



**HAL**  
open science

**Préparation et caractérisation d'un alliage amorphe ferrimagnétique de GdCo entrant dans la conception de jonctions tunnel magnétiques Résistance des jonctions tunnel magnétiques aux rayonnements ionisants**

Yann Conraux

► **To cite this version:**

Yann Conraux. Préparation et caractérisation d'un alliage amorphe ferrimagnétique de GdCo entrant dans la conception de jonctions tunnel magnétiques Résistance des jonctions tunnel magnétiques aux rayonnements ionisants. Matière Condensée [cond-mat]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2005. Français. NNT: . tel-00182425

**HAL Id: tel-00182425**

**<https://theses.hal.science/tel-00182425>**

Submitted on 25 Oct 2007

**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.

**THESE**

pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER**

Spécialité : **Physique**

Présentée et soutenue publiquement le 10 octobre 2005 par

**Yann CONRAUX**

---

*Préparation et caractérisation d'un alliage amorphe  
ferrimagnétique de GdCo entrant dans la conception de jonctions  
tunnel magnétiques*

*Résistance des jonctions tunnel magnétiques  
aux rayonnements ionisants*

---

**JURY**

**René-Louis INGLEBERT : Président**

**Jean-François BOBO : Rapporteur**

**Alain SCHUHL : Rapporteur**

**Jean-Pierre NOZIERES : Directeur de Thèse**

**Laurent RANNO : Examineur**

*Les gens qui ne rient jamais ne sont pas des gens sérieux (Alphonse Allais)*

## Remerciements

Ces travaux de thèse présentés dans ce mémoire ont été menés au laboratoire Spintronique et Technologies des Composants du CEA et du CNRS, et également au sein du Laboratoire Louis Néel du CNRS. Je tiens à remercier toutes les équipes, chercheurs, techniciens, étudiants et administratifs de ces laboratoires pour tous les moments passés ensembles, bons comme difficiles !

Je remercie tout particulièrement mon directeur de thèse, Jean-Pierre NOZIERES, directeur du laboratoire SPINTEC, pour avoir su me motiver quand il le fallait, et m'avoir donné l'opportunité de commencer, et surtout terminer ces travaux de thèse. Et ça n'a pas été tous les jours facile ! Je tiens à le remercier également pour sa sympathie et son écoute, ce qui fait que nos relations, au fil du temps, allaient plus loin que la simple interaction directeur de thèse / doctorant... Je lui témoigne donc toute ma gratitude et toute mon amitié.

Je remercie cordialement René-Louis INGLEBERT d'avoir présidé le Jury de soutenance de cette thèse, Jean-François BOBO et Alain SCHUHL, qui ont bien voulu être les rapporteurs de ce mémoire, ainsi que Laurent RANNO en tant qu'examineur, et fabuleux collègue de travail.

Je voudrais également remercier les collaborateurs de laboratoires extérieurs avec qui j'ai eu le privilège de travailler, particulièrement Marcel TOULEMONDE, du Centre Interdisciplinaire de Recherche Ions Lourds du GANIL de Caen, et Victor DA COSTA de l'Institut de Physique et de Chimie des Matériaux de Strasbourg.

Un grand merci à mes collègues de SPINTEC, Lucian PREJBEANU et RICARDO SOUSA, qui ont contribué activement à ces travaux de thèse.

Merci également aux personnes qui ont concouru de près ou de loin à l'allègement de ma dure besogne : Catherine BROISIN, Philippe DAVID, David BARRAL, Jean-Sébastien PELLE, Jean-Claude GENNA, Jean-Claude TISSOT, Jacques MARCUS, Richard HAETTEL, Baptiste CARVALLO, Kamel OUNADJELA, Sabine DOMINGUES, Eliane FORET, Véronique FAUVEL, Annick LIENARD, Sandra MULLER...

Merci à toute « l'équipe », avec qui j'ai passé de bien agréables moments : Vincent BALTZ, Emmanuelle ALGRE, Jérôme MORITZ (« le Bureau des Affaires Non Classées »), Sébastien PETIT, Ioana FIRASTRAU, Marta KEREKES, Gilles GAUDIN, Olivier REDON, Bernard DIENY, Jean-Christophe TOUSSAIN, Fabrice BERNARD-GRANGER, Liliana BUDA, Virgile JAVERLIAC, Christophe TIRION, Edouard WAGNER, Kyung-Jing LEE,

Stéphane AUFFRET, Bernard RODMACQ, Anatoly VEDYAEV, Mohamed ASBAHI, Hanna GLACZYNSKA, Ursula EBELS, Claire BARADUC, Alexandre VIEGAS, Dana STANESCU, Christophe DULUARD, Alina DEAC, Hervé ACHARD, Gérard CASALI, Ahmad BSIESY, Sandra MONSO, Jean-Philippe ATTANE, Emmanuel FAVRE-NICOLIN, Yan PENNEC, Jan VOEGEL... Un grand merci à tous ceux que j'aurais malencontreusement oublié !

