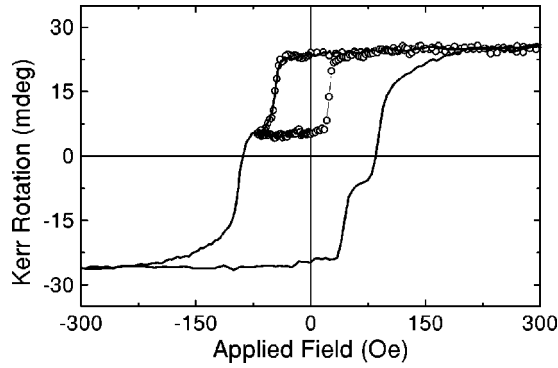


FIG. 2. Complete (—) and minor (—○—) magnetization loops measured by longitudinal Kerr effect directly on a Co(10 nm)/Al(1.5 nm, ox 1 mn, 45 s)/Co(10 nm, ox 1 mn) tunnel junction with 200 μm lateral size. The shift of the minor loop towards the negative applied fields exemplifies the ferromagnetic coupling between the magnetic electrodes.

component perpendicular to H_A and their analysis will be published elsewhere.¹⁵ The modification of the reversal mechanism must be directly related to the oxidation process. Indeed, the diffusion of oxygen in the grain boundaries during the oxidation process weakens the exchange coupling between grains and therefore reduces the averaging of the randomly directed anisotropy fields of various grains. This fact has been shown by Berkov *et al.*¹⁶ to be at the origin of the appearance of a ripple domain structure which leads to the increase of H_c and the decrease of M_r/M_s .

IV. MAGNETIZATION CURVE AND REVERSAL IN THE SOFT AND HARD MAGNETIC ELECTRODES SEPARATED BY A THIN TUNNEL BARRIER—TMR IN THESE JUNCTIONS

The next section of the paper is devoted to the analysis of the magnetization reversal of the two FL's when they are used as electrodes in a magnetic tunnel junction. Therefore, a complete $\theta-H$ curve measured along H_A directly on a 200 μm lateral size junction is presented in Fig. 2. It appears clearly that the coercive field of the Co layer is increased up to 45 Oe while the H_c of the CoOx layer is decreased down to 90 Oe. In fact, the intrinsic H_c of each FL has not changed but the reversals of the FL's are mutually influenced due to their proximity. This is exemplified by the minor loop shown in Fig. 2. As can be seen on the branch which extends from -75 Oe to positive saturation, the reversal of the soft Co layer occurs for an applied field of $+25$ Oe. The loop corresponding to the reversal of the soft Co layer is shifted by a bias field of -10 Oe corresponding to a ferromagnetic coupling with the hard CoOx layer. This coupling can be attributed to the orange-peel effect originating in a coherent corrugation of the top and bottom interfaces of the barrier.¹⁷ As it will be shown in the following, this ferromagnetic coupling has a strong influence on the magnetization reversal of the soft Co detection layer when the hard CoOx layer includes a domain structure.

The magnetotransport properties of Co(10 nm)/Al(t_{Al} nm, t_{ox} mn)/Co(10 nm, ox 1 mn) have been studied as a function of t_{Al} , the deposited Al thickness, and t_{ox} , the oxidation time. Since the TMR signal is known to be

strongly dependent on the under and overoxidation of the Al layer, an optimum t_{Al} is expected for a given t_{ox} . For our oxidation technique and t_{ox} equal to 1 mn 30 s, the optimum Al thickness is 15 $\text{\AA}$ for which the TMR signal¹⁸ at room temperature is equal to 9% and the mean junction resistance to 120 k Ω . On the one hand, when t_{Al} is increased to 18 $\text{\AA}$, the resistance shows a slight increase (of about 15%) while the TMR signal decreases to 7%. On the other hand, when t_{Al} is decreased to 12 $\text{\AA}$, the TMR signal and the resistance drop to about 5% and 40 k Ω , respectively. The TMR signal shows the well known decrease with the applied voltage with a characteristic $|V_{1/2}|$, the applied voltage for which the TMR signal is reduced by a factor of two, of 0.2 to 0.4 V depending on the polarity of the junction. Brinkman's theory of tunneling¹⁹ was applied to estimate the effective barrier height, Φ , and thickness, t_{eff} . No clear correlation could be observed between Φ , with values above 0.8 eV and less than 1.2 eV, and t_{ox} but the fitted t_{eff} are always in good agreement with t_{Al} . Junctions with the best magnetotransport properties have been measured at low temperature, down to 4.2 K. Their resistance increases linearly as temperature T is decreased and saturates for T less than 75 K at a value two times larger than at room temperature. In a same manner, the TMR signal shows an increase of 30% and reached 12% for $t_{\text{Al}} = 15 \text{ \AA}$.

V. EFFECT OF THE FERROMAGNETIC COUPLING BETWEEN THE ELECTRODES ON THE TMR SIGNAL

The following aims to show how the ferromagnetic coupling between two electrodes strongly influences the magnetization reversal of the soft Co layer when the hard CoOx layer includes a domain structure. Since tunneling current decreases exponentially with the distance through the barrier, the preferential conduction channels are the shortest paths for electrons to travel across the insulator. Therefore, the most important factor which determines the magnitude of the spin polarized tunneling current is the relative local orientation of the ferromagnetic moments directly across the barrier. We use this large sensitivity to local magnetization fluctuations of the spin dependent tunnel current and the knowledge of the reversal of the hard magnetic layer to infer the induced domain structure in the soft pure Co layer.

Complete (—) and minor (—○—) characteristic TMR loops are shown in Fig. 3 measured on a Co(10 nm)/Al(1.8 nm, ox 1 mn)/Co(10 nm, ox 1 mn) tunnel junction with 200 μm lateral size. The features appearing in the minor loop are reproducible [measured on several Co(10 nm)/Al(1.8 nm, ox 1 mn)/Co(10 nm, ox 1 mn) junctions] but dependent on t_{Al} and t_{ox} .¹⁵ After saturation at 500 Oe, the applied field is decreased down to -500 Oe (complete cycle) or to H_{rev} (minor cycle). The resistance jumps, $\Delta R(H_c(\text{Co}))$, occurring at the effective H_c of the soft Co layer, $H_c(\text{Co})$, are equal in both cases. By reversing the applied field and increasing its value from -500 Oe or from H_{rev} towards 500 Oe, the two cycles appear to be completely different. In the case of the complete negative saturation (major cycle), the cycle is symmetric and therefore holds two resistance jumps. As far as the minor loop is concerned, three resistance jumps with different signs appear at some fields named H_1, H_2 and H_3 , which are different than $H_c(\text{Co})$,

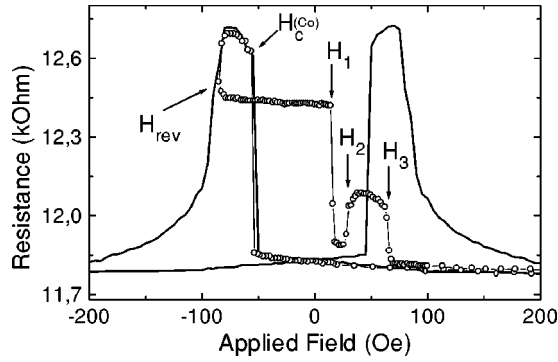


FIG. 3. Complete (—) and minor (—○—) tunnel magnetoresistance loops measured on a Co(10 nm)/Al(1.8 nm, ox 1 nm)/Co (10 nm, ox 1 nm) tunnel junction with 200 μm lateral size. By reversing the negative applied field at some H_{rev} on the minor loop, three jumps with different signs appear at some fields H_1 , H_2 , and H_3 .

$H_c^{\text{int}}(\text{Co})$ —the intrinsic H_c of the Co layer—or than the effective H_c of the hard CoOx layer, $H_c(\text{CoOx})$.

In order to shed light on the phenomena responsible for the additional jump, the magnitudes of the different resistance jumps have been studied as a function of H_{rev} , the value at which the applied field, H , is reversed. The variation of the resistance jump amplitudes for the previously defined applied fields $H_c(\text{Co})$ (—●—), H_1 (—□—), and H_2 (filled black square) are reported in Fig. 4. The last curve (—○—) added to the plot is the sum of the absolute values of the resistance jumps at H_1 , $\Delta R(H_1)$, and at H_2 , $\Delta R(H_2)$. Several trends can be extracted from this figure. When $|H_{\text{rev}}|$ is between 45 and 85 Oe [between $H_c(\text{Co})$ and $H_c(\text{CoOx})$], only one resistance jump is observed with value equal or slightly less than $\Delta R(H_c(\text{Co}))$. This jump is easily attributed to the own reversal of the soft Co layer. As H_{rev} decreases towards negative fields, $\Delta R(H_1)$ decreases while $\Delta R(H_2)$ increases. Their variations appear to be correlated since their sum remains constant, 15% lower than $\Delta R(H_c(\text{Co}))$. When $|H_{\text{rev}}|$ exceeds 165 Oe, $\Delta R(H_1)$ is reduced to zero and remains constant while $\Delta R(H_2)$, H_2 , and H_3 continuously converge towards $\Delta R(H_c(\text{Co}))$, $H_c(\text{Co})$, and $H_c(\text{CoOx})$, respectively.

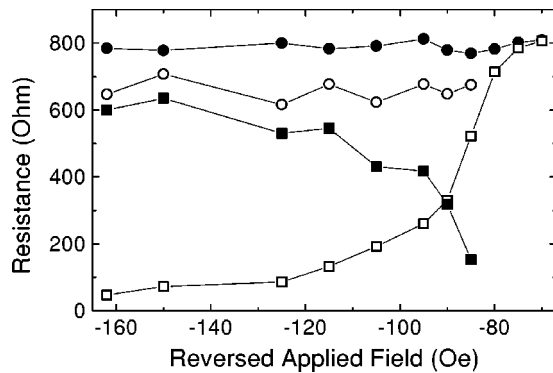


FIG. 4. Variation of the amplitude of the resistance jumps measured for an applied field $H_c(\text{Co})$ (●), H_1 (□), and H_2 (filled black square) as a function of the reversing negative applied field H_{rev} . The last curve (○) is a plot of the sum of the absolute value of the resistance jumps at H_1 and H_2 .

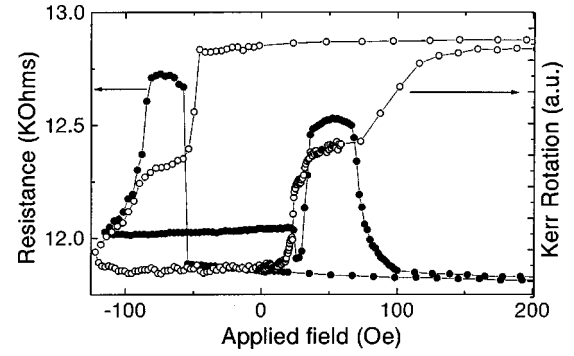


FIG. 5. Comparison between a minor tunnel magnetoresistance loop (—●—) and a minor magnetization loop measured by longitudinal Kerr effect directly on a Co(10 nm)/Al(1.8 nm, ox 1 nm 30 s)/Co(10 nm, ox 1 nm) tunnel junction with 200 μm lateral size (—○—). The reduction of resistance for applied fields between 22 and 34 Oe is correlated to the appearance of a plateau in the minor magnetization loop. This plateau disappears on the complete magnetization loop as exemplified in Fig. 2.

Particularly interesting is the fact that for applied fields between H_1 and H_2 , the resistance of the junction is close to the one measured when the magnetizations of the two magnetic electrodes are in a parallel configuration. Therefore, directly across the barrier, the magnetization of the two magnetic electrodes are locally parallel even if the hard magnetic layer is far from magnetic saturation. As a consequence, the domain structure of the hard CoOx layer is duplicated in the soft pure Co layer. An evidence of the perturbation of the soft Co electrode reversal is given in Fig. 5 where a minor tunnel magnetoresistance loop (—●—) and a minor magnetization loop measured on a tunnel junction (—○—) are compared. The reduction of resistance for applied fields between 22 and 34 Oe is correlated to the appearance of a plateau in the magnetization reversal of the soft Co layer in the minor magnetization loop. This plateau corresponds to a field window for which the duplicated domain structure is stable in the soft Co layer while it disappears on the complete magnetization loop as exemplified in Fig. 2. The existence of such domain structure in the soft layer creates low resistance paths which partially shorten the tunnel current and hence reduces the overall TMR ratio.

A model of domain structure is sketched in Fig. 6 to explain the main features of the minor TMR curves observed experimentally. It relies on the knowledge of the reversal of the hard magnetic CoOx layer and the strength of the ferromagnetic coupling between the two electrodes. As described in a previous section, when H , directed along H_A in the direction opposite to the positive saturating field, has values around $-H_c(\text{CoOx})$ (in the case of the present MTJ between -85 Oe and -160 Oe) a domain structure exists in the CoOx electrode while the soft Co layer is saturated in the negative field direction. This domain structure consists of regions with main magnetization oriented in the negative field direction created when $|H|$ exceeds 85 Oe which coexist with regions with main magnetization oriented in the positive field direction [Fig. 6(a)]. As mentioned above, increasing the negative applied field increases the density of reversed magnetized regions until negative domain saturation is reached at $|H|$ around 160 Oe.

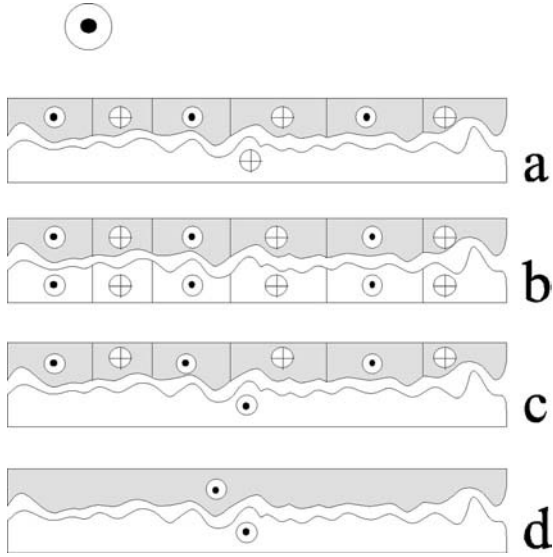


FIG. 6. Sketch showing the evolution of the domain structure in each magnetic layer, the soft Co layer (bottom layer, white) and the hard CoOx layer (top layer, gray scale). The symbols $\odot$ and $\otimes$ represent the main magnetization in each domain (oriented perpendicular to the paper sheet) respectively opposite and along the positive saturating field (represented by the big $\odot$ outside the sketch). After a positive saturation, the applied field is decreased and reversed until H_{rev} is reached. At this field, the soft Co layer is saturated and a domain structure remains in the hard CoOx layer (a). Reversing the field in the positive direction, the reversal of the soft Co layer occurs in two steps. First, the magnetization of regions located under domains in the hard CoOx layer with magnetization oriented in the positive saturating field direction reverses at a field H_1 (b). Then, at H_2 , the Co layer reaches its positive saturation state (c). Finally, the CoOx layer saturates at H_3 for which the resistance is minimal (d).

As H is reversed from H_{rev} towards the positive fields, regions of the soft layer which are located over domains in the CoOx layer with main magnetization oriented in the positive field direction experience a local field equal to $H + H_f$, where H_f represents the ferromagnetic field coupling between the two electrodes. Therefore, these regions will rotate first for an applied field of approximately $H_c^{\text{int}}(\text{Co}) - H_f$. In fact, the reversal field is slightly higher due to the energy needed to include domain walls in the soft Co layer. After reversal and as exemplified in Fig. 6(b), the two magnetic electrodes hold the same domain structure. A part from the magnetization inside the walls, locally in both layers, magnetizations are parallel. Therefore, the junction resistance decreases with a jump of $\Delta R(H_1)$ and is nearly minimal. This correlated domain structure can be observed in these samples because the energy spend to create domain walls is less than the gain in energy linked to regions ferromagnetically aligned. A further increase of H leads to the reversal of regions of the soft layer which are located over domains in the CoOx layer with main magnetization oriented in the negative field direction and experience a local field equal to $H - H_f$. Indeed, these regions will switch for an applied field of approximately $H_c^{\text{int}}(\text{Co}) + H_f$. In fact, the reversal field is slightly smaller due to the gain in energy arising from the disappearance of walls in the Co layer. After reversal and as exemplified in Fig. 6(c), the soft layer is in a single domain

state while the domain structure remains in the hard layer. Locally in both layers, magnetizations are either parallel or antiparallel and this last magnetic configuration contributes to the increase of the junction resistance $\Delta R(H_2)$. A further increase of H leads finally to the saturation of the CoOx magnetization [Fig. 6(d)]. Here again, locally in both layers, magnetizations are parallel and walls have disappeared. Therefore, resistance decreases and reaches its value at saturation. The magnitude of this last resistance jump $\Delta R(H_3)$ is close to the difference $R(H_c(\text{Co})) - R(H_{\text{rev}})$, where $R(H_c(\text{Co}))$ and $R(H_{\text{rev}})$ are the resistances measured at $H_c(\text{Co})$ and H_{rev} , respectively, indicating that the domain structure present in the CoOx layer remains approximately constant when the applied magnetic field increases from H_{rev} up to H_3 .

In the light of this model, the behavior of $\Delta R(H_i)$ ($i = 1, 2$ and 3) as a function of H_{rev} can be explained. As mentioned above, when H_{rev} is between -85 and -160 Oe and when its value decreases, the density of reversed magnetized regions increases in the CoOx electrode. Therefore, $R(H_{\text{rev}})$ decreases and consequently $\Delta R(H_1)$ also decreases. The gain in resistance at H_2 is directly proportional to the density of domains in the CoOx layer with negative main magnetization. By increasing $|H_{\text{rev}}|$, their density increases and consequently $\Delta R(H_2)$ decreases too. Finally, increasing $|H_{\text{rev}}|$ up to 160 Oe, H_1 and H_2 get close to $H_c(\text{Co})$ and H_3 gets close to $H_c(\text{CoOx})$.

VI. CONCLUSIONS

In this paper, we present results on the magnetic properties of Co and CoOx electrodes and on the magnetotransport properties of Co(10 nm)/AlOx/CoOx(10 nm) tunnel junctions. We have demonstrated that the oxidation of the Co electrode leads to a drastic change of its reversal mechanism and to the appearance of a ripple domain structure which induces an increase of the coercive field. When a junction is constituted with these two electrodes separated by an AlOx layer, a dipolar interaction takes place leading to a decrease of the difference between both coercive fields. The main purpose of this paper is to report, for the first time, on induced domain structure in the soft magnetic layer duplicated from the hard magnetic layer template by a ferromagnetic type coupling. Then, we characterized magnetotransport properties of these junctions in order to study the magnetization reversal of the soft Co electrode. In fact, spin dependent tunneling current is severely affected by local magnetization fluctuations and the knowledge of the magnetic structure in one electrode (the hard electrode) must conduct to the understanding on the magnetization reversal of the second electrode (the soft electrode).

ACKNOWLEDGMENTS

The authors thank J.-F. Bobo, M. Demand, J. Latriche, L. Moreau, J.-G. Mussot, and C. Senet for their technical support, and C. Bellouard, G. Marchal, A. Schuhl, and R. L. Stamps for many fruitful discussions and for help with the experiments.