Finalement, un grand merci à tous ceux qui m'ont soutenu avant et pendant ces longues années, ainsi que pour la suite : mes parents, le frangin et la frangine, les grands-parents, Rachel ma petite femme et ses parents ; mes chers amis et collègues de déboires musicaux en tout genre : Rémi, Jérôme, Chris, CedCed K & Chameau (« Papy Team TOBM Task Force ») ; Bob & Nath, Fabrice ; Manu & Brigitte (« Whisky Of Bloooooood ! ») ; l'équipe du Mark XIII : Skwal, Max & Aymeric (« Tanz Machina ! ») ; Laurent & Yves (« Qu'est ce que t'en dis ? ») ; mes vieux potes de toujours : Jujutte, Dyonisos & Hogodaï (« Push-Pull ») ; les adeptes du « Forum » : Murphy, Diesel & la Burne ; les « amis de ma femme » qui étaient là, ils ont tout vu : Olivier, Sébastien & Maud ; le « photographe officiel » Chapeau...

Comme le veut la formule consacrée, un grand « coucou » à tous les gens que j'ai oubliés en route... Errare Humanum Est !

## Table des matières

<b>Introduction</b>	1
<b>Chapitre 1 – Généralités sur les jonctions tunnel magnétiques</b>	3
<b>1.1 Introduction</b>	3
<b>1.2 Les jonctions tunnel magnétiques : définition</b>	4
<b>1.3 Courant tunnel à travers une barrière isolante</b>	6
<b>1.4 Modèle de Jullière pour les jonctions tunnel magnétiques</b>	9
<b>1.5 Les modèles plus élaborés</b>	13
1.5.1 Modèle de Slonczewski	13
1.5.2 Validité du modèle de Jullière pour le courant tunnel dépendant du spin	14
1.5.3 Autres modèles à température nulle	16
1.5.4 Influence de la température sur une barrière tunnel	17
<b>1.6 Conclusion sur les différents modèles étudiés</b>	20
<b>1.7 Réalisations sur les jonctions tunnel magnétiques</b>	21
1.7.1 Etat de l’art et application aux MRAM	21
1.7.2 Nature de l’oxyde de la barrière isolante	23
1.7.3 Electrodes magnétiques	24
1.7.4 Effets des interfaces – Défauts dans les jonctions tunnel magnétiques	27
<b>1.8 Conclusion du chapitre 1</b>	30
<b>Références du chapitre 1</b>	31
<b>Chapitre 2 – Techniques d’élaboration et de caractérisation de multicouches et de jonctions tunnel magnétiques</b>	35
<b>2.1 Techniques d’élaboration de multicouches et de jonctions tunnel     magnétiques</b>	35
2.1.1 Dépôts de couches minces par pulvérisation cathodique	35
2.1.2 Fonctionnement du bâti de dépôt Plassys	36
2.1.2.1 Généralités	36

2.1.2.2 Principe de l'oxydation naturelle et module d'oxydation du bâti Plassys	40
2.1.3 Structuration par lithographie optique	42
2.1.4 Echantillons préparés dans le bâti Plassys	46
2.1.4.1 Vannes de spin	46
2.1.4.2 Miroirs de spin	48
2.1.4.3 Demi-jonctions tunnel magnétiques	49
2.1.4.4 Couches fines de $Gd_xCo_{1-x}$	49
2.1.5 Fabrication de jonctions tunnel magnétiques IPCMS	51
<b>2.2 Techniques de caractérisation de multicouches et de jonctions tunnel magnétiques</b>	<b>53</b>
2.2.1 Caractérisation structurale – Cartographie des courants tunnel (AFM/TUNA)	53
2.2.2 Caractérisation des propriétés magnétiques et électriques	55
2.2.2.1 Magnétomètre à échantillon vibrant (VSM)	55
2.2.2.2 Testeur sous pointes (Phase Metrics)	56
2.2.2.3 Effet Hall extraordinaire (EHE)	57
<b>Références du chapitre 2</b>	<b>61</b>
<b>Chapitre 3 – Préparation et caractérisation de couches minces d'alliage amorphe ferrimagnétique de <math>Gd_xCo_y</math></b>	<b>62</b>
<b>3.1 Contexte des travaux</b>	<b>62</b>
3.1.1 Etat de l'art des MRAM à base de jonctions tunnel magnétiques et limitations d'une architecture à écriture par un champ magnétique externe	62
3.1.2 Avantages de l'utilisation d'une couche libre d'AAF dans une JTM	65
<b>3.2 Caractéristiques générales d'un alliage amorphe ferrimagnétique de <math>Gd_xCo_{1-x}</math></b>	<b>71</b>
3.2.1 Introduction	71
3.2.2 Choix du $Gd_xCo_{1-x}$ en tant qu'AAF dans une JTM	71
<b>3.3 Aimantation des couches minces de <math>Gd_xCo_{1-x}</math></b>	<b>74</b>
<b>3.4 Transport dans les couches minces de <math>Gd_xCo_{1-x}</math></b>	<b>78</b>

3.4.1	Résistance électrique	78
3.4.2	Magnétorésistance	78
3.4.3	Effet Hall extraordinaire	78
3.4.3.1	<i>Courbes <math>R_{EHE}(H^\perp, T)</math> de couches de GdCo en pleine tranche</i>	79
3.4.3.2	<i>Courbes <math>R_{EHE}(H^\perp, T)</math> à haut champ <math>H</math> d'une couche de GdCo lithographiée</i>	88
<b>3.5</b>	<b>Origines de l'anisotropie magnétique dans les couches minces de <math>Gd_xCo_{1-x}</math></b>	97
3.5.1	Résultats expérimentaux	97
3.5.2	Origines de l'anisotropie magnétique perpendiculaire dans le $(Gd_xCo_{1-x})_95Zr_5$	98
3.5.2.1	<i>Anisotropie magnétique perpendiculaire liée à des structures cristallines à petite échelle et aux procédés de dépôt</i>	98
3.5.2.2	<i>Anisotropie magnétique perpendiculaire liée aux propriétés magnétostrictives de l'alliage amorphe de GdCo</i>	99
<b>3.6</b>	<b>Conclusions du chapitre 3</b>	100
	<b>Références du chapitre 3</b>	101
<b>Chapitre 4</b>	<b>Résistance des jonctions tunnel magnétiques aux rayonnements ionisants</b>	104
<b>4.1</b>	<b>Introduction et travaux préliminaires</b>	104
4.1.1	Contexte des travaux	104
4.1.2	Effets des rayonnements ionisants sur la matière et l'électronique	104
4.1.3	Cas des jonctions tunnel magnétiques	105
4.1.4	Quelques résultats expérimentaux	107
4.1.5	Préparation des travaux d'irradiation	108
<b>4.2</b>	<b>Détails expérimentaux</b>	111
4.2.1	Introduction	111
4.2.2	Banc de mesures expérimentales	112
4.2.3	Nature des échantillons	114

4.2.3.1 Jonctions tunnel magnétiques lithographiées	114
4.2.3.2 Miroirs de spin	116
4.2.3.3 Demi-jonctions tunnel en pleine tranche	116
<b>4.3 Résultats expérimentaux</b>	<b>118</b>
4.3.1 Jonctions lithographiées	118
4.3.1.1 Magnétorésistance tunnel des jonctions irradiées	118
4.3.1.2 Propriétés magnétiques des jonctions irradiées	125
4.3.1.3 Résistance électrique tunnel des jonctions irradiées	126
4.3.1.4 Caractéristique $I(V)$ d'une jonction irradiée	131
4.3.2 Miroirs de spin	138
4.3.3 Demi-jonctions tunnel en pleine tranche	141
<b>4.4 Conclusions du chapitre 4</b>	<b>147</b>
<b>Références du chapitre 4</b>	<b>148</b>
<b>Conclusions</b>	<b>149</b>
<b>Lexique des abréviations employées</b>	<b>150</b>

## Introduction

Ce travail de thèse, mené conjointement aux Laboratoires Louis Néel (CNRS) et Spintronique et Technologies des Composants (CNRS/CEA) de Grenoble, ainsi qu'au Centre Interdisciplinaire de Recherche Ions/Lasers (CEA/CNRS) de Caen, a la particularité de regrouper deux axes de recherches distincts mais imbriqués dans un cadre commun, celui des jonctions tunnel magnétiques appliquées aux MRAM, les mémoires magnétiques à accès aléatoire.

Les MRAM sont actuellement en passe de supplanter les autres formes de mémoires à accès aléatoire utilisant des états de charge électrique, et ce grâce à leurs nombreux avantages techniques. Elles sont non volatiles, très denses, rapides, peu gourmandes en énergie, et avec un nombre de cycles écriture/lecture au moins aussi important que les autres types de mémoire. Un des avantages avancés « a priori » des MRAM à base de jonctions tunnel magnétiques est leur résistance aux rayonnements ionisants, résistance dont sont faiblement pourvues les mémoires à états de charge électrique. Il est important de vérifier si cette affirmation est « a fortiori » fondée. Une MRAM peut également présenter quelques inconvénients : l'architecture actuellement retenue d'une MRAM basée sur l'utilisation de jonctions tunnel magnétiques peut exhiber des erreurs d'adressage, dont une intégration de plus en plus poussée ferait accroître le nombre.

Dans ce contexte, ce travail de thèse a été mené sur deux fronts : (i) l'étude d'un matériau, l'alliage amorphe ferrimagnétique de GdCo, entrant dans la conception de jonctions tunnel magnétiques dédiées à une architecture alternative de MRAM permettant d'éliminer les éventuelles erreurs d'adressage ; (ii) l'étude de l'impact des rayonnements ionisants sur les propriétés fonctionnelles des jonctions tunnel magnétiques.

Ce mémoire de thèse est composé de quatre chapitres.

Dans le premier chapitre, nous présenterons les généralités concernant les jonctions tunnel magnétiques : la physique sous-jacente, leur fonctionnement, les divers modèles permettant de décrire leur comportement ainsi que l'état de l'art technologique quant à leur conception.

Le deuxième chapitre expose les différentes techniques d'élaboration de multicouches minces et de jonctions tunnel magnétiques, ainsi que leurs techniques de caractérisation que

nous seront appelés à employer durant tout le travail de thèse. Ce chapitre présente également les divers échantillons qui seront utilisés pendant ces travaux.

Le troisième chapitre est consacré à l'étude préliminaire de l'alliage amorphe ferrimagnétique de GdCo entrant dans la composition des électrodes des jonctions tunnel magnétiques. Nous décrirons ici l'architecture alternative de MRAM envisagée, les caractéristiques physiques de cet alliage et nous conclurons ce chapitre par les perspectives consécutives à ces travaux.

Le quatrième et dernier chapitre est dédié à l'étude de la résistance des jonctions tunnel magnétiques aux rayonnements ionisants. Nous débuterons ce chapitre en décrivant le contexte des travaux d'irradiation. Nous discuterons par la suite des détails expérimentaux ainsi que des résultats obtenus après irradiations par des ions lourds rapides sur des jonctions tunnel magnétiques opérationnelles. Nous compléterons ces travaux par des mesures d'endommagements dus à ces mêmes ions sur divers types d'échantillons nous permettant d'appréhender les différents effets des irradiations sur les propriétés fonctionnelles et sur la structure même des jonctions tunnel magnétiques.