- ¹C.H. Shang, J. Nowak, R. Jansen, and J.S. Moodera, *Phys. Rev. B* **58**, R2917 (1998).
- ²R. Jansen and J.S. Moodera, *J. Appl. Phys.* **83**, 6682 (1998).
- ³F. Bardou, *Europhys. Lett.* **39**, 239 (1997).
- ⁴V. Da Costa, F. Bardou, C. Bal, Y. Henry, J.-P. Bucher, and K. Ounadjela, *J. Appl. Phys.* **83**, 6703 (1998).
- ⁵R.C. Sousa, J.J. Sun, V. Soares, P.P. Freitas, A. Kling, M.F. da Silva, and J.C. Soares, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 3288 (1998).
- ⁶J.S. Moodera, E.F. Gallagher, K. Robinson, and J. Nowak, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 3050 (1997).
- ⁷M. Jullière, *Phys. Lett.* **54A**, 225 (1975).
- ⁸C.L. Platt, B. Dieny, and A.E. Berkowitz, *J. Appl. Phys.* **81**, 5523 (1997).
- ⁹R.E. Dunin-Borkowski, M.R. McCartney, D.J. Smith, S. Gider, B.U. Runge, and S.S. Parkin, *J. Appl. Phys.* **85**, 4815 (1999).
- ¹⁰C. Tiusan, T. Dimopoulos, M. Hehn, V. Da Costa, Y. Henry, H. A. M. van den Berg, and K. Ounadjela, *Phys. Rev. B* **61**, 580 (2000).
- ¹¹Ch. Féry, L. Hennet, O. Lenoble, M. Piecuch, E. Snoeck, and J.F. Bobo, *J. Phys.: Condens. Matter* **10**, 6629 (1998).
- ¹²This increase in H_c cannot be explained only by the reduction of the magnetic effective layer thickness. Indeed, even if an increase of 50% in H_c is observed as the thickness of a nonoxidized Co layer is decreased from 10 to 5 nm, another mechanism must be invoked. Therefore, we have studied the magnetic susceptibility of the CoOx layer as a function of temperature. The Néel and blocking temperatures of this thin layer appear to be below 80 K. So, at room temperature, an eventual antiferromagnetic CoOx layer cannot be called to explain the H_c increase.
- ¹³K.D. Leaver, *Thin Solid Films* **2**, 149 (1968).
- ¹⁴C. Tiusan and M. Hehn (private communication).
- ¹⁵M. Hehn, O. Lenoble, D. Lacour, A. Schuhl, C. Tiusan and K. Ounadjela (unpublished).
- ¹⁶D.V. Berkov and N.L. Gorn, *Phys. Rev. B* **57**, 14 332 (1998).
- ¹⁷L. Néel, *C. R. Acad. Sci. URSS* **255**, 1676 (1962).
- ¹⁸In this article, the TMR signal is defined as the ratio of the difference of resistance in the parallel and antiparallel magnetization configurations and the resistance in the antiparallel magnetization configuration.
- ¹⁹W.F. Brinkman, R.C. Dynes, and J.M. Rowell, *J. Appl. Phys.* **41**, 1915 (1971).

Tantalum oxide as an alternative low height tunnel barrier in magnetic junctions

P. Rottländer,^{a)} M. Hehn, O. Lenoble, and A. Schuhl

Laboratoire de Physique des Matériaux, UMR CNRS 7556, B.P. 239, 54506 Vandœuvre lès Nancy Cedex, France

(Received 18 September 2000; accepted for publication 2 April 2001)

Magnetic tunnel junctions with a barrier of tantalum oxide were prepared by plasma oxidation of sputter-deposited tantalum. They show magnetoresistance ratios of 2.5% at room temperature and 4% at low temperatures. The material exhibits low barrier heights of ~ 0.4 eV. This makes it possible to substantially increase the barrier thickness, compared to a barrier of aluminum oxide. The resulting decrease of coupling between the ferromagnetic layers is easily seen. Tantalum oxide appears to be a candidate for use as a tunnel barrier of spin-dependent tunneling devices. © 2001 American Institute of Physics. [DOI: 10.1063/1.1374223]

Since the discovery of spin dependent tunneling (SDT) across a Ge barrier by Jullière,¹ SDT has been shown to occur with the use of other tunnel barrier materials like Al_2O_3 ,² NiO ,³ MgO ,^{4,5} HfO_2 ,⁵ and SrTiO_3 .⁶ However, in those reported results, the barrier height was always above 1–1.5 eV. In this letter, we report spin dependent tunnel transport in thick and low height tantalum oxide barriers. A barrier height of ~ 0.4 eV offers additional control over the junction parameter, which previously has been limited to a fairly small range.

For some applications as, for example, high density magnetic random access memories, high barriers imply the use of very thin (<1 nm) insulating films to fulfill the application resistance requirements. However, for such thin barriers, electrode coupling alters the magnetic response of the device. To obtain the same junction resistance with a lower barrier height the thickness has to be increased accordingly. If the roughnesses of high and low height tunnel barriers are the same, this thickness increase reduces the orange peel coupling between the electrodes and, furthermore, the current distribution in the barrier is less sensitive to thickness fluctuations of the barrier. Thicker barriers may also eventually turn out to be more easily fabricated.

The properties of a thick amorphous Ta_2O_5 barrier have already been addressed for use in capacitors.⁷ However, few studies have been devoted to layers thinner than 5 nm (Refs. 5 and 8) as tunnel barriers. The best results⁸ so far show a tunnel magnetoresistance (TMR) effect of 1% for barrier heights between 1 and 2 eV. We have studied the magnetotransport properties of tunnel junctions with tantalum oxide barriers as a function of thickness, oxidation time, and oxidation power. A TMR signal as high as 4% at low temperature could be achieved using an *ex situ* changed set of shadow masks for junctions with barrier height of less than 0.5 eV.

Junctions are deposited onto float-glass substrates by sputtering cobalt and tantalum targets mounted on, respectively, 5 cm dc and 10 cm rf magnetron cathodes. The base pressure is less than 5×10^{-7} mbar and the substrates are

maintained at room temperature. The samples studied are composed of glass/ Ta^* (5 nm)/Co (10 nm)/TaOx (x nm, oxidized t s)/ Co^* (20 nm). All the layers are deposited at an operating pressure fixed at 5×10^{-3} mbar except for the first Ta and the last Co layers of the stack, referred to as Ta^* and Co^* that were deposited at 1.5×10^{-2} mbar. In this way, two electrodes with different coercive fields could be made.⁹ To obtain the oxidized tantalum (TaOx) barrier, the oxidation is realized just after deposition of the metallic Ta layer using a dc glow discharge driven by an adjustable power under pure 10^{-1} mbar O_2 plasma in a sputtering loadlock. The samples are transferred to this chamber without breaking vacuum. To define the junction geometry, we have used *ex situ* changed contact masks with a path width of 200 μm . Each sample was prepared to contain 14 tunnel junctions. Details of the junction geometry can be found elsewhere.¹⁰ Three series of junctions with varying oxidation times t have been prepared: the first with a 1.7 nm thick Ta layer oxidized at 300 W, the second with a 1.4 nm thick Ta layer oxidized at 300 W, and the last with a 1.4 nm thick Ta oxidized at 200 W. The electrical resistivity and magneto resistance are measured with a standard two-probe dc technique.

For all junctions on a sample, the current–voltage (I – V) characteristics were determined. The samples showed an average yield of about 30% of the junctions whose resistances exceed the lead resistance by at least a factor of 10. The yield approached 100% for the highly oxidized samples. All the highly resistive junctions, whose area resistivities range between 10^9 and $10^{13} \Omega \mu\text{m}^2$, show typical tunnel-like I – V curves and from those the barrier height and thickness were determined using the Brinkman formula.¹¹ The somewhat surprising results are barrier heights of some 0.4 eV and thicknesses of 2.5–3.0 nm for a sputtered 1.4 nm Ta layer. This high thickness can be explained by expansion of the Ta layer during oxidation. Indeed, assuming bulk densities of 16.6 g/cm^3 for metallic tantalum and 8.2 g/cm^3 for stoichiometric Ta_2O_5 , the layer grows by a factor of 2.5 during oxidation. In contrast, an aluminum layer grows by only 25%.

A typical magnetoresistance loop and the corresponding minor loop with only the soft Co layer being switched is

^{a)}Electronic mail: peter.rottlaender@lpm.u-nancy.fr

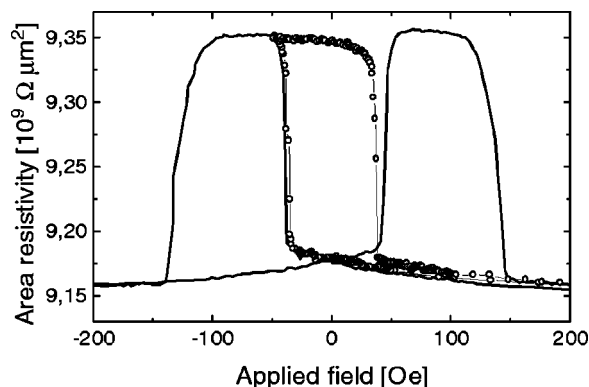


FIG. 1. Complete (—) and minor (○) tunnel magneto resistance loops measured on a Ta*/Co/Ta (1.4 nm, oxidized 15 s, 200 W)/Co* tunnel junction with 200 μm lateral size. This specific junction has about 2.1% TMR at room temperature. Within the accuracy of the Hall probe in use, no coupling can be found; usually it is about -4 Oe, indicating very weak ferromagnetic coupling.

shown in Fig. 1. The Co and Co* layers exhibit the same switching behavior as that reported earlier.⁹ It can be seen, however, that the magnetic layers are only weakly coupled, leading to the appearance of a well defined plateau. From the minor loop it is possible to deduce the coupling, which was to be found ferromagnetic within the accuracy of measurement. The ferromagnetic coupling field is about -4 ± 2 Oe for 1.4 nm Ta and 0 ± 2 Oe for 1.7 nm Ta, as opposed to -17 Oe in junctions with the same resistance but a higher and thinner Al oxide barrier. This reduction has been attributed to the decrease of interelectrode magnetostatic coupling with barrier thickness.

For each combination of Ta thickness and oxidation power, there appears to be an optimum oxidation time, as can be seen in Fig. 2. It is around 15–20 s for 1.4 nm Ta at 200 W, below 10 s for 1.4 nm Ta at 300 W, and around 60 s for 1.7 nm Ta at 300 W. The thinner samples exhibit a TMR signal of some 2.5%, while the thicker ones reach about 1.5%. Over- or underoxidation of the barrier reduces the TMR signal and gives rise to considerable noise in the junctions. Both also seem to decrease the average barrier height. Moreover, apparently in overoxidized junctions, the barrier asymmetry of the Brinkman fit depends on the voltage being

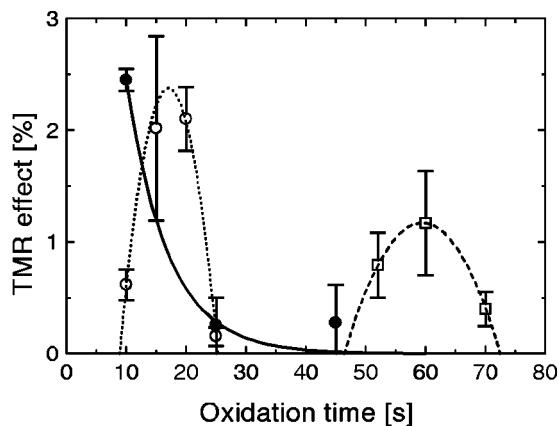


FIG. 2. Oxidation time dependence of the TMR effect. For 1.4 nm Ta, the optimum oxidation time is between 15 and 20 s at 200 W (○) and less than 10 s for 300 W (●). 1.7 nm Ta requires a much longer oxidation time of 60 s at 300 W (□). The lines are guides to the eye only.

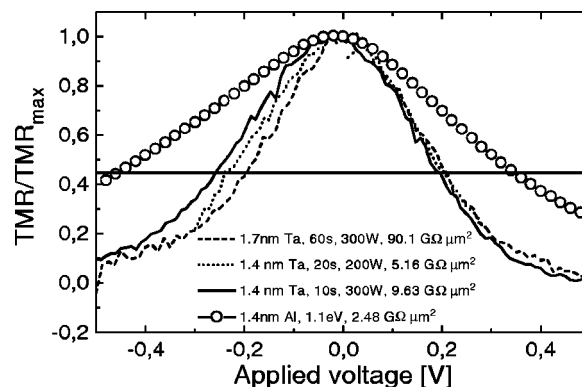


FIG. 3. Voltage dependence of the magnetoresistance ratio normalized to its zero bias value for the oxidation time optimized junctions. Data are given on thickness, oxidation time and power, and area resistance product RA . Data for an optimized Al_2O_3 tunnel barrier have been added for comparison (○).

varied from negative to positive or vice versa. This effect remains qualitatively the same with only little change over a few repetitions. Therefore, we think of weakly bound ionized oxygen moving in a Ta_2O_5 matrix driven by the electric field across the barrier. Detailed studies of this topic are in progress.

Figure 3 shows the magnetoresistance ratio normalized to its value at low bias measured for the oxidation time optimized junctions. This voltage dependence is almost independent of the sputtered Ta thickness and the conditions of oxidation. The magnetoresistance ratio is reduced to half of its maximum value ($V_{1/2}$) at bias voltages of about 0.2 V. As shown in the same graph, this is much lower than for aluminum, another indication of the lower barrier height of tantalum oxide. The TMR signal was measured for applied voltages up to 1 V and no evidence of negative TMR could be found at room temperature. Instead, TMR falls to zero for voltages around 0.5 V and remains at zero. These results are in contrast with those reported by Sharma *et al.* for a single tantalum oxide barrier.⁸

Junctions with the best magnetotransport properties have been measured at lower temperatures, down to 80 K. Their resistance increases quite linearly as the temperature is decreased and values of resistance at 80 K two to three times larger than at room temperature could be observed. This also supports tunneling as the dominant conduction mechanism.¹² The TMR signal increased by a factor of 2 and reached 4% for $t_{\text{Ta}} = 1.4$ nm (oxidized 15 s at 200 W) and 3.3% for $t_{\text{Ta}} = 1.7$ nm (oxidized 60 s at 300 W). The normalized variation of TMR with applied voltage at 80 K does not show drastic changes even if an increase of $V_{1/2}$ to about 0.23 V could be observed. From a Brinkman fit, an increase of the height and thickness of the barrier by 10% upon cooling down to 80 K could be extracted. The use of thick tunnel barriers increases the probability of including defects like traps which depolarize the electrons.¹³ Our measurements did not allow us to get information on the existence of traps in the barrier. Their existence could, however, be inferred from the large variation of the junction resistance and the TMR signal. The lower barrier height may also contribute to reduction of the TMR signal, as predicted by theoretical work.^{14,15}

Low temperature measurements also offer an alternative way to deduce the barrier height as shown, e.g., by

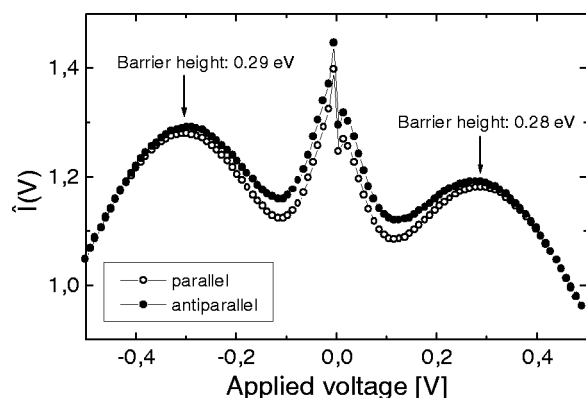


FIG. 4. Determination of the barrier height by plotting the normalized temperature dependence $\hat{I}(V) = [I(V, RT) - I(V, 80 \text{ K})]/I(V, 80 \text{ K})$. The value obtained roughly agrees with the height obtained by a Brinkman fit. The center peak is due to the strong zero bias anomaly found in magnetic tunnel systems.

Gundlach.¹⁶ Plotting the normalized temperature dependence $\hat{I}(V) = [I(V, T) - I(V, 0)]/I(V, 0)$ as a function of V produces cusps at voltages corresponding to the barrier height. Here, $I(V, 0)$ and $I(V, T)$ are the $I(V)$ characteristics at zero and some finite temperature T , respectively. A plot of $\hat{I}(V)$ for a 1.4 nm Ta junction is shown in Fig. 4, where the temperatures chosen were 80 K and room temperature. The barrier height is evaluated to be ~ 0.29 eV, which is in good agreement with the value of 0.34 eV determined from the Brinkman fit. This independently confirms the low height of the tantalum oxide barriers.

Breakdown of the junctions usually occurred at voltages around 1 V, increasing to 1.5 V upon cooling to liquid nitrogen temperatures. This is slightly (10%–20%) higher than for similarly processed alumina barriers.

To summarize, low barrier heights of 0.3–0.4 eV and magnetoresistance ratios of 2.5% at room temperature are obtainable by the proper choice of a suitable Ta thickness and oxidation time. These results are promising for a decrease in the coupling between the ferromagnetic layers

when low resistance per area is needed. It also allows one to spatially homogenize the current flowing through the barrier. Moreover, the low barrier will make it possible to safely study the field emission regime with applied voltages up to two or three times the barrier height. By the use of lithography and ion etching to pattern as-deposited multilayers, the depolarization of electrons at each interface polluted at the time of the *ex situ* shadow mask change should vanish and the TMR signal is expected to increase as observed for alumina barriers.¹⁷ Tantalum oxide prepared by plasma oxidation of sputter-deposited tantalum was demonstrated as a good candidate for an alternative barrier of SDT devices.

The authors thank F. Montaigne for valuable discussions and M. Alnot, J. Latriche, and C. Tiusan for their technical support. This work was partly supported by the EC–IST program, NanoMEM No. IST-1999-13471.

¹M. Jullière, Phys. Lett. **54A**, 225 (1975).

²J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong, and R. Meservy, Phys. Rev. Lett. **74**, 3273 (1995).

³J. Nowak and J. Rauluszkievicz, J. Magn. Magn. Mater. **109**, 79 (1992).

⁴J. S. Moodera and L. R. Kinder, J. Appl. Phys. **79**, 4724 (1996).

⁵C. L. Platt, B. Dieny, and A. E. Berkowitz, J. Appl. Phys. **81**, 5523 (1997).

⁶J. M. De Teresa, A. Barthélémy, A. Fert, J. P. Contour, R. Lyonnet, F. Montaigne, P. Seneor, and A. Vaurès, Phys. Rev. Lett. **82**, 4288 (1999).

⁷J. P. Chang, M. L. Steigerwald, R. M. Fleming, R. L. Opila, and G. B. Alers, Appl. Phys. Lett. **74**, 3705 (1999).

⁸M. Sharma, S. X. Wang, and J. H. Nickel, Phys. Rev. Lett. **82**, 616 (1999).

⁹M. Hehn, O. Lenoble, D. Lacour, and A. Schuhl, Phys. Rev. B **62**, 11344 (2000).

¹⁰M. Hehn, O. Lenoble, D. Lacour, C. Fèry, M. Piécuch, C. Tiusan, and K. Ounadjela, Phys. Rev. B **61**, 11643 (2000).

¹¹W. F. Brinkman, R. C. Dynes, and J. M. Rowell, J. Appl. Phys. **41**, 1915 (1970).

¹²B. J. Jönsson-Åkerman, R. Escudero, C. Leighton, S. Kim, I. K. Schuller, and D. A. Rabson, Appl. Phys. Lett. **77**, 1870 (2000).

¹³C. H. Shang, J. Nowak, R. Jansen, and J. S. Moodera, Phys. Rev. B **58**, R2917 (1998).

¹⁴J. C. Slonczewski, Phys. Rev. B **39**, 6995 (1989).

¹⁵C. Tiusan, Ph.D. thesis, University of Strasbourg, Strasbourg, France, 2000.

¹⁶K.-H. Gundlach, J. Appl. Phys. **44**, 5006 (1973), and references therein.

¹⁷J. Nassar, Ph.D. thesis, Ecole Polytechnique, Orsay, France, 1999.

Interlayer Magnetic Coupling Interactions of Two Ferromagnetic Layers by Spin Polarized Tunneling

J. Faure-Vincent, C. Tiusan C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, and A. Schuhl

Laboratoire de Physique des Matériaux, BP 239, 54506 Vandoeuvre lès Nancy, France

(Received 6 May 2002; published 20 August 2002)

Magnetic interactions involving ferromagnetic layers separated by an insulating barrier have been studied experimentally on a fully epitaxial hard-soft magnetic tunnel junction: Fe/MgO/Fe/Co. For a barrier thickness below 1 nm, a clear antiferromagnetic interaction is observed. Moreover, when reducing the MgO thickness from 1 to 0.5 nm, the coupling strength increases up to $J = -0.26 \text{ erg}\cdot\text{cm}^{-2}$. This behavior, well fitted by theoretical models, provides an unambiguous signature of the interlayer exchange coupling by spin-polarized quantum tunneling.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.89.107206

PACS numbers: 75.70.-i, 73.40.Rw, 73.43.Jn, 75.30.Et

After the first observation of an antiferromagnetic (AF) interaction of Fe films separated by a Cr spacer [1], the interlayer exchange coupling (IEC) has been subsequently studied with a large variety of metallic spacers [2]. In these systems the oscillation of the coupling strength with spacer thickness has been observed and attributed to the topology of the spacer metal Fermi surface. Theoretically, various models based on either a total energy calculation or models of a Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida-type have been elaborated [2]. Furthermore, a generalization of the IEC theory to nonmetallic (insulating) spacers has been proposed [3–5] by introducing the concept of a complex Fermi surface. However, in the latter case, the IEC, either ferromagnetic or antiferromagnetic, should show a monotonic nonoscillatory variation of its strength with spacer thickness. Experimentally, in the case of nonmetallic spacers, the IEC has been reported for only one system [6,7], namely, a Si based spacer between Fe magnetic layers. In this system for which both a bilinear and a biquadratic coupling are observed [8], the analysis of the contradictory results is rather complex. Moreover, with a semiconductor spacer, the coupling can be related directly to the conduction charge carrier in the Fe-Si spacer layer thermally or optically generated, which may communicate spin information between the Fe layers. Finally, the formation of metallic silicide could explain the observation of oscillatory coupling [9].