# Chapitre 1

## Généralités sur les jonctions tunnel magnétiques

### 1.1 Introduction

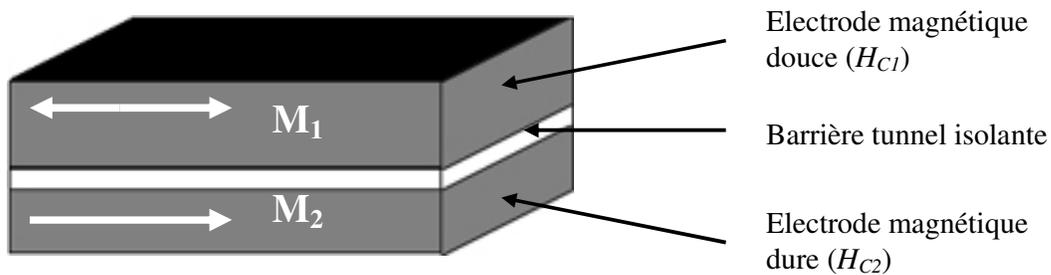
Jusqu'à une époque récente, le spin de l'électron a été négligé dans l'interprétation des phénomènes de transport par effet tunnel. La découverte de la magnétorésistance géante en 1988 [Bai-PRL-88] a fait émerger une nouvelle branche de la physique, l'électronique de spin, dont les applications les plus directes se manifestent en micro (nano) électronique. Les dispositifs les plus représentatifs sont les vannes de spin [Die-PRB-92] et les jonctions tunnel magnétiques (JTM) [Moo-PRL-95].

Dans les JTM, les électrons sont injectés perpendiculairement au plan d'une multicouche métal ferromagnétique/isolant/métal ferromagnétique, se polarisent au passage des électrodes magnétiques et traversent par effet tunnel la barrière isolante. C'est l'orientation relative des aimantations des deux électrodes et la nature même de la barrière qui conditionnent la transmission des électrons par effet tunnel. Ce fonctionnement a déjà été proposé et étudié par Jullière et ce dès 1975 [Jul-PL-75]. Nous verrons par la suite dans ce chapitre que de nombreux modèles théoriques plus ou moins élaborés ont été proposés pour expliquer les résultats expérimentaux.

Les applications associées aux JTM sont nombreuses et concernent principalement le domaine des capteurs de champs magnétiques, mais surtout le domaine des mémoires magnétiques à accès aléatoire (MRAM).

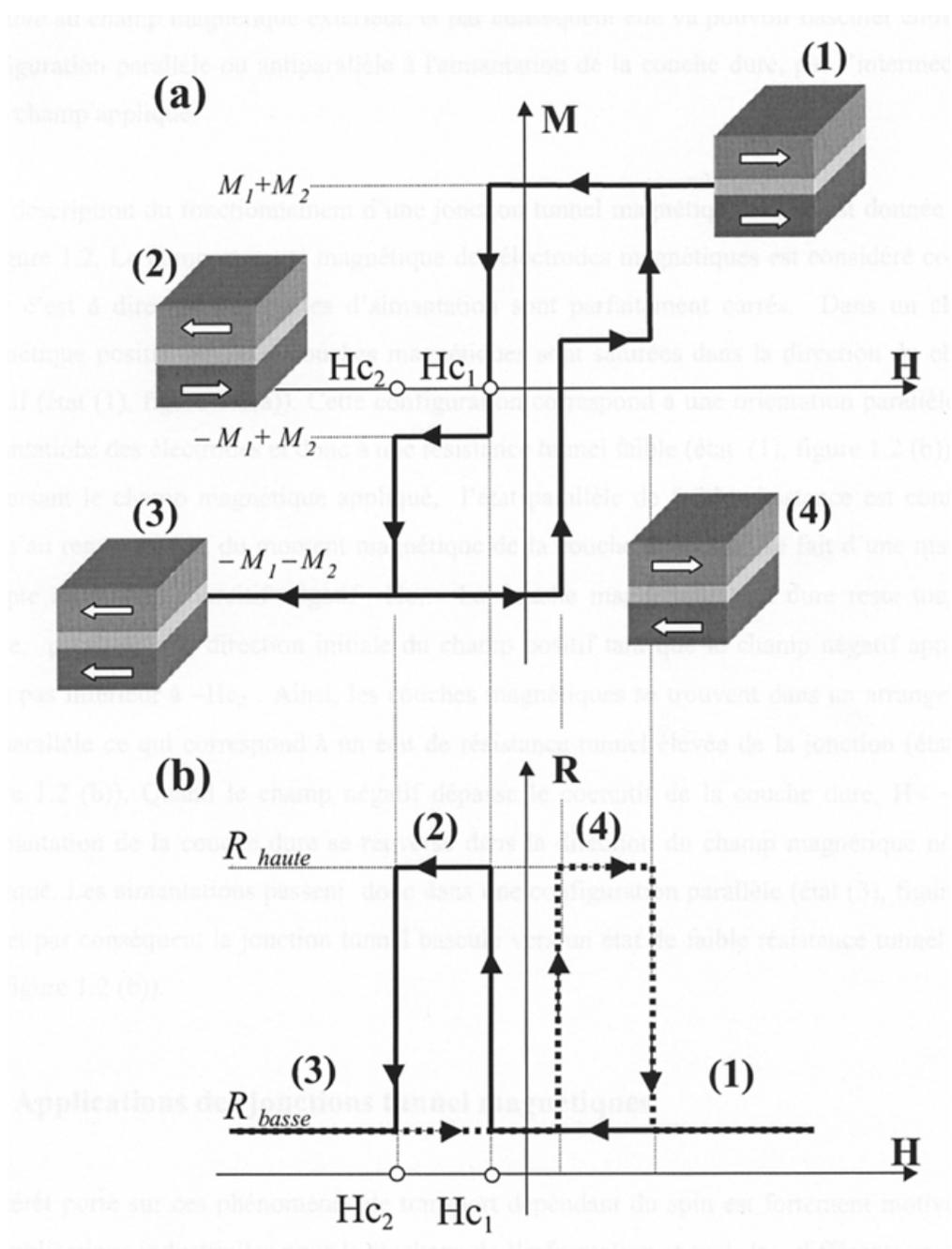
## 1.2 Les jonctions tunnel magnétiques : définition