In this Letter we provide experimental evidence of room temperature antiferromagnetic coupling between two ferromagnetic (F) layers across a very thin insulating tunnel barrier. Here the spin information and the coupling are carried out across the spacer by equilibrium quantum tunneling of spin-polarized electrons. Our study is performed on the hard-soft magnetic tunnel junction architecture, namely, MgO(100)/Fe/MgO/Fe/Co/V. The materials and the thickness of the layers of our multilayer system were chosen in order to achieve a net AF coupling, as estimated theoretically. The sign of the IEC is a major condition for performing an unambiguous analysis of the

interlayer exchange coupling variation when reducing the spacer thickness. Otherwise, a corresponding strong augmentation of a ferromagnetic coupling would be difficult to decorrelate from the direct coupling effects associated with ferromagnetic pinholes in ultrathin spacers.

Theoretically, several model types have been developed to explain the IEC effects, relating to the charge and spin-current transmission between the ferromagnetic (F) layers across an insulating spacer. In the spin-current Slonczewski's model [3,4], the coupling is derived from the torque produced by rotation of the magnetization from one F layer relative to another and is described in terms of a spin-flip current probability calculated from the stationary wave functions of the free-electron Schrödinger equation. The quantum interference model of Bruno [5], associates the coupling with the interferences of the electron waves in the barrier due to the spin reflections at the interfaces. The coupling is expressed in terms of the spin asymmetry of the reflections. This model extends for both metallic and insulating spacers by introducing the concept of complex Fermi surface in the case of insulators. It predicts the temperature variation of the coupling which reduces to the Slonczewski's spin-current model for $T = 0 \text{ K}$. In addition, we may cite the more sophisticated models implicating the nonequilibrium Keyldysh formalism [10,11] developed to calculate the spin-polarized tunnel current and its connection to the interlayer exchange interaction in thin planar junctions out of equilibrium. They have shown that a nonequilibrium bias across a tunnel junction system may significantly alter the amplitude and the sign of the coupling and that there is a component of the interaction energy between the ferromagnets proportional to their thickness. However, in the absence of external bias, when the ferromagnetic/insulator/ferromagnetic trilayer lies in the equilibrium state, these models reduce again to the equilibrium Slonczewski's spin-current model. Indeed, within the framework of this last model, which has a high physical transparency, the coupling strength J is directly correlated to intrinsic physical parameters of the insulating

barrier (width d , height u) and to the free-electron band structure parameters of the ferromagnetic/insulating/ferromagnetic trilayer system: the Fermi energy E_F , the wave vectors of spin up ($k_{\uparrow}$) and spin down ($k_{\downarrow}$) electrons in the ferromagnets and in the insulating layer (k), the Stoner splitting in the ferromagnets Δ , and the effective mass of the electron m_{Fe} . When a two-band model is used to describe the ferromagnets, the coupling strength is

$$J = \frac{(U - E_F) 8k^3(k^2 - k_{\uparrow}k_{\downarrow})(k_{\uparrow} - k_{\downarrow})^2(k_{\uparrow} + k_{\downarrow})}{8\pi^2 d^2 (k^2 + k_{\uparrow}^2)^2(k^2 + k_{\downarrow}^2)^2} e^{-2kd}. \quad (1)$$

For the estimations of the coupling strength, we use bulk band structure parameters [12] for Fe: $k_{\uparrow} \approx 1.09 \text{ \AA}^{-1}$ and $k_{\downarrow} \approx 0.43 \text{ \AA}^{-1}$ are extracted from $k_{\sigma} = \sqrt{(E_F + \Delta\sigma)2m_{Fe}/\hbar^2}$ (where $\sigma = \pm 1/2$), which correspond to $E_F \approx 2.6 \text{ eV}$ and $\Delta \approx 3.6 \text{ eV}$.

With these values, the IEC coupling is expected to be antiferromagneticlike (AF) when $k^2 < k_{\uparrow}k_{\downarrow} = 0.469 \text{ \AA}^{-2}$. By using a reasonable value for the effective mass of the electron in the barrier, m_i , and an experimental determination [13] of the barrier height $u = U - E_F$, the above equation, and the relation $k = \sqrt{(U - E_F)2m_i/\hbar^2}$, a net AF coupling in the Fe/MgO/Fe system is predicted.

Within the same range of parameters, the temperature variation of the coupling strength estimated using Bruno's model,

$$J(T) = J(0 \text{ K}) \frac{2\pi m k_B T d / \hbar^2 k_F}{\sinh(2\pi m k_B T d / \hbar^2 k_F)}, \quad (2)$$

predicts no significant difference of the coupling strength between $T = 0 \text{ K}$ and the room temperature; k_B is the Boltzmann constant, m is the mass of electron, T is the temperature, and $k_F = ik$ is the complex wave vector of the electron in the insulating layer. Thus, the quantitative analysis of the experimental variation of the coupling strength with t_{MgO} obtained at room temperature, can be achieved within the framework of the interlayer exchange theories [3,5].

The epitaxy of metal/insulator superlattice MgO(100)/Fe in ultrahigh vacuum is very well established [14–16]. By using molecular-beam epitaxy (MBE) a two-dimensional growth mode of MgO on Fe was obtained with high quality ultrathin layers without pinholes and with very flat surfaces. The growth conditions have been detailed in our previous study [17]. Briefly, after annealing the MgO substrate at 500°C for 20 min, first a 50-nm-thick Fe layer is deposited, then annealed at 450°C for 15 min. Then, the thin MgO insulating layer is subsequently deposited by means of an electron gun. We observe a two-dimensional layer-by-layer growth of MgO up to 10 to 15 monolayers asserted by reflection high-energy electron diffraction (RHEED) intensity oscillations and oscillations of the in-

plane lattice parameter [18]. The observation of clear RHEED intensity oscillations (Fig. 1) gives access to a precise determination of t_{MgO} with a low absolute uncertainty, certainly below $\pm 0.05 \text{ nm}$, and even better relative accuracy. The second magnetic electrode is a bilayer composed by a 5-nm-thick Fe layer, epitaxially grown on the top of the MgO barrier magnetically hardened by a 50-nm-thick Co layer deposited on the top of it. The continuity of the insulating MgO layer has been previously checked down to 0.8 nm thickness, at different spatial scales by means of morphological (high resolution transmission electronic microscopy), electrical (the local impedance), magnetoresistance measurements, and down to 0.5 nm in the present work by magnetic measurements. As a similar example, MgO(100)/Fe/MgO/Fe/Co/Pd tunnel junctions have shown tunnel magnetoresistance up to 17% for a 1 nm thick MgO layer [17].

The magnetic properties have been investigated by a superconducting quantum interference device and alternating gradient field magnetometers. Magnetization versus field loops have been performed on continuous multilayer films with lateral sizes above a few millimeters, in order to avoid spurious antiferromagnetic dipolar coupling introduced by patterning of small size devices. In these films, the MgO thickness ranges from 0.4 to 2.5 nm . Because of the epitaxial growth, both soft and hard layers present fourfold symmetries [17], with the same directions for the easy axis. The contrast between their coercive fields is significant: $H_c = 40 \text{ Oe}$ for the soft layer and $H_c > 350 \text{ Oe}$ for the hard layer. This will define in the hysteresis loop a large field window where one of the magnetic layers is magnetically rigid, while the other layer can easily be turned by a small external field. Therefore, the interlayer

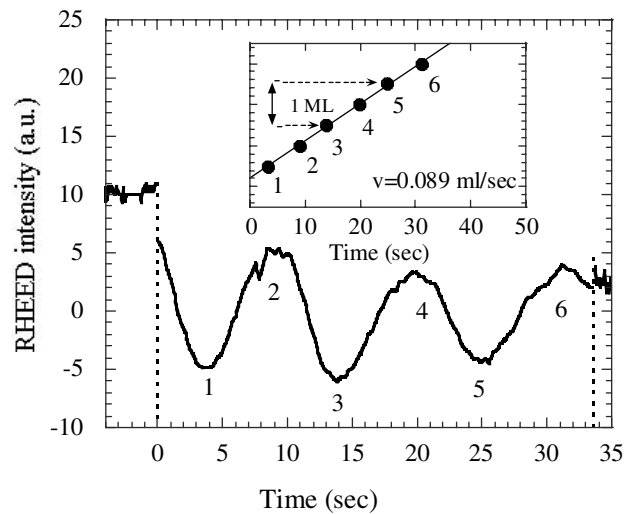


FIG. 1. RHEED intensity during the deposition of 79 nm thick MgO. The period of oscillations corresponds to the growth of 1 monolayer. In order to determine the rate of the growth we plot (inset) the positions of the maxima and minima as a function of time.

magnetic coupling can be extracted from the shift of the minor hysteresis loops, taken for the soft magnetic layer in a field window where the hard layer is magnetically "locked" by a previous magnetization saturation.

For a spacer thickness $t_{\text{MgO}} < 0.8$ nm, we observe clearly (Fig. 2) a net positive shift of the M - H minor loop. Such a shift can be explained by the IEC through the insulating layer, but it could also be attributed to an exchange biasing of the first Fe layer by a possible antiferromagnetic/ferrimagnetic oxide layer at the interface between the bottom Fe layer and the oxide insulating barrier. The exchange bias hypothesis would lead to a coupling mainly independent of the insulating spacer thickness and/or should also be present in samples without the second top hard magnetic layer. However, in our samples we observe a fast dependence of the measured AF coupling strength J with the spacer thickness, as discussed below. The rapid variation of the coupling with the thickness of the spacer is directly illustrated in the inset of Fig. 2, where we can see that by increasing the spacer thickness from 0.5 to 0.63 nm the shift reduces drastically from 58 to 7.5 Oe. Moreover, on simplified samples where we excluded on purpose the hard (top) layer: MgO(100)/Fe/MgO, we observe no shift of the $M(H)$ loops. At least the shift is below the uncertainty of the measurement setup (1 Oe), whereas for the Fe/MgO/Fe/Co multilayer a shift up to 133 Oe, has been obtained for the $t_{\text{MgO}} = 0.5$ nm layer. Consequently, we can exclude the occurrence of the AF biasing. Therefore, the observed field shift of the M - H minor loops can be unambiguously attributed only to interlayer coupling effects.

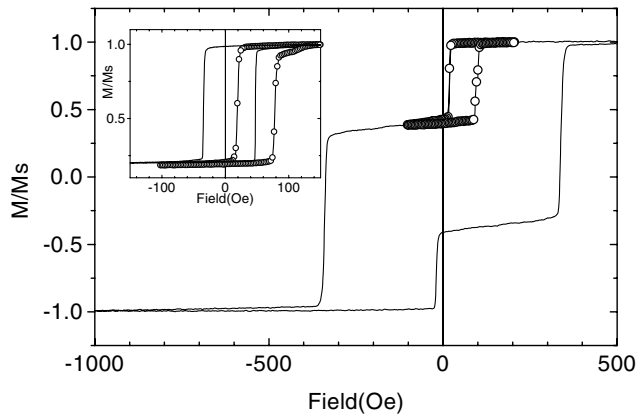


FIG. 2. Magnetization curve along the easy axis for MgO(100)/Fe/MgO(0.5 nm)/Fe/Co. The minor loop (---) is taken after a positive saturation of the whole system, in a field window where the hard Fe/Co bilayer is magnetically rigid. In this sample, the positive shift of 58 Oe in the minor loop is the signature of a strong AF coupling. Inset: The rapid variation of the coupling strength with the thickness of the insulator is reflected by two minor loops, (—) $t_{\text{MgO}} = 0.63$ nm and (---) $t_{\text{MgO}} = 0.5$ nm.

The coupling energies, J , have been extracted from the M - H minor loops for all the samples. J is calculated as the product between the field offset of the minor M - H curves (see Fig. 2) and the magnetization of the soft magnetic layer. Conventionally, we associated the sign of J with the type of the coupling: antiferromagnetic ($J < 0$) and ferromagnetic (F) coupling ($J > 0$). Three regimes can be clearly distinguished: An AF coupling ($J < 0$) is measured for $t_{\text{MgO}} < 0.8$ nm, with a very fast increase of amplitude ($|J|$), when the thickness of the spacer is reduced from $t_{\text{MgO}} = 0.8$ to 0.5 nm (Fig. 3).

Below 0.5 nm, we observe unambiguously a modification of the shape of the magnetization reversal, and a decrease of the apparent coupling strength. Indeed, with such a low interlayer thickness, we expect the occurrence of pinholes, and consequently a direct ferromagnetic coupling competing with the AF exchange coupling studied here. This leads to significant deviations from the pure bilinear coupling interaction and can be simulated by a biquadratic interaction, which could also explain the shape of the magnetic hysteresis loops. For thicker insulating layer, we cannot exclude the occurrence of any pinholes. However, for thicker insulators the measured minor hysteresis loops are square. Therefore, we can reasonably assume that above 0.5 nm the contribution of direct coupling via ferromagnetic pinholes is certainly much smaller than the one of the AF exchange interaction.

On the other hand, for larger spacer thickness, namely, above 1 nm, we observe always a net ferromagnetic coupling. We may easily attribute this F coupling to the well known "Orange Peel" interaction [19], associated with the

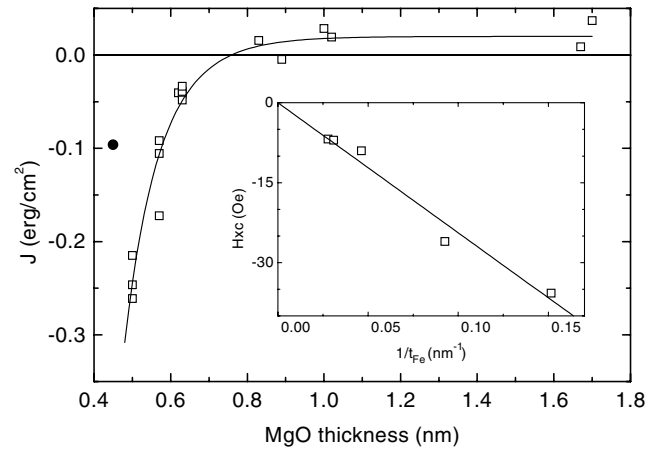


FIG. 3. Variation of the coupling strength J with the insulator thickness. The experimental data are represented by empty square features. Theoretical estimation of J , performed within the framework of the spin-polarized tunneling of Slonczewski, is illustrated by the filled line. For $t_{\text{MgO}} = 0.45$ nm (point represented by a filled circle) the net coupling is still AF, but it is reduced by the ferromagnetic pinholes contribution. Inset: Variation of the exchange field with the thickness of the soft ferromagnetic layer.

correlated roughness of the ferromagnetic/insulator interfaces. Having in view the large fluctuation length of the roughness determined by high resolution transmission electron microscopy in our epitaxially grown layers (> 10 nm), the orange peel coupling is basically constant in the thickness range involved in our study. Moreover, as we already discussed in a previous paper [17], because of the high quality of the two-dimensional growth, this coupling is small, i.e., lower than 0.04 erg/cm^2 .

With a surface interaction, we expect a linear variation (linear increase) of the coupling field with t_{Fe}^{-1} , where t_{Fe} is the thickness of the soft magnetic layer. Experimental results presented in the inset of Fig. 3, and obtained on three different epitaxies with the same spacer thickness $t_{\text{MgO}} = 0.62 \text{ nm}$, are in good agreement with this expectation. In one of the epitaxies, three different Fe thicknesses have been obtained for the same MgO layer, by using shadow masks during the growth of the soft magnetic layer. Therefore, we confirm that the observed shift is due to a surface interaction. Moreover, since the dependence of the AF coupling with t_{MgO} is abrupt as discussed below, the reproducibility, and then the relative determination, of the spacer thickness is very good.

We present also in Fig. 3, the theoretical variation of J with t_{MgO} , estimated from Eq. (1) (Full line). For the calculation we have used first the bulk Fe band structure parameters, ($k_{\uparrow} \simeq 1.09 \text{ \AA}^{-1}$, $k_{\downarrow} \simeq 0.43 \text{ \AA}^{-1}$, and $E_F \simeq 2.6 \text{ eV}$) [12], and, second, reasonable parameters for the insulating barrier: a barrier height of $U - E_F = 1 \text{ eV}$ and an effective mass in the barrier $m_{\text{eff}} = 0.4m_0$. Indeed, through a determination of the prefactor and the exponential decay length in Eq. (1), we could expect an independent determination of $u = U - E_F$ and m_{eff} . However, it would require an even greater "accuracy" in evaluating the insulating layer thickness t_{MgO} . Finally, the orange peel coupling is described in terms of a constant positive "coupling offset" of 0.02 erg/cm^2 , which corresponds to the average value observed for spacer thickness above 1.2 nm , and it also represents a reasonable assumption having in view the roughness fluctuation length in our epitaxial samples. From Fig. 3, we can conclude that the experimental variation of the coupling strength with the insulating spacer thickness is well fitted in the framework of the Slonczewski's spin-current model. Moreover, we obtain an estimation of the relationship between the barrier height and the effective mass in the barrier: namely, $(U - E_F)m_{\text{eff}} = 0.44 \text{ eV}$. Finally, let us note that the experimental data cannot be fitted by a simple exponential law $J \propto e^{-2kd}$. The observation of a faster variation, namely, $J \propto e^{-2kd}/d^2$, is a clear signature of the equilibrium spin-current IEC model.

In summary, antiferromagnetic interlayer coupling through an insulating spacer has been unambiguously evidenced. The shape of the variation of the experimental coupling strength J with the insulating spacer thickness t_{MgO} , the quantitative value of $|J|$, and finally the thickness

range of t_{MgO} for which the antiferromagnetic coupling is observed represent an experimental proof of the interlayer exchange theory [3,5] by the spin-polarized quantum tunneling of electrons between the ferromagnetic layers.

The authors are grateful to G. Marchal and M. Alnot for the ingenious conceiving of the MBE system, S. Andrieu and M. Piecuch for stimulating discussions, Y. Henry for magnetic characterization facilities in IPCMS Strasbourg, and Martin Thornton for the careful reading of the text. This work was supported by the EC NANOMEM Programme (IST-1999-13741), and by the "Conseil Régional de Lorraine."

-
- [1] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M.B. Brodsky, and H. Sowers, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 2442 (1986).
 - [2] A. Fert and P. Bruno, in *Ultrathin Magnetic Structures*, edited by B. Heinrich and J. A. C. Bland (Springer-Verlag, Berlin, 1994), Vol. 2, Chap. 2.2, p. 82.
 - [3] J.C. Slonczewski, *Phys. Rev. B* **39**, 6995 (1989).
 - [4] R.P. Erickson, K.B. Hathaway, and J.R. Cullen, *Phys. Rev. B* **47**, 2626 (1993).
 - [5] P. Bruno, *Phys. Rev. B* **52**, 411 (1995).
 - [6] S. Toscano, B. Briner, H. Hopster, and M. Landolt, *J. Magn. Magn. Mater.* **114**, L6 (1992).
 - [7] E.E. Fullerton, J.E. Mattson, S.R. Lee, C.H. Sowers, Y.Y. Huang, G. Felcher, S.D. Bader, and F.T. Parker, *J. Magn. Magn. Mater.* **117**, L301 (1992).
 - [8] G.J. Strijkers, J.T. Kohlhepp, H.J.M. Swagten, and W.J.M. de Jonge, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 1812 (2000).
 - [9] R.R. Gareev, D.E. Bürgler, M. Buchmeier, D. Olligs, R. Schreiber, and P. Grünberg, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 157202 (2001).
 - [10] C. Heide, R.J. Elliott, and N.S. Wingreen, *Phys. Rev. B* **59**, 4287 (1999).
 - [11] N.F. Schwabe, R.J. Elliott, and N.S. Wingreen, *Phys. Rev. B* **54**, 12953 (1996).
 - [12] V. Moruzzi, *Calculated Electronic Properties of Transition Metal Alloys* (World Scientific, Singapore, 1994).
 - [13] M. Klaua, D. Ullmann, J. Barthel, W. Wulfhekel, J. Kirschner, R. Urban, T.L. Monchesky, A. Enders, J.F. Cochran, and B. Heinrich, *Phys. Rev. B* **64**, 134411 (2001).
 - [14] T. Urano and T. Kanaji, *J. Phys. Soc. Jpn.* **57**, 3403 (1988).
 - [15] J.L. Vassent, M. Dynna, A. Marty, B. Gilles, and G. Patrat, *J. Appl. Phys.* **80**, 5727 (1996).
 - [16] W. Wulfhekel, M. Klaua, D. Ullmann, F. Zavaliche, J. Kirschner, R. Urban, T. Monchesky, and B. Heinrich, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 509 (2001).
 - [17] E. Popova, J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, H. Fischer, E. Snoeck, M. Hehn, F. Montaigne, V. da Costa, M. Alnot, S. Andrieu, and A. Schuhl, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 509 (2002).
 - [18] P. Turban, L. Hennet, and S. Andrieu, *Surf. Sci.* **446**, 241 (2000).
 - [19] L. Néel, *C. R. Acad. Sci.* **255**, 1676 (1962).

Using antiferromagnetic/ferromagnetic bilayers as detection layers in magnetic tunnel junctions

G. Malinowski, M. Hehn, M. Sajieddine, F. Montaigne, E. Jouguelet, F. Canet, M. Alnot, D. Lacour, and A. Schuhl

Laboratoire de Physique des Matériaux, UMR CNRS 7556, BP 239, 54506 Vandoeuvre lès Nancy Cedex, France

(Received 1 April 2003; accepted 2 October 2003)

It is shown that the association of an antiferromagnetic material with a ferromagnetic material in an exchange-coupled bilayer, often used in spintronic devices as a magnetic reference or pinned system, can be used as a detection layer in magnetoresistive sensors. The magnetic response is shown to be reversible and linear in an adjustable field window. The sensitivity is studied as a function of temperature. © 2003 American Institute of Physics. [DOI: 10.1063/1.1630171]

Since its discovery by Meiklejohn and Bean,¹ the exchange bias exerted by an antiferromagnetic (AF) layer on a ferromagnetic (FM) layer in close contact (in an AF/FM bilayer), is the focus of many theoretical and experimental studies.² Even if a full theoretical description of the phenomena has not yet emerged, it has been used from the applied point of view especially to “pin” the magnetization of reference layer in spintronic devices. In the following, we aim to show that AF/FM bilayers are also good candidates to design original sensing layers to get a linear variation of resistance with applied field in spin valves [giant magnetoresistance (GMR) structures], magnetic tunnel junctions [tunneling magnetoresistance (TMR) structures] and more sophisticated “spin electronic” devices.

As regards magnetic field sensing, linearity and reversibility of the analogical signal are key issues to make reliable sensors. Therefore, in the case of GMR and TMR, a crossed magnetizations pattern has been proposed^{3,4} and used in this study. The hard reference layer magnetization, m_h , is oriented and locked by its magnetic anisotropy, $K_{F,h}$, along the field sensitive direction, H , while the sensing layer is constructed to have its magnetization, m_s , perpendicular to m_h (Fig. 1). Then, linearity and reversibility are given by the response of m_s with respect to H . This requires a coherent rotation of the magnetization under an external magnetic field. Up to now, this has been done using (i) a bias field generated by a specific circuit,⁵ (ii) the shape anisotropy induced by a step bunched substrate,⁴ or (iii) the shape anisotropy induced in the sensing layer by microtechnological steps.⁶ These suggested solutions have their specific defaults: power consumption for (i), limited integration on Si chips for (ii), and need of small sensing elements and/or sensing element on the top of the multilayer stack for (iii).

Those problems can be circumvented by the use of an AF/FM bilayer if the anisotropy axis, K_{AF} , of the AF layer is built up perpendicular to $K_{F,h}$ (Fig. 1). This is easily done with a suitable thermal annealing. Considering the FM layer in a single domain state, the energy of the FM moment per surface unit with the applied field perpendicular to K_{AF} is given in a simple model by

$$E = -M_s t_F H \sin(\Phi) - J \cos(\Phi) + K_{F,s} t_F \sin^2(\Phi), \quad (1)$$

where $K_{F,s}$, M_s , and t_F are, respectively, the anisotropy axis, the saturation magnetization, and thickness of the FM layer and J is the surface exchange coupling between the FM and AF layers. The angular position of the FM moment in an applied field proceeds from the energy minimization. In order to get an analytic solution, the anisotropy of the FM layer has been neglected. Then, the component of FM magnetization along the applied field, $m_{||}$, is given by

$$m_{||} = \sin(\Phi) = \cos(\Theta) = \sin \left[\arctg \left(\frac{M_s t_F}{J} H \right) \right]. \quad (2)$$

Finally, the resistance, $R(H)$, of a tunnel junction or spin valve with the geometry depicted in Fig. 1 is given by

$$R(H) = \frac{R_P + R_{AP}}{2} + \frac{R_P - R_{AP}}{2} \sin \left[\arctg \left(\frac{H}{H_{ex}} \right) \right], \quad (3)$$

where R_P and R_{AP} are the junction or spin valve resistances for parallel and antiparallel alignments of m_s and m_h , respectively, and $H_{ex} = J/(M_s t_F)$ is the so-called exchange field. Then, for a fixed *electric sensitivity* given by $(R_P - R_{AP})/2$ and tunable by the choice of junction or spin valve multilayer materials, the low field *magnetic sensitivity* of the sensor is given by $1/H_{ex}$.

The results of Eqs. (2) and (3) were checked experimentally with multilayers deposited onto float-glass substrates by sputtering Ir₂₀Mn₈₀ (IrMn), Fe₂₀Ni₈₀ (Py), Co, and Ta targets

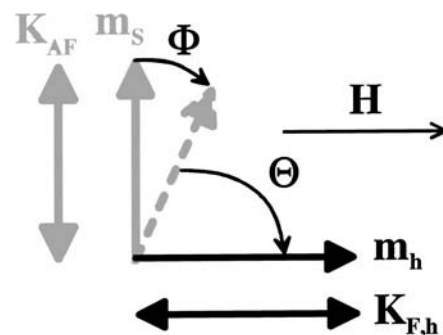


FIG. 1. Schema showing the relative orientations of the anisotropy axes of (i) the AF layer (K_{AF}) in contact with the magnetic sensing layer with magnetic moment m_s , (ii) the FM layer ($K_{F,h}$) with magnetic moment m_h . At zero applied field H , m_s is along K_{AF} and m_h along $K_{F,h}$. When the applied field along $K_{F,h}$ increases, m_s rotates towards H .

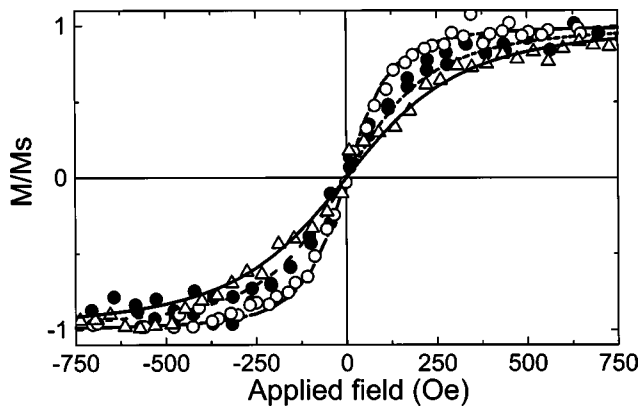


FIG. 2. Kerr rotation hysteresis loop measured in the longitudinal geometry with an applied field perpendicular to K_{AF} on glass/Ta (5 nm)/Py (x nm)/IrMn (10 nm)/Ta (5 nm) multilayers: $x=10$ nm (○), $x=5$ nm (●), and $x=3.7$ nm (△). Lines correspond to calculations made using Eq. (2) without any adjustable parameter.

mounted on magnetron cathodes. Each multilayer is deposited at an operating Ar pressure fixed to 5×10^{-3} mbar and the substrates are maintained at room temperature. After growth, samples were annealed during 30 min at 200 °C with a 300 Oe in plane applied magnetic field in order to setup the IrMn exchange biasing. The structure and the microstructure of all these multilayer stacks were checked in a previous study⁷ and it has been shown that IrMn, and Py or Co are highly crystallized with the (111) planes parallel to the surface. For IrMn thicknesses above 5 nm, exchange occurs and the surface exchange coupling energies have been computed from the shift of the FM layer hysteresis loop, H_{ex} , when H was applied along K_{AF} .

In a first step, Kerr rotation hysteresis loop measured in the longitudinal geometry with an applied field perpendicular to K_{AF} on glass/Ta (5 nm)/Py (x nm)/IrMn (10 nm)/Ta (5 nm) multilayers are reported in Fig. 2. Independently on x , it appears that the curves are fully reversible in the entire measure field range. Furthermore, in a more restricted field window, the response is linear. Calculations made using Eq. (2) and values of J measured on the same samples from Ref. 7 could accurately reproduce the experimental measurements without any adjustable parameter.⁸ Those results assert that AF/FM bilayers can be used as detection layers and that the magnetic sensitivity for a given material can be changed by modifying J or t_F as shown theoretically with Eq. (2) and experimentally with Fig. 2 (in this last case, only t_F was modified). The AF/FM bilayer can *a priori* be placed under or over the tunnel barrier but it has been shown that in this last configuration,⁹ the blocking temperature of the AF layer is reduced due to a loss of texture over the tunnel barrier, inducing then a reduction of the sensor working temperature window. Therefore, the AF/FM bilayer has been included in the bottom electrode.

In order to promote texture, the AF/FM bilayer has been grown on glass substrate on top of a Ta (5 nm)/Py (10 nm) buffer layer. The magnetic sensitivity as a function of temperature of a IrMn (7.5 nm)/Py (5 nm) bilayer has been checked by anisotropic magnetoresistance (AMR) measurements on a glass/Ta (5 nm)/Py (10 nm)/IrMn (7.5 nm)/Py (5 nm)/Ta (5 nm) sample. The measurement geometry has been well established using lithography and ion beam etching. The

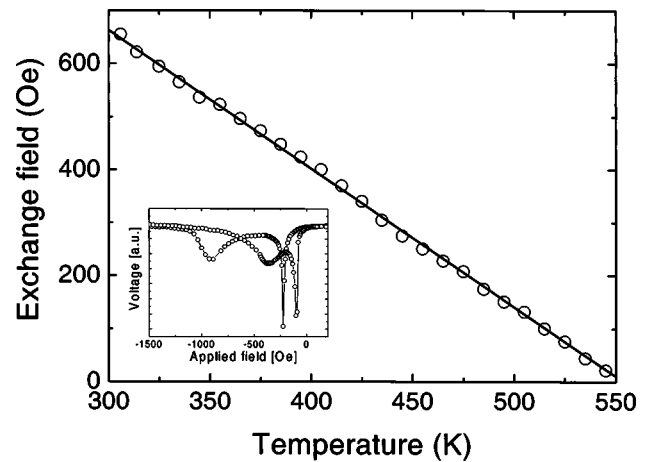


FIG. 3. Exchange field H_{ex} evaluated as a function of temperature for the IrMn (7.5 nm)/Py (5 nm) interface in a glass/Ta (5 nm)/Py (10 nm)/IrMn (7.5 nm)/Py (5 nm)/Ta (5 nm) sample. Inset: an AMR measurement made at 310 K where peaks correspond to the reversal of both Py layers.

current flows parallel to the exchange field direction which in turn is parallel to the applied field. From the AMR peaks corresponding to the reversal of both Py layers, the evolution of H_{ex} with temperature at the IrMn (7.5 nm)/Py (5 nm) interface could be measured and is reported in Fig. 3. As expected from previous studies,² H_{ex} has a linear decrease with temperature. So, as temperature increases, the magnetic sensitivity of the sensor increases but the measurement field range decreases. Indeed, saturation occurs at lower applied fields. More important, since H_{ex} varies linearly with temperature, the variation of magnetic sensitivity with temperature can easily be corrected with an appropriate electronic treatment of the sensor output.

Finally as a proof of concept, the AF/FM bilayer has been integrated in a magnetic tunnel junction made from a glass/Ta (5 nm)/Co (10 nm)/IrMn (10 nm)/Co (10 nm)/Al₂O₃ (1.5 nm)/Co (20 nm)/Pt (5 nm) multilayer stack. Here, the sensing layer is the IrMn (10 nm)/Co (10 nm) bilayer with Co in contact with the tunnel barrier. A simple Co (20 nm)/Pt (5 nm) reference layer has been used even if its low $K_{F,h}$ does not promote its magnetization stability against high fields. This point has to be addressed in a next step to make a high field sensor. The central point here is to prove the concept of AF/FM field sensing bilayer. The annealing procedure was made such to orient K_{AF} of the IrMn layer perpendicular to $K_{F,h}$ of the Co (20 nm)/Pt (5 nm) layer (Fig. 1). A four step process of lithography, ion beam etching, insulator, and metal deposition has been used to shape the multilayer stack into a tunnel junction for current perpendicular to film plane measurements. The resistance of the tunnel junction has been measured with the field applied parallel to $K_{F,h}$ (Fig. 4, -○-).

As expected from Fig. 2, the variation of resistance is linear and reversible for applied fields smaller than the coercive field of the Co (20 nm) layer (60 Oe in this case). This definitely asserts that AF/FM bilayers can be used as detection layers in spin valves or magnetic tunnel junctions to make magnetic field intensity sensors. The experimental curve of Fig. 4 could be simulated (heavy line) using Eq. (3) and parameters extracted from previous studies, Ref. 7. In this proof of concept, a total sensitivity, including magnetic

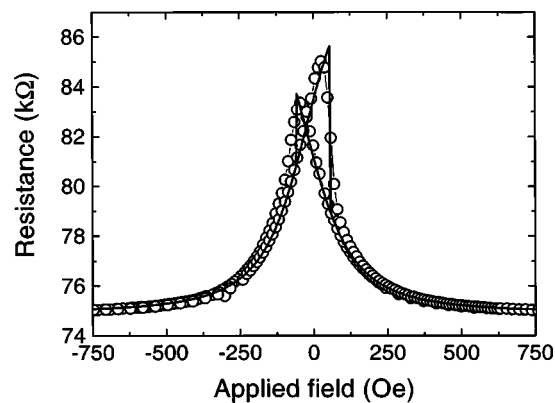


FIG. 4. Resistance of a magnetic tunnel junction made from a glass/Ta (5 nm)/Co (10 nm)/IrMn (10 nm)/Co (10 nm)/Al₂O₃ (1.5 nm)/Co (20 nm)/Pt (5 nm) multilayer stack (○-○). The field is applied parallel to $K_{F,h}$ and applied voltage equals 10 mV. The curve could be simulated (heavy line) using Eq. (3) with $J=0.23 \text{ erg cm}^{-2}$, $M_S=1420 \text{ emu cm}^{-3}$, $t_F=10 \text{ nm}$, $R_{AP}=89\,750 \text{ } \Omega$, $R_P=74\,900 \text{ } \Omega$. Those parameters have been extracted from previous studies (Ref. 7). Furthermore, $K_{F,h}=4 \times 10^4 \text{ erg cm}^{-3}$ and a bias field of -25 Oe have to be introduced in Eq. (3).

and electric sensitivity, of around $5 \times 10^5 \text{ V/TA}$ could be achieved. However, a bias field of -25 Oe has to be introduced in Eq. (3) in order to account for the field asymmetry. The origin of this bias field is at present under study.

In this letter, we give theoretical and experimental proofs that the association of an antiferromagnetic material with a ferromagnetic material in a bilayer can be used as a detection

layer in magnetic tunnel junctions in order to generate a highly linear and reversible analogical signal. It is shown that the sensitivity of the sensor can be tuned by changing the FM material parameters and its linear variation with temperature can be easily compensated. AF/FM bilayers appear then as alternative sensing layers to commonly used technological solutions.

The authors thank P. Panissod for valuable discussions and S. Robert for help with the experiments. This work is partially supported by “La Région Lorraine” and by “SNR Roulements.”

- ¹W. H. Meiklejohn and C. P. Bean, Phys. Rev. **102**, 1413 (1956); **105**, 904 (1957).
- ²J. Nogues and I. K. Schuller, J. Magn. Magn. Mater. **192**, 203 (1999); A. E. Berkowitz, K. Takano, J. Magn. Magn. Mater. **200**, 552 (1999); R. L. Stamps, J. Phys. D **33**, R247 (2000).
- ³J. Daughton, J. Brown, E. Chen, R. Beech, A. Phom, and K. Kude, IEEE Trans. Magn. **30**, 4608 (1994); F. B. Mancoff, J. H. Dunn, B. M. Clemens, and R. L. White, Appl. Phys. Lett. **77**, 1879 (2000).
- ⁴D. Lacour, H. Jaffrès, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, A. Vaurès, and J. Humbert, J. Appl. Phys. **91**, 4655 (2002).
- ⁵M. Tondra, J. Daughton, C. Nordman, D. Wang, and J. Taylor, J. Appl. Phys. **87**, 4679 (2000).
- ⁶Y. Lu, R. A. Altman, S. A. Rishton, P. L. Trouilloud, G. Xiao, W. J. Gallagher, and S. S. P. Parkin, Appl. Phys. Lett. **70**, 2610 (1997).
- ⁷G. Malinowski, M. Hehn, S. Robert, O. Lenoble, A. Schuhl, and P. Panissod, Phys. Rev. B (to be published).
- ⁸The same results have been obtained replacing the Py by a Co layer.
- ⁹D. Lacour, Ph.D. thesis, Université Paris Sud, Orsay, 2002.

Tunnel barrier parameters and magnetoresistance in the parabolic band model

F. Montaigne, M. Hehn, and A. Schuhl

Laboratoire de Physique des Matériaux, UMR CNRS 7556, BP 239, 54506 Vandœuvre lès Nancy Cedex, France

(Received 3 April 2001; published 29 August 2001)

Tunnel magnetoresistance (MR) is studied in the framework of the parabolic band model. Coherent transport and electronic wave function interferences in the barrier are shown to play an important role even for a single barrier. The influence of the barrier parameters on magnetoresistance and on its bias dependence is compared with success to experiments. The shape of the barrier is then considered as it can account for asymmetries observed in MR(V) curves. Finally, despite its simplicity, this model predicts qualitatively the complex MR(V) observed in composite barriers.

DOI: 10.1103/PhysRevB.64.144402

PACS number(s): 73.40.Gk, 73.40.Rw, 75.70.-i

Magnetoresistive tunnel junctions (MTJ) have been intensively studied in the past few years.¹ Beside the large application field of MTJ in magnetic memories, magnetic read heads or sensors and the related technological challenges, the spin-dependent tunneling effect is intrinsically a sensible probe of various physics phenomena like magnetic configurations² or interface hybridizations.³ The tunnel magnetoresistance (TMR) has been related to the spin polarization of both electrodes in the simple Jullière model.⁴ This model is the simplest expression of the more-general transfer Hamiltonian method that basically predicts tunnel currents proportional to the density of states at the electrode/barrier interfaces. This approach has been very successful to describe tunneling in superconductor tunnel junctions,⁵ but since each electrode is considered as independent, it cannot deal simply with coherent effect like quantum wells or resonant tunneling. Nevertheless, many features appearing in the magnetoresistance and in its bias dependence have been directly linked to the spin-polarized electrode band structure.^{3,6} At opposite, the free-electron-like model considers the wavefunction of electrons in the whole structure with parabolic bands. This approach has been particularly successful to describe semiconductor heterostructures like quantum wells or resonant tunneling diodes.⁷ Even if this simple band structure does not describe accurately the band structures of transition metals, this approach is well suited to study coherent effects in the tunnel current.