Une JTM dans sa version « simplifiée » est un empilement (Fig. 1.1) de deux électrodes ferromagnétiques ayant des champs coercitifs différents séparées par une fine couche isolante faisant office de barrière tunnel. Le cycle d'hystérésis magnétique d'une telle structure est schématisé par la figure 1.2a sur laquelle on retrouve les champs coercitifs  $H_{C1}$  et  $H_{C2}$  et les aimantations  $M_1$  et  $M_2$  des couches 1 et 2 respectivement avec arbitrairement  $H_{C1} < H_{C2}$ . Le courant est quant à lui injecté perpendiculairement au plan des couches (géométrie CPP – *Current Perpendicular to Plane*) et sa conductivité va dépendre de l'orientation relative de l'aimantation des deux électrodes ferromagnétiques.



**Figure 1.1.** Jonction tunnel magnétique (JTM) simplifiée avec ses deux électrodes magnétiques et sa barrière tunnel isolante.

Concrètement, le courant électrique qui traverse la JTM va varier lorsque l'orientation relative des aimantations  $M_1$  et  $M_2$  varie sous l'effet d'un champ magnétique externe variable. Selon le champ appliqué et l'état magnétique de la JTM, nous voyons que sa résistance électrique peut se trouver dans deux états distincts (Fig. 1.2b). Le fait que l'on puisse manipuler la résistance électrique de cette structure par simple application d'un champ magnétique est appelé magnétorésistance tunnel (TMR). Nous allons en étudier les principes physiques par la suite.



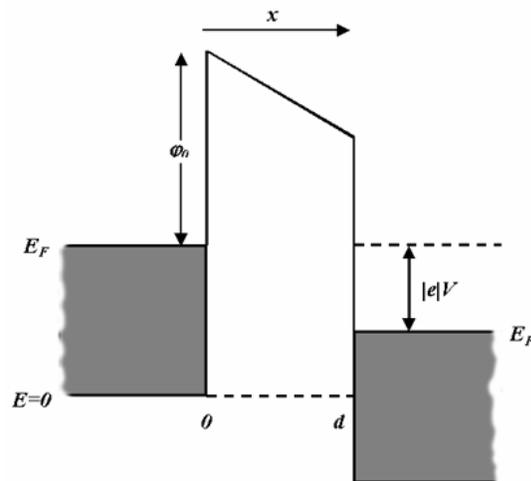
**Figure 1.2.** Fonctionnement d'une jonction tunnel idéale. Le schéma (a) présente le cycle d'aimantation totale  $M(H)$  de la jonction tunnel ( $M_1$  et  $M_2$  aimantation des électrodes 1 et 2 respectivement) avec l'état magnétique des électrodes ([1] à [4]) et  $H_{C1} < H_{C2}$ . La magnétorésistance  $R(H)$  est représentée sur le schéma (b) à partir de l'état magnétique de la jonction en fonction de  $H$  [Tiu-th-00].

### 1.3 Courant tunnel à travers une barrière isolante

Dans le cas d'une jonction tunnel, nous allons nous intéresser à la densité de courant tunnel  $J$  exprimée en fonction de la tension  $V$  appliquée aux bornes ainsi qu'à sa dérivée  $dJ/dV$ . La théorie la plus simple pour décrire ce courant d'électrons est celle de Simmons [Sim-JAP-63][Sim-JAP-64] qui nous fournit une interprétation analytique de la densité de courant  $J$  en fonction de la tension  $V$  et des paramètres de la barrière isolante que sont l'épaisseur physique et la hauteur de potentiel de la barrière.

Ce modèle se base sur l'approximation des électrons libres, donc nous supposons que les électrons n'interagissent pas entre eux, ni avec les degrés de liberté intrinsèques de la barrière et des électrodes métalliques. Un électron libre traversant la barrière tunnel peut alors se représenter par une fonction d'onde plane incidente. Une partie de cette onde est réfléchiée à l'interface métal/isolant tandis que l'autre pénètre dans la barrière avec une amplitude décroissant exponentiellement avec l'épaisseur.

Nous pouvons représenter, pour un électron, la barrière de potentiel à franchir à l'aide du diagramme d'énergie schématisé sur la figure 1.3. Ici, les deux électrodes métalliques  $A$  et  $B$  sont séparées par une barrière isolante d'épaisseur  $d$  et de hauteur de potentiel  $\phi$  par rapport au niveau de Fermi des métaux. Une tension  $+V$  est appliquée à l'électrode  $B$ . En notant  $n_A$  et  $n_B$  les densités d'états aux énergies  $E$  et  $E+eV$  respectivement, le nombre d'électrons d'énergie  $E$  qui transitent des électrodes  $A$  à  $B$  est proportionnel :



**Figure 1.3.** Diagramme d'énergie pour un électron libre dans une jonction métal/isolant/métal

- au nombre d'états occupés à une énergie  $E$  au-dessus du niveau de Fermi  $E_{FA}$  dans l'électrode  $A$ , soit  $n_A(E).f(E)$  ;
- au nombre d'états inoccupés à la même énergie  $E$  dans l'électrode  $B$ , soit  $n_B(E+eV).[1-f(E+eV)]$  ;
- au carré de la matrice  $|M_{AB}|$  représentant la probabilité de transmission de  $A$  à  $B$ .

En intégrant, on obtient le courant tunnel  $I_{A>B}(V)$  suivant :

$$I_{A>B}(V) = \int_{-\infty}^{+\infty} n_A(E) \cdot n_B(E + eV) |M_{AB}|^2 f(E) [1 - f(E + eV)] \cdot dE \quad (1.1)$$

$f(E)$  est la fonction de Fermi-Dirac donnant la probabilité d'occupation des états disponibles à l'énergie  $E$  dans l'électrode  $A$  et  $[1 - f(E + eV)]$  la probabilité d'avoir des états vides à l'énergie  $E + eV$  dans l'électrode  $B$ . Le courant tunnel total  $I_{AB}$  est alors la somme physique (différence entre les deux courants de sens opposé) des deux courants  $I_{A>B}$  et  $I_{B>A}$  soit

$$I_{AB} = I_{A>B} - I_{B>A} \quad (1.2)$$

Pour calculer  $I(V)$ , Simmons utilise l'approximation *WKB* qui consiste à donner une estimation d'une équation différentielle linéaire dont le terme d'ordre de dérivation le plus élevé est affecté d'un petit paramètre. L'utilisation de l'approximation *WKB* n'est valable que pour une barrière ayant un potentiel variant lentement (barrière « douce »). On obtient alors une expression analytique à  $T$  nulle de la densité de courant en fonction de  $V$  appliquée tout en assimilant le profil réel de la barrière isolante à un profil rectangulaire dont la hauteur  $\bar{\varphi}_0$  est la valeur moyenne de  $\varphi_0(x)$ . L'expression de la densité de courant obtenue est :

$$J = J_0 \left[ \bar{\varphi}_0 \exp(-A\sqrt{\bar{\varphi}_0}) - (\bar{\varphi}_0 + eV) \exp(-A\sqrt{\bar{\varphi}_0 + eV}) \right] \quad (1.3)$$

$$\text{où } J_0 = e / 2\pi\hbar d^2 \quad , \quad A = 4\pi\beta x \sqrt{2m} / \hbar \quad , \quad \bar{\varphi}_0 = \frac{1}{x} \int_0^d \varphi_0(x) dx$$

Ici,  $d$  désigne l'épaisseur de la barrière, la constante  $\beta$  un facteur correctif dépendant de la tension appliquée  $V$  et  $\hbar$  la constante de Planck.

L'équation 1.3 peut être interprétée simplement comme étant la somme d'une densité de courant  $J_0 \bar{\varphi}_0 \exp(-A\sqrt{\bar{\varphi}_0})$  qui va de l'électrode  $A$  à l'électrode  $B$  et d'une densité de courant  $J_0 (\bar{\varphi}_0 + eV) \exp[-A\sqrt{\bar{\varphi}_0 + eV}]$  qui va de l'électrode  $B$  à l'électrode  $A$ . La somme nous donne le courant net de l'équation 1.3. Suivant cette équation, on voit que l'expression de la densité de courant tunnel  $J$  va dépendre de la tension appliquée  $V$ . Pour les MTJ, deux cas de figure vont se présenter suivant la valeur de  $V$ .

**$V \sim 0$  : gamme de tensions faibles**

Dans le cas présent, on considère simplement la barrière de potentiel comme étant simplement rectangulaire (Fig. 1.4).

On a alors  $\Delta d = d$  et  $\bar{\varphi}_0 = \varphi_0$ . La constante  $\beta$  est considérée proche de l'unité lorsque  $eV \sim 0$ , donc on peut considérer que  $A\sqrt{\bar{\varphi}_0} / 2 \gg 1$  et l'équation se réduit à :

$$J = J_L \sqrt{\bar{\varphi}_0} \cdot V \exp(-A\sqrt{\bar{\varphi}_0}) \quad (1.4)$$

$$\text{où } J_L = \left[ \frac{\sqrt{(2m)} \left( \frac{e}{h} \right)^2}{\Delta d} \right]$$

A partir de l'équation 1.4, la densité de courant tunnel peut alors simplement s'exprimer par :

$$J = \left[ \frac{\sqrt{2m\bar{\varphi}_0}}{d} \right] \cdot \left( \frac{e}{h} \right)^2 \cdot V \exp\left( \frac{-4\pi d}{h} \sqrt{2m\bar{\varphi}_0} \right) \quad (1.5)$$

 **$V < \varphi_0/e$  : gamme de tensions intermédiaires**

Aux vues du diagramme d'énergie présenté sur la figure 1.5, on pose dans ce cas ci

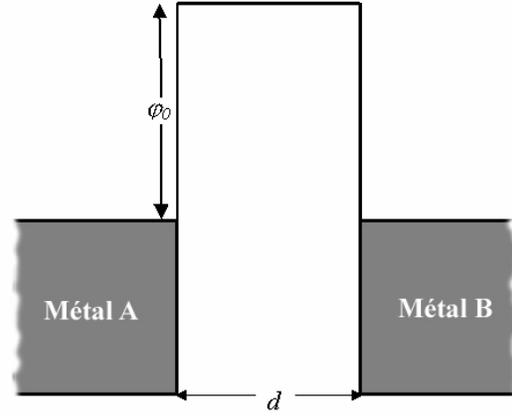
$\bar{\varphi}_0 = (\varphi_0 - \frac{eV}{2})$ , et on substitue cette expression dans l'équation 1.3.