In this paper, we show that experimental data can be qualitatively depicted in the parabolic band-model framework using an accurate expression of the tunnel current and realistic barrier parameters. Indeed, taken into account the reduction of the effective electron mass inside the barrier, the shape of the barrier and also the tunneling of electrons with nonzero wave-vector component parallel to the tunnel barrier allow to describe the complex MR(V) experimentally observed in nonsquare or composite barriers even with a simple band structure. Those curves were up to now explained invoking exclusively the complex density of state of the electrode rather than the parameters of the tunnel barrier.

As we focus here on the influence of the barrier parameters on the properties of MTJ, the simplest band structure for the different materials, i.e., parabolic bands (free-electron-like) has been used. Furthermore, we consider parallel and antiparallel alignment of the electrode magnetiza-

tions and two-independent spin channels, with different band parameters for the ferromagnetic electrodes. Thus, following Tsu and Esaki,⁷ the tunnel current for a spin direction can be written as:

$$J = \frac{2\pi e}{h^3} m_1 \int \int D(E_z, E_{\parallel}) (f_1 - f_3) dE_z dE_{\parallel}, \quad (1)$$

where E_z (respectively $E_{\parallel}$) is the electron energy perpendicular (respectively parallel) to the tunnel barrier, m_1 is the electron effective mass in the emitter electrode, D is the transmission coefficient of the whole structure, deduced from the wave functions in the barrier and the electrodes, solutions of the Schrödinger equation,⁸ f_1 and f_3 are the Fermi distributions respectively in the emitter and the collector electrodes. Since most of the temperature variation of tunnel junctions characteristics at low voltages are due to the activation of inelastic modes of conduction,^{9,10} we restrict ourselves to the zero-temperature limit where expression (1) reduces to:

$$J = \frac{2\pi e}{h^3} m_1 \left(\int_0^{E_F - eV} \int_{E_F - eV - E_z}^{E_F - E_z} D(E_z, E_{\parallel}) dE_{\parallel} dE_z + \int_{E_F - eV}^{E_F} \int_0^{E_F - E_z} D(E_z, E_{\parallel}) dE_{\parallel} dE_z \right), \quad (2)$$

where E_F is the Fermi level and V the voltage applied to the collector electrode. From expression (2), it appears that the tunnel current does not depend explicitly on the density of states in the electrodes but rather on the matching of the electrodes wave functions through the barrier via the transmission coefficient D . As been stressed by Liu and Guo,⁸ a rigorous free-electron model has to “take into account the transverse (in-plane) motion of the electrons.” Indeed, refraction of the electron at the barrier interface, due to the difference of effective mass between the metal and the insulator, allows the tunneling of additional electrons. Therefore, D cannot be simply integrated over E_z but a two-dimensional integration over $E_{\parallel}$ and E_z has to be done. This double integration is of primary importance when calculating the current through arbitrary shaped tunnel barriers as it is in the present work. In fact, in complex structures and in comparison with conventional square barriers, a nonmonotonous

evolution of D with E_z appears for lower value of E_z . This implies high-tunneling transmission of electrons with $E_{\parallel} \neq 0$. The transmission coefficient is thus integrated numerically over $E_{\parallel}$ and E_z for each spin direction to get the total tunnel current.

Concerning the electrodes parameters, it has been shown that the tunneling current is dominated by a single free-electron-like d band in transition metals.¹¹ To model the bands of Iron, for example, parameters proposed by Stearns¹² based on Fermi surface measurements and assuming a free-electron mass are often used. Recently, Davies and MacLaren¹³ proposed for the same material other parameters fitted from first-principle band calculations [Fermi level of 2.25 eV (0.35 eV) and effective mass of $1.27 m_e$ ($1.36 m_e$) for spin up (down) band]. We will use those parameters in the following but the results presented here are essentially linked to barrier properties and do not depend much on the band structure of the electrodes. Realistic barrier parameters used in our calculations have been deduced from measurements thanks to Simmons¹⁴ fits for example. Despite it is based on the WKB approximation and thus do not describe the tunnel magnetoresistance,¹⁵ and on a constant electron mass equal to the free-electron mass in all the structure, this model provides convenient widely used analytical expressions of the tunnel current. It can be shown that fitting the $I(V)$ curves leads to an independent and good evaluation of the barrier height but does not allow the independent determination of the barrier thickness and effective mass. The latter can be measured using the variation of resistance with barrier thickness. The few-studies published^{16,17} indicate a much-lower thickness dependence than predicted using the free-electron mass. It seems thus important to consider this reduced effective electron mass in the barrier. In the following, the electron mass in the barrier was taken equal to $0.4 m_e$, the estimated value computed for crystalline alumina and in the range of values measured for SiO_2 .

This rigorous free-electron model was applied to compute the tunnel-junction current/voltage characteristics for parallel and antiparallel alignment of the electrode magnetizations as a function of barrier height and thickness. So, TMR and $V_{1/2}$, the voltage at which the magnetoresistance is divided by a factor of 2, can readily be extracted. The Fig. 1(a) represents the magnetoresistance as a function of barrier height and thickness. In the limit of null-barrier height, the situation is somehow comparable to ballistic magnetoresistance with two magnetic electrodes separated by a nonmagnetic spacer. In the limit of null-barrier thickness, very high TMR are predicted and are related to those measured in ferromagnetic ballistic nanocontacts. Outside those limits, the TMR generally increases with the barrier height and decreases with barrier thickness as observed experimentally.^{18,19} Furthermore, for realistic junction parameters, TMR decreases with the increase of the effective mass in the barrier. The predicted value of 50% for a 1 nm thick and a 3-eV high alumina barrier is in the order of reported values in the literature. In agreement with Lu *et al.*²⁰ who have experimentally shown that $V_{1/2}$ is almost independent on the electrode materials, barrier height, thick-

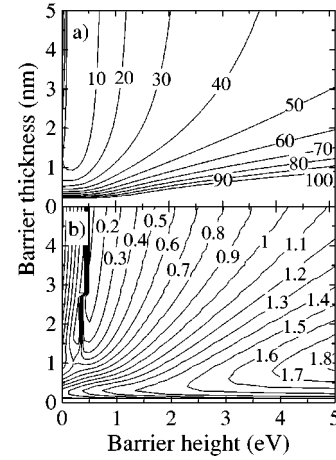


FIG. 1. (a) Magnetoresistance and (b) $V_{1/2}$ as a function of the barrier height and thickness. The effective mass in the barrier is taken equal to $0.4 m_e$. Magnetoresistances above 100% are not represented.

ness, and effective mass seem to be the main parameters governing the value of $V_{1/2}$. As it was pointed out by the experiments¹⁹ and verified with our calculations, the increase of $V_{1/2}$ with the decrease of barrier thickness or increase of barrier height appears also as an intrinsic properties. $V_{1/2}$ is drastically increased by the reduction of the effective mass and the calculated values for $m_2 = 0.4 m_e$ are superior to the experimental values [Fig. 1(b)]. Nevertheless, we only consider here coherent elastic transport but it is also well known that voltage-excited magnons are a source of spin flip and contribute to the reduction of $V_{1/2}$.⁹ This also explains the discrepancy between experimental and calculated MR(V) curves at low voltages (Fig. 2).

The decrease of the magnetoresistance with the applied voltage is almost independent of the parameters of the electrode-parabolic band structure. For applied voltages above the barrier height, oscillations of magnetoresistance are predicted and are not much affected by the band structures of the electrodes (from Stearns¹² or Davies and MacLaren¹³). In contrast, their period decreases for increased thickness or effective mass m_2 of the barrier but increases

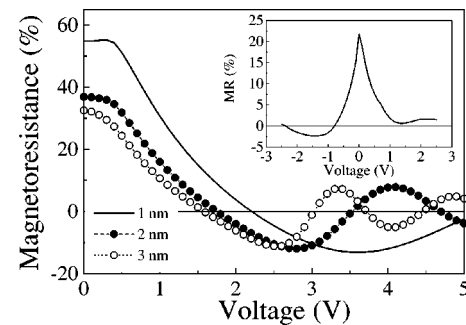


FIG. 2. Variation of magnetoresistance with applied voltage for a 1 nm (—), 2 nm (—●—), and 3-nm (—○—) thick tunnel barrier. In those calculations, $m_2 = 0.4 m_e$ and the barrier height is equal to 2 eV. Inset: experimental data of magnetoresistance with applied voltage from Ref. 21 for a $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ junction.

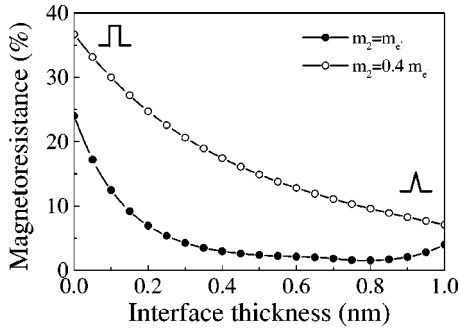


FIG. 3. Variation of magnetoresistance with interface thickness for $m_2 = 0.4 m_e$ ($-\circ-$) and $m_2 = m_e$ ($-\bullet-$).

with the barrier height. The oscillations of magnetoresistance observed experimentally (inset of Fig. 2) can thus be interpreted in term of interferences of the wave functions in the conduction band of the insulator. This effect is totally similar to the conductance oscillations observed in the Fowler-Nordheim regime. Negative TMR for applied voltage equal or above the barrier height appears as a “standard” effect but like every coherent effect, these oscillations can be affected or suppressed by the scattering. In conclusion, the parabolic band model reproduces qualitatively the experimental measurements made on MTJ.

Recently, Zhang and Levy¹⁵ raised a restriction to this model: “the sensitivity of the magnetoresistance to the details of the profile of the potential barrier between the metallic electrodes and the insulating barrier.” Our calculations have thus been extended to MTJ with an imperfect interface between the metal and the insulator. We chose trapezoidal barriers for which the potential varies linearly in an interface region between the metal and the square barrier (Fig. 3). As predicted by Zhang and Levy, the magnetoresistance is strongly suppressed by an interfacial region when considering a free-electron mass in the barrier. But for a reduced electron-effective mass, the sensitivity is decreased and high TMR can be achieved even for mixed interfaces. Then a more abrupt interface sharpness, compatible with a more-uniform oxygen concentration in the barrier after temperature annealing, is at the origin of a TMR increase by a factor of 2 as showed by Sousa *et al.*¹⁸

This analysis can be further extended to barriers with two different interface sharpness. Figure 4 represents $MR(V)$ curves for a square ($-$), a symmetric trapezoidal ($-\circ-$), and a nonsymmetric with one abrupt interface ($-\bullet-$) barriers. Voltage dependence of the magnetoresistance is enhanced for the trapezoidal barrier and is highly asymmetric for the asymmetric interfaces. In this last case, for a positive-applied voltage, i.e., electrons collected in the electrode with the nonabrupt interface, the voltage dependence is similar to the one computed for the symmetric trapezoidal barrier. Inversely, for negative voltage, it is similar to the square barrier. Finally, the voltage dependence of the MR is strongly ruled by the interface collecting the transmitted electrons. This fact is illustrated in the inset of Fig. 4 for different Ta-oxide barriers obtained from the oxidation of a deposited Ta layer [data from Ref. 19, and same effects are observed for alumina barriers²¹]. While the sharpness of the Ta-layer

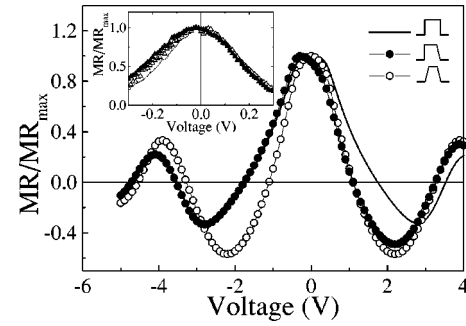


FIG. 4. Variation of magnetoresistance normalized to its maximum value with applied voltage and different barrier shapes : two ($-$), one ($-\bullet-$), and zero ($-\circ-$) sharp interface(s). In those calculations, $m_2 = 0.4 m_e$, the total barrier thickness is 2 nm and the thickness of the interfaces is 0.2 nm. Inset: experimental data of magnetoresistance normalized to its maximum value with applied voltage from Ref. 19 for a Co/TaOx/Co junction.

interface exposed to the oxygen plasma remains unchanged, the one of the buried interface depends on the oxidation conditions and Ta-layer thickness.

The diversity of insulators used recently to make MTJ opens the way towards composite barriers made using two insulators with different barrier heights. In Fig. 5, the voltage dependence of the TMR is represented for a composite barrier formed by 1 nm of low-barrier height insulator (0.3 eV) and 1 nm of high-barrier height insulator (2 eV). The striking feature is the inversion of TMR at low voltages and the important negative TMR. It has been indeed observed experimentally by Sharma *et al.* in Al_2O_3/Ta_2O_5 composite barriers⁶ and has been attributed to the electrode band structure. The voltage dependence of the effect can be reproduced considering a lower-barrier height for Ta oxide than for Al_2O_3 (Fig. 5) as already measured.¹⁹ The $I(V)$ characteristics (not represented) of such structures present important asymmetries that can reach a factor of 10 in the current for voltages of about 1 V. The current asymmetry increases with the thickness of the low-barrier height. This asymmetry predicted for this type of barrier is very promising for magnetic random access memory applications.

To conclude, we showed in this paper that despite its sim-

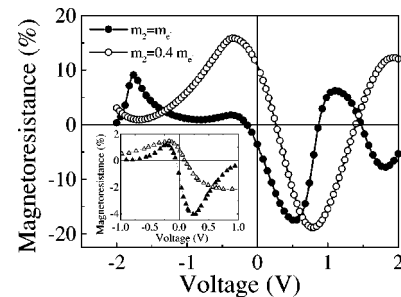


FIG. 5. Variation of magnetoresistance with applied voltage with $m_2 = 0.4 m_e$ ($-\circ-$) and $m_2 = m_e$ ($-\bullet-$) for a composite barrier formed by a 1-nm thick low-barrier height insulator (0.3 eV) and a 1-nm thick high-barrier height insulator (2 eV). Inset: experimental data of magnetoresistance with applied voltage for a composite Al_2O_3/Ta_2O_5 barrier from Ref. 6.

plicity, a free-electron-like model reproduces well main features of magnetic tunnel junctions characteristics. Particularly, it reflects qualitatively the $I(V)$ characteristics, the decrease of the magnetoresistance with the voltage, the oscillations of magnetoresistance at high voltages, the important effect of a nonuniform barrier and the influence of the interfaces. This simple model cannot render all the complexity of magnetic-tunnel junctions related to complex band structures, nonideal interfaces and thus nonconservation of $k_{\parallel}$, elastic and inelastic scattering. But this approach considering the whole structure and the interferences of the electron

wave function leads to complex behavior of the magnetoresistance as a function of the voltage with negative and positive magnetoresistance even for simple parabolic bands. It thus may be important to consider these effects before ascribe directly $MR(V)$ curves to the density of states of electrodes, especially for composite barriers with different barrier heights.

The authors thank P. Rottländer and C. Tiusan for valuable discussions. This work was partly supported by the EC - IST program "NanoMEM" No. IST-1999-13471.

-
- ¹J.S. Moodera, L.R. Kinder, T.M. Wong, and R. Meservey, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3273 (1995).
²M. Hehn, O. Lenoble, D. Lacour, C. Féry, M. Piécuch, C. Tiusan, and K. Ounadjela, *Phys. Rev. B* **61**, 11 643 (2000).
³J.M. De Teresa, A. Barthélémy, A. Fert, J.P. Contour, R. Lyonnet, F. Montaigne, P. Seneor, and A. Vaures, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4288 (1999).
⁴M. Jullière, *Phys. Lett.* **54A**, 225 (1975).
⁵I. Giaver, *Phys. Rev. Lett.* **5**, 464 (1960).
⁶M. Sharma, S.X. Wang, and J.H. Nickel, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 616 (1999).
⁷R. Tsu and L. Esaki, *Appl. Phys. Lett.* **22**, 562 (1973).
⁸S.S. Liu and G.Y. Guo, *J. Magn. Magn. Mater.* **209**, 135 (2000).
⁹S. Zhang, P.M. Levy, A.C. Marley, and S.S.P. Parkin, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3744 (1997).
¹⁰C.H. Shang, J. Nowak, R. Jansen, and J.S. Moodera, *Phys. Rev. B* **58**, R2917 (1998).
¹¹W.H. Butler, X.-G. Zhang, T.C. Schulthess, D.M.C. Nicholson, A.B. Oparin, and J.M. MacLaren, *J. Appl. Phys.* **85**, 5834 (1999).
¹²M.B. Stearns, *J. Magn. Magn. Mater.* **5**, 167 (1977).
¹³A.H. Davies and J.M. MacLaren, *J. Appl. Phys.* **87**, 5224 (2000).
¹⁴J.G. Simmons, *J. Appl. Phys.* **34**, 1793 (1963).
¹⁵S. Zhang and P.M. Levy, *Eur. Phys. J. B* **10**, 599 (1999).
¹⁶M. Covington, J. Nowak, and D. Song, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3965 (2000).
¹⁷H. Boeve, J. de Boeck, and G. Borghs, *J. Appl. Phys.* **89**, 482 (2001).
¹⁸R.C. Sousa, J.J. Sun, V. Soares, P.P. Freitas, A. Kling, M.F. da Silva, and J.C. Soares, *J. Appl. Phys.* **85**, 5258 (1999).
¹⁹P. Rottländer, M. Hehn, O. Lenoble, and A. Schuhl, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3274 (2001).
²⁰Y. Lu, X.W. Li, Gang Xiao, R.A. Altman, W.J. Gallagher, A. Marley, K. Roche, and S. Parkin, *J. Appl. Phys.* **83**, 6515 (1998).
²¹F. Montaigne, Ph.D. thesis, Université de Paris-VII, 1999.

Hot-electron three-terminal devices based on magnetic tunnel junction stacks

M. Hehn, F. Montaigne, and A. Schuhl

Laboratoire de Physique des Matériaux, UMR CNRS 7556, BP 239, 54506 Vandœuvre lès Nancy Cedex, France

(Received 22 October 2001; revised manuscript received 14 January 2002; published 21 October 2002)

Magnetic-configuration-dependent electrical characteristics of magnetic-tunnel-junction-based three-terminal devices have been computed in the framework of the parabolic band model. Besides their fundamental interest in measuring the properties of nonequilibrium spin-dependent hot-electron transport, three-terminal devices appear to be good candidates for a new generation of magnetic-field-dependent devices. The control of the hot-electron transmission in a double-tunnel junction is a keystone to ensure asymmetric diodes or hot-electron magnetic-field-dependent transistors. Based on a basic description of electron scattering and noncoherent transport in the structure but using electronic parameters extracted from experiments, we assess the functionalities of those devices.

DOI: 10.1103/PhysRevB.66.144411

PACS number(s): 73.40.Gk, 73.40.Rw, 72.25.Mk

I. INTRODUCTION

The discovery of a tunnel magnetoresistance (TMR) effect at room temperature in oxide-barrier-based magnetic tunnel junctions¹ (MTJ's) paved the way to intense developments of this field area with many possible application prospects.² Those numerous studies devoted to different aspects of this topic permit getting a better understanding of the fundamentals of spin-polarized tunneling transport. From the experimental point of view, a large effort was paid to optimize the growth of thin insulating materials³ and to study magnetization reversal processes, domain formation, and their implications to the TMR signal.^{4,5} From the theoretical point of view, the magnetotransport properties were modeled using a transfer Hamiltonian,⁶ free-electron-like models,⁷ or more sophisticated band structure calculations.⁸ Much of the attention was then paid to the study of single-tunnel-barrier structures and the quality of the grown materials allows us now to pass a further step.

Indeed, as was previously remarked by Mead⁹ in the early 1960s, *a new class of devices employing the principle of electron tunnel emission from a metal-insulator-metal diode where the second metal layer is thin can be built. A triode geometry can then be secured by the addition of a second insulator and a metal collector layer.* The proposed structure is not less than a double-tunnel-barrier junction. Up to now, few studies have been devoted to the development of such structures.¹⁰ A transistor effect has been shown in the particular case of an epitaxial $M/I/M/I/M$ structure where I is CaF_2 and M is CoSi_2 (Ref. 11) (analog effects are observed in similar semiconductor structures¹²). However, the need of epitaxy and the lack of magnetism limit the couple of M/I which can be used and no spin-dependent transport can occur. Recently, new experimental achievements have emerged with the development of the hot-electron spin-valve transistor¹³ or the magnetotunneling injection device.¹⁴ In both systems, spin-dependent tunneling governs the electron transport in the structure. Nevertheless, in the former, hot electrons are concerned but there is a need for a crystalline Si emitter and collector and, in the latter, spin accumulation seems to be at the origin of the magnetoresistance.