Avec  $A = \frac{4\pi d \beta}{h} \sqrt{2m}$ ,  $J_0 = \frac{e}{2h\pi(\beta d)^2}$  et

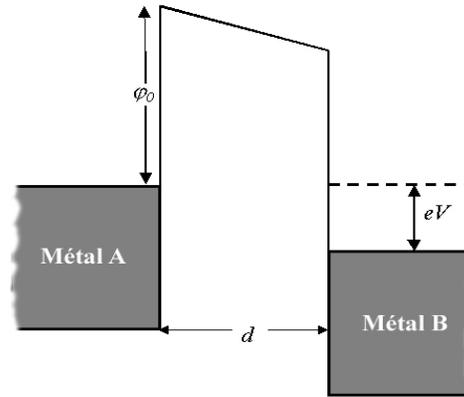
$\beta = 1$ , on trouve :

$$J = \frac{e}{2\pi h d^2} \left\{ \left( \varphi_0 - \frac{eV}{2} \right) \cdot \exp\left[ \frac{-4\pi d}{h} \sqrt{2m} \cdot \sqrt{\left( \varphi_0 - \frac{eV}{2} \right)} \right] - \left( \varphi_0 + \frac{eV}{2} \right) \cdot \exp\left[ \frac{-4\pi d}{h} \sqrt{2m} \cdot \sqrt{\left( \varphi_0 + \frac{eV}{2} \right)} \right] \right\}$$

(1.6)



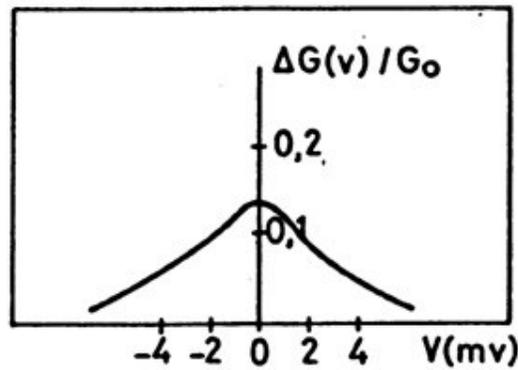
**Figure 1.4.** Diagramme d'énergie dans le cas d'une tension appliquée quasi-nulle. La barrière est considérée comme étant rectangulaire.



**Figure 1.5.** Diagramme d'énergie dans le cas d'une tension appliquée  $V < \varphi_0/e$ .

## 1.4 Modèle de Jullière pour les jonctions tunnel magnétiques

En 1975, Jullière [Jul-PL-75] avait mis en évidence le rôle prépondérant du spin des électrons dans le transport par effet tunnel dans des jonctions Fe/Ge/Co où une couche de  $10\text{ nm}$  composée du semi-conducteur Ge légèrement oxydé fait office de barrière (typiquement d'une hauteur de potentiel de  $100\text{ meV}$ ). A basse température ( $4,2\text{ K}$ ), ses observations font état d'une variation de la conductance électrique en fonction de l'orientation relative des aimantations des deux couches magnétiques (Fig. 1.6). Ce phénomène, qui est la magnétorésistance tunnel (TMR) s'explique par l'existence d'un courant tunnel à travers la barrière dépendant de la polarisation en spin des électrons de conduction des deux électrodes.



**Figure 1.6.** Conductance relative ( $\Delta G/G$ ) en fonction de la tension appliquée d'une jonction Fe-Ge-Fe à  $T = 4,2\text{ K}$ .  $\Delta G$  est la différence entre les deux valeurs de conductance correspondant aux aimantations relatives parallèle et antiparallèle des deux couches ferromagnétiques [Jul-PL-75].

A la vue de ces résultats, Jullière a proposé un modèle descriptif simple basé sur la notion de polarisation  $P$  des métaux ferromagnétiques définie comme étant la différence relative des densités d'états, au niveau de Fermi,  $n^{spin}(E_F)$  pour les deux bandes de spin (de configuration de spin  $\uparrow$  ou  $\downarrow$ ) :

$$P = \frac{n^\uparrow(E_F) - n^\downarrow(E_F)}{n^\uparrow(E_F) + n^\downarrow(E_F)} \quad (1.7)$$