In this paper, we propose to combine spin-polarized hot-

electron transport with a magnetic-tunnel-junction-based three-terminal device. This way, we fully relax the constraints related to the epitaxy of M/I or Si layers and so enlarge the number of material combinations to make the desired $M_1/I_1/M_2/I_2/M_3$ structure. The complete stack can then be made with a sputtering machine; the layers can be amorphous, but we show from a theoretical basis that a hot-electron transfer can be obtained from M_1 to M_3 as was shown in Ref. 13. Based on experimental tunnel barrier parameters, magnetic-field-dependent electrical characteristics of magnetic-tunnel-junction-based three-terminal devices have been computed in the framework of the parabolic band model. They assess the functionalities of a new generation of magnetic-field-dependent devices like asymmetric diodes or hot-electron magnetic-field-dependent transistors based on the control of the hot-electron transmission. Furthermore, besides their applied interest, $M_1/I/M_2/I/M_3$ structure can be used to measure the properties of nonequilibrium spin-dependent hot-electron transport. Indeed, thanks to an energy injection in the range of 0.5–4 eV (depending on the voltage breakdown of I_1), these studies will complete those dedicated to hot electrons injected from vacuum^{15,16} with energies above 3 eV.

After a description of the theoretical model developed to calculate the spin-dependent transport in $M_1/I/M_2/I/M_3$ structures with an electrical contact on each M_i layer, we give some examples of its use for magnetically programmable devices.

II. THEORETICAL DETAILS

In this section, we give the main aspects of the theoretical model which has been used to calculate the field-dependent transport characteristics of hot-electron three-terminal devices based on magnetic tunnel junction stacks (3TD-MTJ). The potential profile of the 3TD-MTJ system under consideration is shown in Fig. 1, where ϕ_i and d_i are, respectively, the barrier height and thickness of the barrier number (i). The barriers are considered as rectangular in the absence of any applied voltage. Due to the high conductivity of the metallic electrodes, the voltage drop is distributed homogeneously only in the barriers leading to the barriers skewing

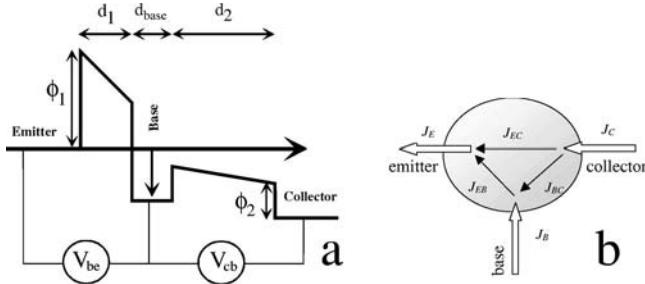


FIG. 1. (a) Potential profile of the hot-electron three-terminal device based on magnetic tunnel junction stacks under applied voltage. (b) Definition of the current densities flowing through the three-terminal device.

under given bias voltage. The voltage applied to those tunnel barriers is referenced as V_{BE} and V_{CB} . The spin-polarized current pumped from the emitter-base (EB) junction biased with voltage V_{BE} is injected in the base magnetic electrode with an energy $e \times V_{BE}$ above the Fermi level of the base electrode. If the thickness of the base is large compared to the mean free path of the electrons, λ , each electron extracted from the emitter electrode would be thermalized in the base and each junction would behave independently just like two resistors in series. If the thickness of the base is comparable to λ , some electrons injected from the emitter to the base can travel through the base without being scattered (ballistic transport) and eventually pass the base-collector (BC) barrier. As the tunneling probability increases exponentially with the energy, the transmission of the hot electrons is much higher than the one coming from the base Fermi level and can be controlled with the V_{CB} voltage, leading to the appearance of an asymmetric current-voltage characteristic.

Modeling of this device requires calculation of several tunnel currents: the total injected current J_E going through the EB barrier depends only on the parameters of this barrier (and particularly the applied voltage V_{BE}) independently of the processes of energy relaxation in the base or if the electrons will pass or not the BC barrier. Similarly the current of thermal electrons from the base to the collector J_{BC} (or from the collector to the base if V_{CB} is negative) only depends on the BC barrier. We consider here that the electrons thermalized in the base have relaxed both their energy and their spin. The ballistic current J_{EC} is more complex. It depends on the electron probability to pass the EB barrier, the energy relaxation processes in the base and the probability to pass the BC barrier. Multiple reflections in the base must also be considered since an electron can be reflected by the BC and then the EB barrier. Other currents are simply deduced from node laws.

The transport of hot electrons injected in the base results from several complex phenomena and the situation is even more complex in a ferromagnetic metal in which this transport is spin dependent. Different scattering events, elastic or inelastic, are possible including scattering by phonons, magnons, Stoner excitations (Ref. 17 gives a theoretical study of these two last phenomenon), defects, and interfaces. In the energy range of interest here, these transport phenomena can be studied by ballistic electron emission microscopy¹⁸

(BEEEM) or thanks to the spin-valve transistor.¹³ From these experiments, an attenuation factor is measured and its exponential thickness dependence allows us to define an attenuation length λ . This length is an effective value including all the processes decreasing the transmission. Inelastic scattering is obviously a major contribution to λ since any loss of energy for an electron will decrease exponentially its probability of being transmitted through the BC barrier. But elastic scattering also contributes to the attenuation. As a matter of fact, the conduction through tunnel barriers being exponentially dependent on the perpendicular to multilayer planes wave vector k_z , the electrons injected in the base move essentially perpendicularly to the plane of the layers (this effect is increased by the electric field present in the emitter-base barrier which accelerates the electrons in the perpendicular direction). The probability for an electron in the base to be transmitted through the base-collector barrier is also exponentially dependent on k_z . Any elastic scattering in the base will statistically deviate the electron from its direction perpendicular to the film plane and thus decrease its probability of being transmitted in the collector. Inelastic and elastic scatterings have thus the same effect, i.e., a reduction of the “direct” emitter to collector current.¹⁹ Any scattered electron thus decreases exponentially its probability of transmission and will increase its path in the base by reflection on the barriers. In turn, its probability of being further scattered increases and this until complete thermalization occurs. We will thus consider in our model that any scattering event, elastic or inelastic, decreases the transmission probability to negligible values and leads to the thermalization of the electron. This approach is different from the one adopted by Zhang²⁰ who has considered in a similar structure, a progressive relaxation of the electron energy. In this vision, every electron impinging on the BC barrier with the same energy which is its initial energy multiplied by a constant term, exponentially decreasing with the thickness of the base. Thus, there is no electron conserving its initial energy and there is no momentum conservation. However, our approach is supported by earlier calculations from Ref. 21 considering inelastic scattering which show that the number of ballistic electrons conserving their initial energy decreases exponentially whereas a tail of low energy above the base Fermi level appears.

Furthermore, coherent transport through the base has not been considered for simplicity and also to show that even without coherence, highly probable in our 3TD-MTJ, hot-electron-related phenomena can be expected.

With this approximation, the probability for a hot electron from the emitter to be injected in the base, and pass the base and BC barrier is

$$D_{EB}(V_{BE})\exp(-d/\lambda)D'_{BC}(V_{CB}), \quad (1)$$

where d is the effective thickness of the base. D_{EB} and D'_{BC} are, respectively, the transmission probability through the EB and BC barriers (the prime indicates that the transmission probability of hot electrons has to be considered). They are separately deduced from the wave functions in barrier and the electrodes, solutions of the Schrödinger equation.

Similarly, the probability for being reflected by the BC barrier is

$$D_{EB}(V_{BE})\exp(-d/\lambda)[1-D'_{BC}(V_{CB})]. \quad (2)$$

The probability for being transmitted after this reflection on the BC and then the EC barrier is thus

$$D_{EB}(V_{BE})\exp(-d/\lambda)[1-D'_{BC}(V_{CB})] \times \exp(-2d/\lambda)D'_{BC}(V_{CB}). \quad (3)$$

By extending this to an infinite number of reflections, one can obtain the “hot” transmission probability

$$D_{EC}=D_{EB}(V_{BE})D'_{BC}(V_{CB}) \times \frac{\exp(-d/\lambda)}{1-\exp(-2d/\lambda)[1-D'_{BC}(V_{CB})]}. \quad (4)$$

Finally following Tsu and Esaki²² and considering motion parallel and perpendicularly to the barrier, at low temperature, the different transmission probabilities have simply to be integrated over an adequate range of energy

$$J_E=\frac{2\pi e}{h^3}m_e^*\int\int D_{EB}(E_z,E_{\parallel})dE_zdE_{\parallel}, \quad (5)$$

$$J_{EC}=\frac{2\pi e}{h^3}m_e^*\int\int D_{EC}(E_z,E_{\parallel})dE_zdE_{\parallel}, \quad (6)$$

$$J_{BC}=\frac{2\pi e}{h^3}m_b^*\int\int D_{BC}(E_z,E_{\parallel})dE_zdE_{\parallel}, \quad (7)$$

where E_z ($E_{\parallel}$) is the electron energy perpendicular (parallel) to the tunnel barriers in the emitter electrode, and m_e^* and m_b^* are the effective electron masses in the emitter and base electrode, respectively.

A rigorous free electron model has been used in order to compute those currents and therefore we have taken into account the transverse (in-plane) motion of the electrons. Indeed, refraction of the electron at the barrier interface, due to the difference of effective mass between the metal and insulator, allows tunneling of additional electrons. Therefore, D cannot be simply integrated over E_z but a two-dimensional integration over $E_{\parallel}$ and E_z has to be done. This double integration has been shown in a previous work⁷ to be of primary importance. As we focus here on the transport of hot electrons and in order to simplify the computations, the simplest band structure for the different materials, i.e., parabolic bands (free electron), has been used. This does not allow us to address directly the effects of interface magnons or phonons²³ or the effects of complex band structure on the TMR.²⁴ Nevertheless, we have shown that this model can predict qualitatively the complex $MR(V)$ observed in composite barriers.⁷ Therefore we are confident in the results shown in this paper even if additional features can appear with sophisticated materials.

To model those bands, we used the parameters proposed by Davis and MacLaren²⁵ for iron. For the spin-up (-down) band, we have a Fermi level at 2.25 eV (0.5 eV) and an effective mass equal to 1.27 (1.36) times the free electron mass. However, as was stressed in a previous paper,⁷ a change of the band parameters does not change drastically the results reported in this paper. The barrier parameters have been chosen to fit the current-voltage characteristics of real tunnel junctions. Therefore, ϕ values of 1.5 and 0.5 eV have been used because they have been shown to be reached using aluminum oxide⁴ and tantalum oxide²⁶ tunnel barriers, respectively. As was recently shown by Stein *et al.*,¹⁴ it is experimentally proved that an electric contact can be taken on a 5-nm-thick base layer made with ferromagnetic materials. We have thus chosen this value for our computations. A mean free path of 5 nm (2.5 nm) for the spin-up (-down) electrons has been chosen in accordance with the recent measurements made by Vlutters *et al.*²⁷ Finally, the electron mass in the barrier was taken equal to $0.4m_e$, the estimated value computed for crystalline alumina and in the range of values measured for amorphous SiO_2 . This set of parameters has been used to fit experimental conditions that can be reached in the near future in order to bring soon an experimental verification of those calculations. The electrical characteristics of the 3TD-MTJ have been computed considering two independent spin channels and colinear alignment of the electrode magnetizations with two magnetization configurations: (i) the parallel magnetizations of the three M_i layers and (ii) the magnetization of M_2 antiparallel to the magnetizations of M_1 and M_3 . The TMR of a given current (emitter, base, or collector current) is then calculated from the difference of the currents calculated in the parallel and antiparallel magnetization states divided by the current calculated in the antiparallel magnetization state. Those configurations are readily obtained experimentally when parallel easy magnetic axes are defined in each M_i layer and when M_2 has the lowest coercive field. The reversal of M_2 can then be achieved for example with the field created by a current going through the connection lead of M_1 and/or M_3 as is in the new generation of magnetic tunnel memories.²⁸ Furthermore, more complex magnetic configurations like an angle between M_2 and M_1, M_3 can be accessed using an additional electric line that can create a field perpendicular to the M_2 easy axis but are not treated in those calculations.

This rigorous free electron model and those parameters were applied to compute the magnetic-configuration-dependent electrical characteristics of 3TD-MTJ-based devices.

III. THREE-TERMINAL CURRENT-VOLTAGE ASYMMETRIC DEVICES

The use of magnetic tunnel junctions is predicted for the next generation of nonvolatile magnetic random access memories (MRAM). Indeed, they combine high-speed, low-power consumption and dissipation, nonvolatility, high packing density, and low cost. However, a silicon diode or a transistor is needed in series with each MTJ cell to avoid leakage current in the MRAM cell array during the reading

operation. This diode limits the current state-of-the-art packing density. Alternatives to the use of this diode are currently under development and two of those are presented in the following. It appears that the association of a silicon device and a MTJ can be replaced by one 3TD-MTJ cell.

A. Use of all base-collector tunnel barriers to ensure current-voltage asymmetry

In this first section, we focus on the current asymmetry which can be induced using the base-collector tunnel barrier. In order to evaluate the device, we use the current asymmetry defined as the ratio $J_C(|V_{CB}|)/J_C(-|V_{CB}|)$, which varies with V_{CB} . A constant bias voltage is applied to the emitter-base junction which injects a current of hot electrons in the base. The current of hot electrons is allowed to be injected in the collector electrode depending on the bias voltage of the base-collector junction as depicted in Fig. 1(a). The V_{CB} voltage controls the asymmetry of the device and, when negatively biased, stops the current of hot electrons. The computations have been done using parameter values close to those evaluated experimentally: d_1 and d_2 have been taken equal to 1 and 4 nm while ϕ_1 and ϕ_2 values are 1.5 and 0.5 eV, respectively. In the following, characteristic (collector current)/(base-collector voltage), (collector current asymmetries)/(base-collector voltage) and (collector current magneto resistance)/(base-collector voltage) are shown for different emitter-base voltages.

It appears that the asymmetry in the collector current depends strongly on the emitter-base bias voltage and so on the energy of the hot electrons [Fig. 2(a)]. As expected, the higher asymmetries are observed when the emitter-base voltage is close and a bit higher than the barrier height of the base-collector junction, ϕ_2 . Then, asymmetries above 10 000 in the forward and backward collector currents can be observed [Fig. 2(b)]. As a matter of fact, the base-collector voltage range in which the current asymmetry is above a given value depends on the emitter-base voltage (Table I). Current asymmetries above 1000 are easily reached for a large range of base-collector voltages. For specific applications, if lower asymmetries are needed, they can be obtained in a larger voltage range. For example, with $V_{BE}=0.6$ V, an asymmetry above 25 is expected for a V_{CB} range of 0.44 V. This voltage range decreases to 0.17 V (Table I) when an asymmetry above 1000 is needed. Furthermore, the level of TMR in the collector current remains high and quite constant, especially for the most interesting 0.6 V bias voltage, as shown in Fig. 2(c). One major advantage of this use is the fact that applied voltages are far away from the known breakdown voltages of such tunnel barriers. In conclusion, considering the transport of hot electrons without coherence in a 3TD-MTJ in which only the base-collector junction ensures the asymmetry, it is reasonable to observe large spin-polarized collector current asymmetries.

B. Use of all 3TD-MTJ's to ensure current-voltage asymmetry

In this second section, we focus on the current asymmetry which can be induced using all the structure. In this application, we consider a zero constant bias voltage applied to the

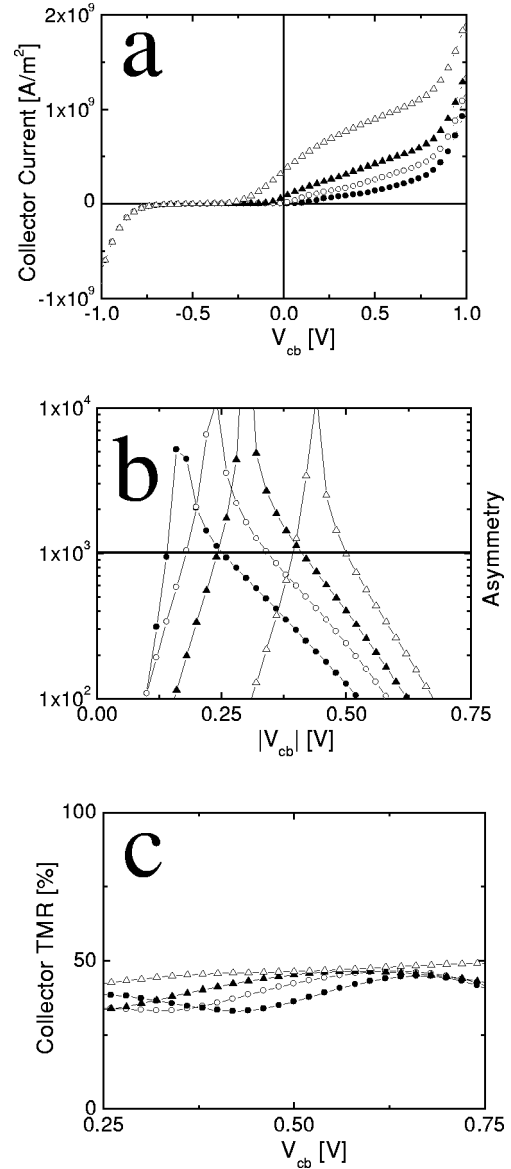


FIG. 2. Characteristics of the device as a function of the base-collector voltage V_{CB} at various fixed emitter-base voltage V_{BE} of 0.5 V (disk), 0.55 V (open disk), 0.6 V (triangle), and 0.7 V (hollow triangle). (a) Collector current, (b) asymmetry of the collector current, and (c) magnetoresistance of the collector current (normalized by the collector current in the antiparallel configuration which corresponds to the magnetization of the base antiparallel to those of the emitter and the collector).

base-collector junction and use all the structure to ensure the current asymmetry. When the emitter-base junction is polarized positively at bias voltages above ϕ_2 , a current of hot electrons is allowed to be injected in the collector electrode. Inversely, when the emitter-base junction is polarized negatively, no current is extracted from the collector electrode. Therefore, an infinite collector current asymmetry is expected from this way of the hot-electron three-terminal device use [Fig. 3(a)]. The computations have been done using the same parameter values as for the last paragraph. We have varied the thickness of the base and also the thickness of the base-collector tunnel barrier.

TABLE I. Minimum and maximum V_{BC} voltages for which an asymmetry in collector current above 1000 have been calculated as a function of V_{EB} voltage. The last column shows the V_{BC} voltage window.

V_{BE} [V]	V_{CBmin} [V]	V_{CBmax} [V]	ΔV_{CB} [V]
0.5	0.14	0.254	0.114
0.55	0.18	0.343	0.163
0.6	0.243	0.414	0.171
0.7	0.39	0.5	0.11

First of all, no effect of the base-collector barrier thickness could be observed, except for the TMR signal. Indeed, when the emitter-base junction is negatively polarized, the collector current is zero independently of the barrier thickness. When polarized positively, the electrons injected from the emitter-base junction seem not to be so sensitive to the thickness of the second tunnel barrier. Then, we have fixed the thickness of the insulating barrier layer of the base-collector junction to 2 nm and we have changed the thickness of the base. Since the current asymmetry is infinite, the choice of the resistance of the 3TD-MTJ and the value of TMR desired for the specific application of the asymmetric diode is driven by the base thickness. As shown in Fig. 3(b), the increase of the base thickness will increase the resistance of the 3TD-MTJ but also the value of TMR. This can be

understood considering that, first of all, the thickness of the base, via the mean free path of the hot electrons, controls the collector current and so the resistance of the device. Furthermore, the mean free path is spin dependent and so increasing the base thickness will increase the contrast between the spin-up and spin-down hot-electron current (as in the hot electron spin-valve transistor¹³). Therefore, a highly polarized hot-electron current is injected into the I_2/M_3 collector and an increase of TMR is observed. This last result is at the origin of the new concept of an *artificial half metal* composed by the $M_1/I_1/M_2$ injection structure which is able to provide a highly polarized hot-electron current.

A similar concept of diodes has been proposed²⁹ and realized experimentally recently³⁰ without an electric contact taken at the base electrode. A current asymmetry of 25 was observed, resulting from coherent hot-electron transport in an $M_1/I_1/M_2/I_2/M_3$ structure in which (i) $\phi_{I1} \approx 2\phi_{I2}$ and (ii) $d_{I1} \approx 2d_{I2}$. In this case, the current asymmetry was ensured by the main voltage drop on the first I_1 barrier. So, positively biased, the electrons injected from M_1 to M_2 have enough energy to overcome I_2 and reach M_3 . Inversely, when negatively biased, the electrons have to overcome both I_1 and I_2 . A substantial improvement of the diode characteristics is achieved by control of the base voltage as shown in this section. Indeed, this control ensures a larger current asymmetry without the need for resonance to enhance the coherent-transport-induced asymmetry²⁹. Furthermore, it softens the window of barrier parameters [(i) and (ii)] required to have the proper drop of emitter-base voltage and so allows the use of many I_1 and I_2 couples.

IV. TRANSISTOR APPLICATION

As depicted in Ref. 11, the 3TD-MTJ can be used as a transistor and this in several voltage windows. But as will be shown in the following, the use of magnetic electrodes adds a new functionality since it allows control and a nonvolatile programming of the current-voltage characteristics of the device.

First of all, as presented in the previous section, operating the 3TD-MTJ with V_{CB} near the crossover voltage for which $J_C = 0$ leads to an appreciable transconductance J_C/V_{CB} . Indeed, due to the strong variation of tunneling with a small variation of barrier height, the transmission of the hot electrons is expected to vary significantly with V_{CB} . Furthermore, this transconductance increases with injection energy V_{BE} .

Nevertheless, we would like to concentrate this section on the operation window first exemplified in Ref. 11. A constant bias voltage is applied to the emitter-base junction which injects a current of hot electrons in the base. When the base-collector junction is positively biased, much of those electrons are transmitted to the collector while a small part is thermalized in the base. The ratio depends on the applied voltages and the parameters of the base (mean free path, thickness). This transistor acts as a conventional bipolar transistor but the electrons in the base are not thermalized and combining electron and holes in the base to make the base

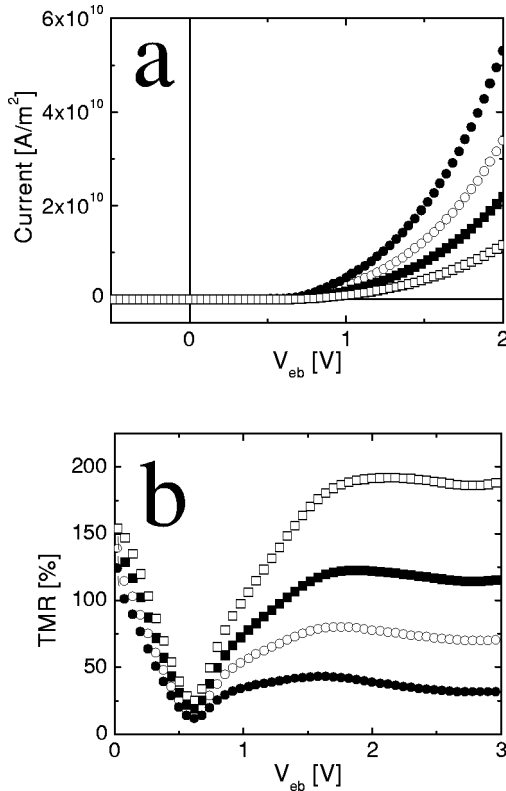


FIG. 3. (Collector current)/(emitter-base voltage) (a) and (collector TMR)/(emitter-base voltage) (b) characteristics computed as a function of base thickness: 3 nm (disk), 5 nm (hollow disk), 7 nm (square), and 10 nm (open square).

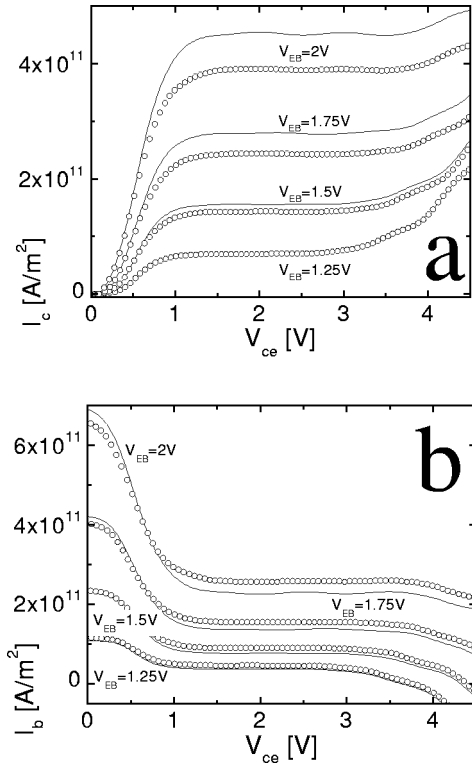


FIG. 4. (Collector current)/(emitter-collector voltage) (a) and (base current)/(emitter-collector voltage) (b) characteristics computed as a function of emitter-base voltage and magnetic configuration for a 3TD-MTJ structure with two 0.5-eV-height barriers and barrier thickness d_1 and d_2 equal to 2 and 5 nm.

current is replaced by elastic and inelastic scattering. Nevertheless, common emitter characteristics look the same. They have been computed using a 3TD-MTJ structure with two 0.5-eV-height barriers with thicknesses d_1 and d_2 equal to 2 and 5 nm. From our experience and published results,³¹ conventional Al_2O_3 barriers have breakdown voltages around 2 V or less. But the operating voltage of the injection junction is around this value. Then, we have chosen the parameters of TaO for both barriers since the breakdown voltage of those barriers appeared much higher.²⁶ Nevertheless, calculations (not shown) have also been done with the Al_2O_3 barrier parameters and similar effects have been obtained.

In Fig. 4, magnetic-configuration-dependent $J_B(V_{CE})$ and $J_C(V_{CE})$ characteristics are shown as a function of V_{BE} , the emitter-base voltage. The current gain is defined by $\beta = J_C(V_{CE})/J_B(V_{CE})$. Even if the current gain β is low for the set of junction parameters used (around two for those calculations), a clear transistor effect is observed and β varies with the orientation of the magnetization of M_2 .

From the physical point of view, the appearance of a large plateau in the $J_B(V_{CE})$ and $J_C(V_{CE})$ characteristics for V_{CE} between 1 and 3 V is linked to the saturation of the hot-electron current. Then, when V_{CE} is increased above 3 to 4 eV (depending on V_{BE}), the additional increase of collector current originates from the tunneling of “cold” electrons injected from the base into the collector and not more from the emitter to the collector (this current is saturated). So we have the appearance of nonlinearity originating from the signature

of electron tunneling from “cold” electrons injected from the base into the collector. A larger plateau can then be reached by increasing the base-collector junction resistance and thus the thickness d_2 ; here, ϕ_2 can also be increased but a higher V_{BE} is then needed to get a proper working of the device. The voltage offset in V_{CE} observed before the J_C plateau is controlled by ϕ_1 . Indeed, calculations using $\phi_1 = 1.5$ eV have shown that the inflection of the $J_C(V_{CE})$ curve is shifted from 0.6 eV [Fig. 4(a)] to around 1.4 eV.

From our point of view, the main challenge is to increase the current gain β . Calculations have been done with a reduced base thickness and/or a larger λ ; it follows that a larger spin-dependent current gain can be reached. Indeed, in both cases, considering V_{BE} and V_{CB} fixed, a strong reduction of the base current is expected in our model and this is mainly linked to the exponential dependence with base thickness of the probability of an electron to be thermalized. Since β is the ratio of the collector current and the base current, a strong increase of β can be observed.

It has been shown that an electric contact can be taken on a base layer as thin as 1.9 nm,¹¹ but this constitutes a real technological bottleneck. Nevertheless, we can be optimistic about this point.¹⁴ Work can also be done on the material used to grow the base. Indeed, the important parameter is the mean free path of the hot electrons, λ . Only few data are actually available in the energy range of interest here. Nevertheless at those energies, the main source of electron scattering is plasmons,⁹ and reducing or increasing their energy with respect to the hot-electron injection energy will increase λ . For example, the plasmon energy can be reduced by tailoring the band structure of the base to decrease its density of states at the Fermi level. This has been done in Ref. 11 with the use of a CoSi_2 base, for which the experimental data could be reproduced with our model by introducing $\lambda = 100$ nm. This value is in agreement with the one extracted by the authors [$\lambda > 50$ nm (Ref. 32)]. Then, even if the base is not magnetic, a spin-dependent transport could be observed if the base thickness is thinner than its spin diffusion length. However, our model does not support the use of λ values much larger than the thickness of the base (2 nm in Ref. 11). In this case, indeed, coherent transport through the base has to be considered while a complete phase relaxation was used in our model. Nevertheless, this result shows that the computed currents are underestimated in comparison to those measured in real systems. Since our model underestimates the current, it is not surprising that we have to enter a larger mean free path in the calculations to reproduce the experimental data.

V. CONCLUSIONS

A large part of this paper has been devoted to possible future applications of 3TD-MTJ structures. But besides for their applied interest, $M_1/I/M_2/I/M_3$ structure can be used to measure the properties of nonequilibrium spin-dependent hot-electron transport in the range of 0.5–4 eV. This energy range is difficult to access with non-solid-integrated electron injection sources. Some experimental results have been reported recently with integrated spin-valve transistors.^{19,27,33}

The different contributions to the hot-electron mean free path can be discriminated and those results supply theoretical developments with data. On the other hand, the properties of insulating materials used for the base-collector junction can also be studied. Indeed, injecting hot electrons into a barrier allows us to study its electric transport processes without applying high to voltages to its electrodes. So the existence of a Poole-Frenkel transport mechanism can be checked even for low-breakdown-voltage junctions.

The concept of 3TD-MTJ structures with high asymmetry of backward to forward currents or with transistorlike characteristics has been theoretically demonstrated. In these cal-

culations, the set of junction parameters was chosen to fit experimental conditions that can be reached in the near future in order to bring soon an experimental verification of those calculations. Work is under progress.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors thank P. Rottländer, C. Tiusan, and J. Gregg for valuable discussions. This work is supported by the EC-IST program "NanoMEM," No. IST-1999-13471. This work is partially supported by "La Région Lorraine."

- ¹J.S. Moodera, L.R. Kinder, T.M. Wong, and R. Meservey, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3273 (1995).
- ²S.A. Wolf, *J. Supercond.* **13**, 195 (2000).
- ³C.H. Shang, J. Nowak, R. Jansen, and J.S. Moodera, *Phys. Rev. B* **58**, R2917 (1998); R. Jansen and J.S. Moodera, *J. Appl. Phys.* **83**, 6682 (1998); R.C. Sousa, J.J. Sun, V. Soares, P.P. Freitas, A. Kling, M.F. da Silva, and J.C. Soares, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 3288 (1998).
- ⁴M. Hehn, O. Lenoble, D. Lacour, C. Féry, M. Piécuch, C. Tiusan, and K. Ounadjela, *Phys. Rev. B* **61**, 11 643 (2000).
- ⁵R.E. Dunin-Borkowski, M.R. McCartney, D.J. Smith, S. Gider, B.U. Runge, and S.S. Parkin, *J. Appl. Phys.* **85**, 4815 (1999); C. Tiusan, T. Dimopoulos, M. Hehn, V. Da Costa, Y. Henry, H.A.M. van den Berg, and K. Ounadjela, *Phys. Rev. B* **61**, 580 (2000).
- ⁶M. Jullière, *Phys. Lett.* **54A**, 225 (1975); J.C. Slonczewski, *Phys. Rev. B* **39**, 6995 (1989); I.I. Mazin, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1427 (1999).
- ⁷F. Montaigne, M. Hehn, and A. Schuhl, *Phys. Rev. B* **64**, 144402 (2001).
- ⁸I.I. Oleinik, E.Y. Tsymlal, and D.G. Pettifor, *Phys. Rev. B* **62**, 3952 (2000); J.M. MacLaren, X.G. Zhang, W.H. Butler, and X. Wang, *ibid.* **59**, 5470 (1999).
- ⁹C.A. Mead, *J. Appl. Phys.* **32**, 646 (1961).
- ¹⁰F. Montaigne, J. Nassar, A. Vaures, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, A. Schuhl, and A. Fert, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 2829 (1998).
- ¹¹S. Muratake, M. Watanabe, T. Suemasu, and M. Asada, *Electron. Lett.* **28**, 1002 (1992); W. Saitoh, T. Suemasu, Y. Kohno, M. Watanabe, and M. Asada, *Jpn. J. Appl. Phys., Part 2* **34**, L1254 (1995).
- ¹²M. Heiblum, D.C. Thomas, C.M. Knoedler, and M.I. Nathan, *Appl. Phys. Lett.* **10**, 1105 (1985).
- ¹³D.J. Monsma, R. Vlutters, and J.C. Lodder, *Science* **281**, 407 (1998).
- ¹⁴S. Stein, R. Schmitz, and H. Kohlstedt, *Solid State Commun.* **117**, 599 (2001).
- ¹⁵A. Filipe, H.-J. Drouhin, G. Lampel, Y. Lassailly, J. Nagle, J. Peretti, V.I. Safarov, and A. Schuhl, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 2425 (1998).
- ¹⁶D. Oberli, R. Burgermeister, S. Riesen, W. Weber, and H.C. Siegmann, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 4228 (1998).
- ¹⁷J. Hong and D.L. Mills, *Phys. Rev. B* **59**, 13840 (1999).
- ¹⁸W.H. Rippard and R.A. Buhrman, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 971 (2000).
- ¹⁹R. Vlutters, O.M.J. van 't Erve, S.D. Kim, R. Jansen, and J.C. Lodder, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 027202 (2002).
- ²⁰S. Zhang, *J. Appl. Phys.* **87**, 5218 (2000).
- ²¹A. Filipe, Ph.D. thesis, Ecole Polytechnique, 1997.
- ²²R. Tsu and L. Esaki, *Appl. Phys. Lett.* **22**, 562 (1973).
- ²³S. Zhang, P.M. Levy, A.C. Marley, and S.S.P. Parkin, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3744 (1997).
- ²⁴J.M. De Teresa, A. Barthélémy, A. Fert, J.P. Contour, R. Lyonnet, F. Montaigne, P. Seneor, and A. Vaures, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4288 (1999).
- ²⁵A.H. Davis and J.M. MacLaren, *J. Appl. Phys.* **87**, 5224 (2000).
- ²⁶P. Rottländer, M. Hehn, O. Lenoble, and A. Schuhl, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3274 (2001).
- ²⁷R. Vlutters, R. Jansen, O.M.J. van 't Erve, S.D. Kim, and J.C. Lodder, *J. Appl. Phys.* **89**, 7305 (2001).
- ²⁸W. J. Gallagher, J. H. Kaufman, S. S. P. Parkin, and R. E. Scheuerlein, United States Patent No. 5,640,343, June 17, 1997.
- ²⁹M. Chshiev, D. Stoeffler, A. Vedyayev, and K. Ounadjela, *Europhys. Lett.* **58**, 257 (2002).
- ³⁰C. Tiusan, M. Chshiev, A. Iovan, V. da Costa, D. Stoeffler, T. Dimopoulos, and K. Ounadjela, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 4231 (2001).
- ³¹W. Oepts, H.J. Verhagen, W.J.M. de Jonge, and R. Coehoorn, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 2363 (1998).
- ³²The transfer efficiency of hot electrons with monochromatic energy across a 1.9-nm-thick metal (CoSi₂) epitaxial layer was estimated to be more than 0.96 from negative differential resistance characteristics of a metal(CoSi₂)/insulator(CaF₂) quantum interference transistor. Such a high value of transfer efficiency may be due to the very thin single-crystalline metallic layer. From this transfer efficiency, mean free path of hot electrons is estimated to be more than 50 nm. WEB site <http://www.pe.titech.ac.jp/Suemasu/ResearchReview/95/act295.htm>. T. Suemasu, Y. Kohno, W. Saitoh, M. Watanabe, and M. Asada, *IEEE Trans. Electron Devices* **42**, 2203 (1995).
- ³³R. Jansen, S.D. Kim, R. Vlutters, O.M.J. van 't Erve, and J.C. Lodder, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 166601 (2001).

Hot-electron transport in 3-terminal devices based on magnetic tunnel junctions

D. LACOUR^{1,2}, M. HEHN^{2(*)}, F. MONTAIGNE², H. JAFFRÈS¹, P. ROTTLÄNDER²,
G. RODARY¹, F. NGUYEN VAN DAU¹, F. PETROFF¹ and A. SCHUHL²

¹ *Unité Mixte de Physique CNRS Thales*

Domaine de Corbeville, 91404 Orsay Cedex, France

² *Laboratoire de Physique des Matériaux, UMR CNRS 7556*

BP 239, 54506 Vandœuvre les Nancy Cedex, France

(received 6 May 2002; accepted in final form 2 October 2002)

PACS. 72.25.-b – Spin polarized transport.

PACS. 73.40.-c – Electronic transport in interface structures.

PACS. 73.40.Gk – Tunneling.

Abstract. – An original study combining spin polarization with hot-electron transport in a 3-terminal double tunnel junction device is presented. We report for the first time a tunnel magnetoresistance signal for each tunnel barrier in an integrated device made with two different insulating materials. Furthermore, a hot-electron transfer from the emitter to the collector, both magnetic, through the base and both tunnel barriers is presented with an appropriate set of applied voltages. The characteristics of the hot electrons have been successfully modeled theoretically on the basis of experimental tunnel barrier parameters. However, in contrast to the theory, no field dependence of the hot-electron characteristics was measured. Possible origins for this discrepancy are discussed.

First evoked by Mead [1] in the early sixties, a detailed review of a novel family of 3-terminal devices which relies on the transfer of a quasi-monoenergetic hot-electron beam through a thin base was given by Heiblum [2] in 1981. The *tunneling hot-electron transfer amplifiers* (THETA) presented by Heiblum consist of a stack of i) a $M_1/I_1/M_2$ tunnel junction (where M_i and I_i are metallic and insulating layers, respectively) and either ii-a) a second tunnel junction I_2/M_3 , ii-b) a junction composed by vacuum and a metallic electrode, ii-c) a Schottky barrier and a semiconductor electrode. The bias potential of each M_i and semiconductor electrode can be varied independently. The potential profile seen by the electrons in the case of a 3-terminal $M_1/I_1/M_2/I_2/M_3$ structure is given in fig. 3b below (the potential profile for structures ii-b) and ii-c) are given in ref. [2]). The principle of the THETA is to extract an electron tunnel emission from the $M_1/I_1/M_2$ tunnel junction —the emitter/base junction (fig. 3b, right)— biased with a positive voltage V_{BE} and to inject it into the thin M_2 base. If the thickness of the base is large compared to the mean free path of the hot electrons, λ , each electron extracted from the emitter electrode is thermalised in the base and each junction behaves independently just like two resistors in series. However, if the thickness of the base is comparable to or smaller than λ (this is the interesting regime), some electrons injected from the emitter to the

(*) E-mail: hehn@lpm.u-nancy.fr

base can travel through the base without being scattered (ballistic transport) and eventually pass the $M_2/I_2/M_3$ tunnel junction —the base/collector junction (fig. 3b, right). This tunnel junction acts as a filter of the ballistic current. By adjusting the voltage V_{CB} , the hot electrons can be allowed or prevented from travelling from the emitter to the collector, leading to an asymmetric current/voltage characteristic. Up to now, only a few THETA experiments have succeeded and this is mainly due to the difficulties in growing the thin insulating material. However, in the '90s, a convincing hot-electron transistor effect was shown in the particular case of an epitaxial M/I/M/I/M structure, where I is CaF_2 and M is CoSi_2 [3] (analogous effects are observed in similar semiconductor structures [4]).

Following the discovery of spin-polarized tunneling at room temperature in oxide-based magnetic tunnel junctions [5] (MTJ), research in this field has intensified recently. Numerous studies devoted mainly to single MTJs [6] permit to get a better understanding of the fundamentals of spin-polarized tunneling transport. The progress of both materials growth and related technologies, and a better theoretical understanding allow us now to go on to the next step, that is combining spin polarization, and so tunnel magnetoresistance (TMR) effects, with hot-electron transport and stack two or more MTJ in a single multilayer. Up to now, only few studies have been devoted to this topic. Recent achievements include the hot-electron spin valve transistor [7] or the magneto-tunneling injection device [8]. In both systems, spin-dependent transport through or over two different potential barriers governs the electron conduction in the structure. But in the former, although hot electrons are concerned, there is a need of a crystalline Si emitter and collector and in the latter, spin accumulation seems to be at the origin of the magnetoresistance.

In this paper, we report a new and original study combining spin polarization with hot-electron transport in a 3-terminal $\text{FM}_1/I_1/\text{FM}_2/I_2/\text{FM}_3$ device where FM_i are ferromagnetic electrodes and so extend the proposal made by Heiblum to spin-polarized currents. Indeed, while the purely electronic performances of the devices appear to be identical to those predicted by Heiblum [2], the main advantage concerns the use of the non-volatile magnetic states of the magnetic electrodes. On this basis, low power consumption, highly integrated programmable devices and magnetic-field-dependent devices (spin-polarized transistors, magnetic memories, etc.) can theoretically be fabricated as shown in a recent work [9]. We also fully relax the constraints related to epitaxy of M/I or Si layers needed in the most recent realization (see refs. [3,7]) and thereby vastly increase the number of possible material combinations.

We report for the first time a TMR signal for each tunnel barrier in an integrated $\text{FM}_1/I_1/\text{FM}_2/I_2/\text{FM}_3$ multilayer stack for which I_1 and I_2 are insulators made with different materials. Furthermore, a hot-electron transfer from FM_1 to FM_3 is demonstrated. The hot-electrons characteristics have been successfully reproduced theoretically using the tunnel barrier parameters, which were obtained experimentally.

From our theoretical work [9] and the consideration made by Heiblum [2], the optimum operation condition for the THETA occurs when the energy of the injected electrons from the emitter/base junction is around or above the base/collector, I_2 , barrier height. If Al_2O_3 barriers are used for I_1 and I_2 , a voltage of 1 to 2 V has to be applied to I_1 . Conventional Al_2O_3 barriers have breakdown voltages around 1.5 V or less [10,11] and so the use of Al_2O_3 for I_2 is excluded. This explains why we have chosen tantalum oxide for I_2 . Furthermore, tantalum oxide is attractive because its barrier height is significantly lower (around 0.6 eV) [12] than the one of aluminium oxide (1.5 eV) [10].

On the basis of our growth experience of alumina [10] (Al-Ox) and tantalum oxide [12] (Ta-Ox) barriers, glass/Ta(10)/ $\text{Co}_{80}\text{Fe}_{20}$ (7.5)/Co(2)/Al-Ox(1.4)/ $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (10)/Ta-Ox(1.4)/Co(20)/Ta(10) stacks have been grown with a sputtering machine (numbers in brackets are the thicknesses of the layers in nanometers). Details on the growth conditions can be found

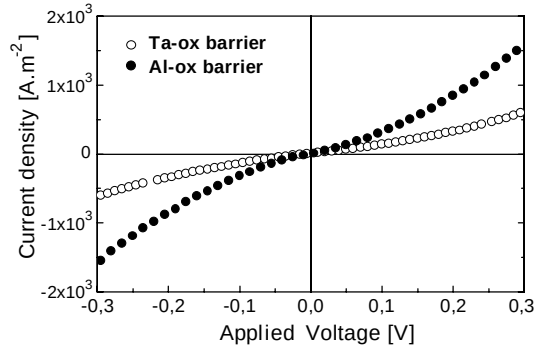


Fig. 1 – Current/voltage characteristics measured on the Ta-Ox top MTJ (empty circles) and the Al-Ox bottom MTJ (full circles) at 4.2 K with parallel alignment of all the magnetizations.

in refs. [10, 12]. In the case of single MTJ, we have shown that Al-Ox and Ta-Ox have barrier heights of 1.5 eV and 0.6 eV, respectively. The best electron transfer ratio from the emitter to the collector occurs for large mean free paths for the hot electrons in the base. Therefore, the use of ferromagnetic materials for the base is not optimal. But, the spin filtering of a ferromagnetic base layer induces a highly polarized hot-electron current which is injected in the I_2/FM_3 collector and leads to an increase of the $FM_2/I_2/FM_3$ junction TMR. Furthermore, by using a ferromagnetic base grown with the softer material, $Ni_{80}Fe_{20}$, we are able to test the spin polarised tunnel of each barrier and assert their spin-dependent tunnel quality.

Five steps of lithography and three steps of Ar ion etching were used to define the 3-terminal device from an as-grown multilayer. The successive patterning steps are well controlled with no specific problem of etching depth resolution. Especially, we succeeded in making an electrical contact with the base intermediate electrode by controlling the etching steps with Auger electron spectroscopy. The current-voltage experiments are done with a two-point method for each tunnel junction. Considering the low resistance of the leads (around $100\ \Omega$) in comparison with the resistance of the junctions (AlOx junction: $90\ k\Omega$, TaOx junction: $400\ k\Omega$), the voltage drop across the leads is negligible.

An important validation step consists in demonstrating convincing TMR features in each of the two MTJs. As far as the top Ta-Ox barrier is concerned, the effective barrier param-

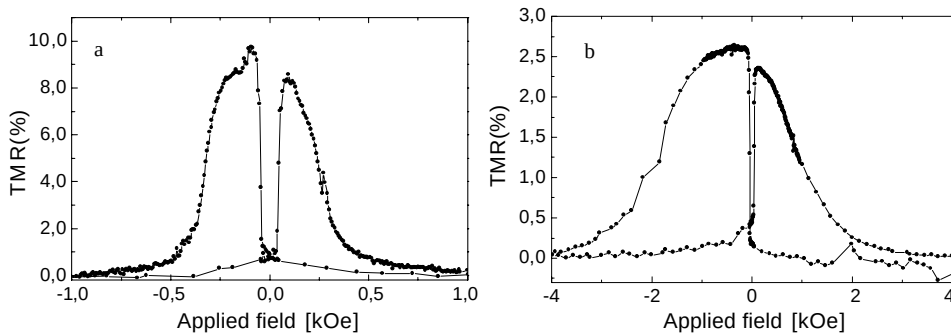


Fig. 2 – Resistance/field characteristics measured on the Al-Ox bottom MTJ (a) and the Ta-Ox top MTJ (b) at 4.2 K with applied voltage of 10 mV.

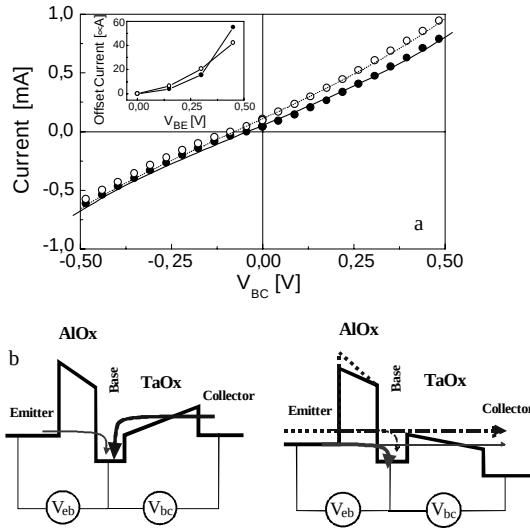


Fig. 3 – (a) Collector-current/base-collector-voltage characteristics measured on the 3-terminal glass/Ta(10)/Co₈₀Fe₂₀(7.5)/Co(2)/Al-Ox(1.4)/NiFe(10)/Ta-Ox(1.4)/Co(20)/Ta(10) structure at 4.2 K with parallel alignment of all the magnetizations. Measurements have been done for V_{BE} equal to 450 mV (full circles) and 625 mV (empty circles). Computation results using the experimental barrier parameters are reported for V_{BE} equal to 450 mV (continuous line) and 625 mV (dotted line). Inset: (empty circles) experimental and (full circles) theoretical variation of I_C (V_{BE}) for $V_{CB} = 0$. (b) Potential profile of the hot-electron 3-terminal device under applied voltage: on the left, V_{CB} is negative, on the right, V_{CB} is positive.

ters extracted from the fit of the $I(V)$ characteristic using the Brinkman [13] formula (barrier height of 0.65 eV and thickness of 1.2 nm) are in good agreement with earlier reported experiments (fig. 1). Furthermore, this MTJ exhibits a clear feature with a maximum TMR up to 3% (equal to the maximum of resistance variation divided by the maximum of resistance), close to the highest TMR value measured in our Ta-Ox junctions (fig. 2b). These measurements assert that the quality of the top junction is similar to that of a single MTJ element. In contrast to that, a significant degradation of the bottom Al-Ox MTJ is generally observed (barrier height of 0.3 eV and thickness of 1.4 nm). Nevertheless, this MTJ still exhibits a clear TMR feature with a maximum up to 8% (fig. 2a), which is less than the highest TMR value measured in our Al-Ox junctions.

The strong deviations from the properties of a reference single junction and the poor quality of the bottom MTJ are a common feature of all samples. However, the original quality of the bottom MTJ is recovered on the same stack by patterning the two MTJs in series without taking a contact on the intermediate electrode (it is a 2-terminal technology currently used to make conventional MTJs). A very specific aspect of our 3-terminal technology is that, during the top junction ion beam etching step, a large part of the future bottom junction area is exposed to the beam. We thus believe that the 10 nm thick intermediate electrode is not thick enough to shield the bottom barrier from ion irradiation damage. Work is underway to improve the ion etching process.

Nevertheless, although some degradation of the performance for the bottom Al-Ox junction has been noticed, the study of the hot-electron transport can proceed since this junction is used only to give an injection energy above the Fermi level of the base. Spin polarization can,

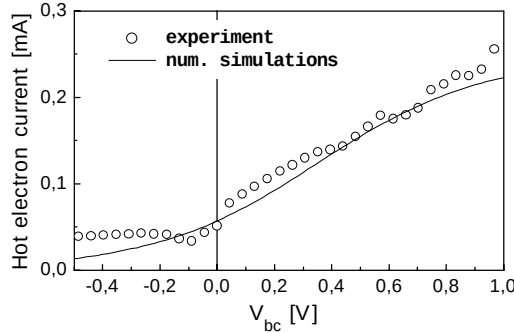


Fig. 4 – The collector current I_C is composed of the direct tunnelling current between base and collector superimposed with the contribution of the ballistic current between the emitter and the collector, occurring mainly in forward bias. Subtracting collector-current/base-collector-voltage characteristics measured for V_{BE} equal to 450 mV and 625 mV (empty circles) gives information on the ballistic current solely. Theoretical behaviour is also reported in the figure (continuous line).

however, be expected since a clear TMR signal has been measured.

These structures were used to perform the hot-electron experiments. In these experiments, a fixed emitter/base voltage V_{BE} is applied to the Al-Ox barrier, and the collector current I_C is measured as a function of the base/collector voltage V_{CB} (fig. 3). We present in fig. 3a two characteristic curves measured for V_{BE} equal to 0.450 and 0.625 V. Note that these two voltages are, respectively, lower and almost equal to the tantalum oxide barrier height. These experiments have been performed at 4.2 K and in a saturating field.

While the current/voltage characteristic of the Ta-Ox MTJ is symmetric for $V_{BE} = 0$ (fig. 1), it can be clearly seen in fig. 3 that the I_C current/voltage characteristic is asymmetric and this asymmetry increases when V_{BE} increases. When V_{CB} is negative, the current of ballistic electron is not allowed to pass the base/collector barrier (fig. 3b, left). Consequently, a negative current I_C is observed, which reflects only the tunneling of thermalized electrons from the collector into the base. This part of the I_C current/voltage curve is then necessarily weakly dependent on V_{BE} . When V_{CB} is positive, a part of the current of ballistic electron is allowed to pass the base/collector barrier (fig. 3b, right). In this case, a positive I_C collector current is observed, which corresponds to the superposition of the tunnelling current of thermalized electrons between base and collector and the ballistic current from the emitter to the collector. The I_C in the positive V_{CB} quadrant is then higher than in the negative V_{CB} quadrant. The amount of hot ballistic electrons depends on λ and, for a given multilayer, on V_{BE} . Indeed, an increase of V_{BE} gives rise to an increase of the ballistic current, and so $I_C(V_{CB})$ becomes more and more asymmetric as observed experimentally. Especially, for $V_{CB} = 0$, a non-zero current is observed which increases with V_{BE} (inset in fig. 3a). This is the real hot-electron current part received by the collector which results in a voltage across the base/emitter junction.

More striking is the characteristic observed by subtracting $I_C(V_{CB})$ characteristics measured for V_{BE} equal to 450 mV and 625 mV (empty circles). In this way, the symmetric current of thermalized electrons from the base/collector barrier cancels and information on the ballistic current can be readily extracted. The result is plotted in fig. 4 and illustrates the above discussion.

These interpretations are supported by computed transport characteristics of hot-electron 3-terminal devices [9]. Modelling of this device requires calculation of several tunnel currents: i) The current of thermalized electrons. The total injected current I_E going through the EB

barrier biased at V_{BE} and the current of thermal electrons I_{BC} going from the base to the collector biased at V_{CB} . ii) The current of hot electrons injected with an energy $e \times V_{BE}$ above the Fermi level of the base electrode. Even if the transport of the hot electrons injected in the base is a result of several complex phenomena [9], a simple model of the transport of the hot electrons can be considered: we have assumed that every scattered electron in the base does not contribute to the ballistic current and so that I_{EC} is only due to electrons conserving their initial energy. This model is in agreement with earlier calculations from ref. [14].

As we focus here on the transport of hot electrons and in order to simplify the computations, the simplest band structure for the different materials, *i.e.* parabolic bands (free electron), has been used. Then, a rigorous free-electron model was applied in order to compute currents and therefore we took into account the transverse (in-plane) motion of the electrons [15]. To model the electrode bands, we used the parameters proposed by Davis *et al.* [16]. The barrier parameters have been chosen to fit current/voltage characteristics of our real tunnel junctions. A mean free path of 5 nm (respectively, 2.5 nm) for the spin up (respectively, down) electrons has been chosen in accordance with recent measurements made by Vlutters *et al.* [17]. Finally, the electron mass in the barrier was taken to be $0.4m_{e-}$, the estimated value computed for crystalline alumina and in the range of values measured for amorphous SiO_2 .

Based on the use of realistic parameters for the tunnel barriers, a quite good agreement is found between experiments and calculations as reported in figs. 3 and 4. Especially, we were able to reproduce theoretically the variation of the non-zero collector current at $V_{CB} = 0$. This asserts the origin of the real hot-electron current part received by the collector and hence the comprehensive picture of hot-electron transfer given in this paper.

However, calculations predict also a spin-dependent transport of the hot electrons, which could not be observed in these 3-terminal devices. Indeed, reversing the magnetization of the middle $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ electrode did not change the characteristic of the hot-electron transfer (fig. 3a). In his pioneering paper [2], Heiblum listed all hot-electron loss mechanisms which may appear in 3-terminal devices. Many of them can also be invoked to explain spin memory loss mechanisms and two will be discussed here. Firstly, the degradation of the bottom Al-Ox junction performances will decrease the spin polarization of the hot injected electrons (this is also corroborated by the strong drop of TMR with applied emitter/base voltage). Secondly, in an earlier work [18], the appearance of Poole-Frenkel emission mechanism for single Ta-Ox barrier at low temperature and bias voltages around 400 mV has been evidenced (typically the energy of the hot electrons). Such a mechanism would depolarize the electrons in the conduction band of the insulator, inducing a spin memory loss. Future developments are required to conclude on the lack of hot-electrons spin-dependent transport. They include: i) improvement of technology to keep the as-deposited Al-Ox properties and ii) improvement of the base/collector insulator material. Then the properties of insulating materials used for the base/collector junction can be studied and injecting hot electrons into a barrier allows to study its electrical transport processes without applying high voltages to its electrodes. So then the existence of a Poole-Frenkel transport mechanism can be checked even for low breakdown voltage junctions.

Besides the original study of combining spin polarization with hot-electron transport in a 3-terminal, a $M_1/I/M_2/I/M_3$ structure can be used to measure the properties of non-equilibrium spin-dependent hot-electron transport in the range of 0.5 to 4 eV. This energy range is difficult to access with non-solid-state integrated electron injection sources [19]. Some experimental results have been reported recently with integrated spin-valve transistors [17]. The different contributions to the hot-electron mean free path can be differentiated and these results supply theoretical models with parametric data.

On the other hand, optimization of these 3-terminal device structures is the keystone for new functionalities of a new generation of magnetic-field-dependent devices like asymmetric diodes or hot-electron magnetic-field-dependent transistors based on the control of the hot-electrons transmission [9].

* * *

The authors thank C. TIUSAN, O. LENOBLE and J. GREGG for valuable discussions. The authors thank J. HUMBERT, M. ALNOT, D. MULOT, E. RAFIDISON and S. ROBERT for technical assistance. The authors thank M. KLÄUI for critical reading of the manuscript. This work is supported by the EC-IST program “NanoMEM” No. IST-1999-13471, and partially by “La Région Lorraine”.

REFERENCES

- [1] MEAD C. A., *J. Appl. Phys.*, **32** (1961) 646.
- [2] HEIBLUM M., *Solid-State Electron.*, **24** (1981) 343.
- [3] MURATAKE S., WATANABE M., SUEMASU T. and ASADA M., *Electron. Lett.*, **28** (1992) 1002; SAITOH W., SUEMASU T., KOHNO Y., WATANABE M. and ASADA M., *Jpn. J. Appl. Phys.*, **34** (1995) L1254.
- [4] HEIBLUM M., THOMAS D. C., KNOEDLER C. M. and NATHAN M. I., *Appl. Phys. Lett.*, **10** (1985) 1105.
- [5] MOODERA J. S., KINDER L. R., WONG T. M. and MESERVEY R., *Phys. Rev. Lett.*, **74** (1995) 3273.
- [6] SHANG C. H., NOWAK J., JANSEN R. and MOODERA J. S., *Phys. Rev. B*, **58** (1998) R2917; JANSEN R. and MOODERA J. S., *J. Appl. Phys.*, **83** (1998) 6682; SOUSA R. C., SUN J. J., SOARES V., FREITAS P. P., KLING A., DA SILVA M. F. and SOARES J. C., *Appl. Phys. Lett.*, **73** (1998) 3288.
- [7] MONSMA D. J., VLUTTERS R. and LODDER J. C., *Science*, **281** (1998) 407.
- [8] STEIN S., SCHMITZ R. and KOHLSTEDT H., *Solid. State Commun.*, **117** (2001) 599.
- [9] HEHN M., MONTAIGNE F. and SCHUHL A., submitted to *Phys. Rev. B* (2002).
- [10] HEHN M., LENOBLE O., LACOUR D., FÉRY C., PIÉCUC M., TIUSAN C. and OUNADJELA K., *Phys. Rev. B*, **61** (2000) 11643.
- [11] OEPTS W., VERHAGEN H. J., DE JONGE W. J. M. and COEHOORN R., *Appl. Phys. Lett.*, **73** (1998) 2363.
- [12] ROTTLÄNDER P., HEHN M., LENOBLE O. and SCHUHL A., *Appl. Phys. Lett.*, **78** (2001) 3274.
- [13] BRINKMAN W. F., DYNES R. C. and ROWELL J. M., *J. Appl. Phys.*, **41** (1971) 1915.
- [14] FILIPE A., PhD Thesis, Ecole Polytechnique (1997).
- [15] MONTAIGNE F., HEHN M. and SCHUHL A., *Phys. Rev. B*, **64** (2001) 144402.
- [16] DAVIS A. H. and MACLAREN J. M., *J. Appl. Phys.*, **87** (2000) 5224.
- [17] VLUTTERS R., JANSEN R., VAN’T ERVE O. M. J., KIM S. D. and LODDER J. C., *J. Appl. Phys.*, **89** (2001) 7305.
- [18] ROTTLÄNDER P., HEHN M. and SCHUHL A., *Phys. Rev. B*, **65** (2002) 054422.
- [19] DROUHIN H.-J., *Phys. Rev. B*, **62** (2000) 556.