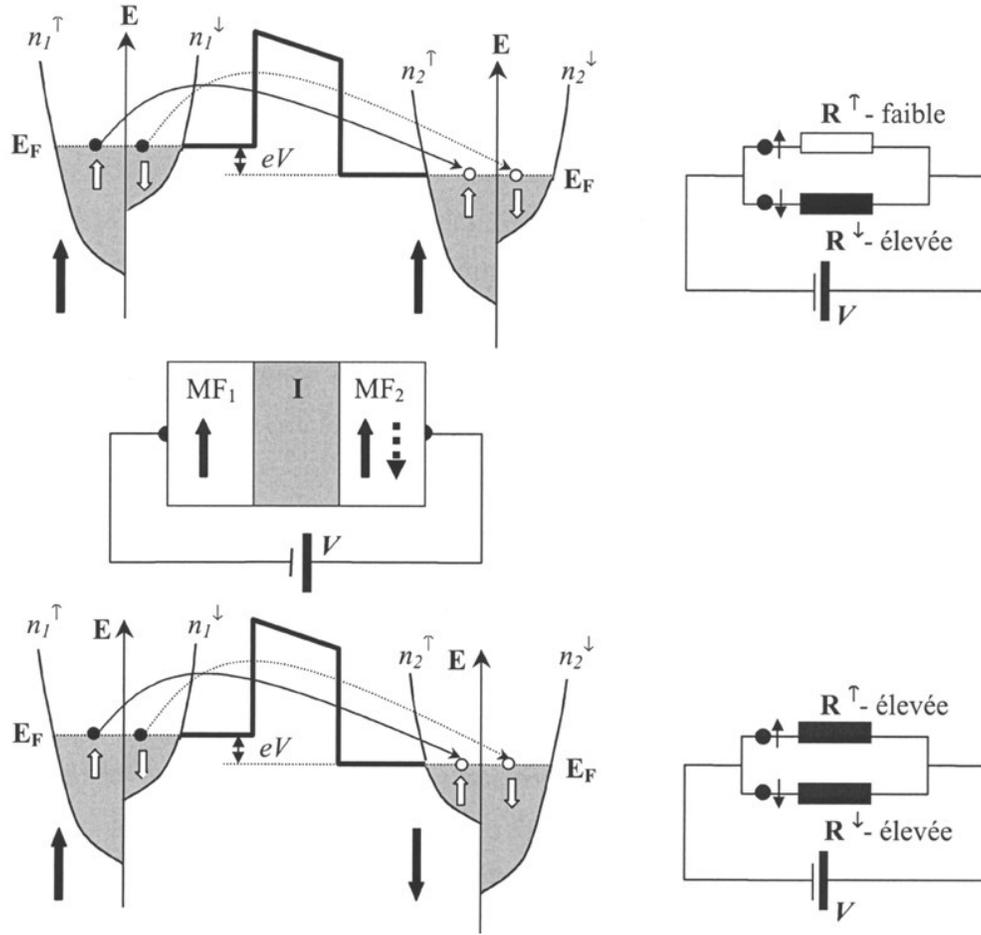
En supposant que l'électron conserve son état de spin lors de son passage à travers la barrière, on peut considérer que la conduction s'effectue par deux canaux indépendants (Fig. 1.7). La

conductivité pour chaque canal de spin est calculée par la règle d'or de Fermi. Celle ci stipule que la probabilité de passage d'un électron dans un état de spin donné est proportionnelle à la densité d'états disponibles au niveau de Fermi dans l'électrode réceptrice. De même, le nombre d'électrons candidats au passage à travers la barrière est proportionnel à la densité d'états initiaux dans l'électrode de départ. Il en résulte que pour chaque catégorie d'électrons (*spin up* et *spin down*) la conductivité tunnel  $G$  est proportionnelle au produit des densités d'états des deux électrodes, émettrice et réceptrice. Dans ce modèle à deux courants [Fer-JMP-76] chaque état de spin contribue de manière indépendante au courant tunnel. La conductivité totale est la simple somme des conductivités pour chaque canal. On obtient donc :  $G_{totale} = G^{\uparrow} + G^{\downarrow}$ . Avec  $n_1^{spin}(E_F)$  et  $n_2^{spin}(E_F)$  les densités d'états au niveau de Fermi des électrodes 1 et 2 on obtient :

$$\left\{ \begin{array}{l} G_{\text{parallèle}} \cong n_1^{\uparrow}(E_F)n_2^{\uparrow}(E_F) + n_1^{\downarrow}(E_F)n_2^{\downarrow}(E_F) \\ G_{\text{antiparallèle}} \cong n_1^{\uparrow}(E_F)n_2^{\downarrow}(E_F) + n_1^{\downarrow}(E_F)n_2^{\uparrow}(E_F) \end{array} \right. \quad (1.8)$$

Comme on peut clairement le voir sur la figure 1.7, dans une configuration parallèle des aimantations des deux matériaux ferromagnétiques, les densités d'états de spin  $\uparrow$ ,  $n_1^{\uparrow}(E_F)$  et  $n_2^{\uparrow}(E_F)$  sont majoritaires dans chacune des électrodes 1 et 2. La transmission des électrons de  $\uparrow$  se fait entre des états majoritaires de chaque côté de la barrière ce qui entraîne une conductance électrique importante pour ce canal de spin. Réciproquement, les densités d'états de spin  $\downarrow$ ,  $n_1^{\downarrow}(E_F)$  et  $n_2^{\downarrow}(E_F)$  sont minoritaires dans chacune des électrodes et entraînent une conductance électrique faible pour ce canal de spin. La résistance globale de la jonction tunnel magnétique étant équivalente à la mise en parallèle des résistances des deux canaux de spin, on obtient une résistance faible (conductance forte, dominée par le canal de spin  $\uparrow$ ).

D'une même manière, dans la configuration anti-parallèle des aimantations, les densités d'états  $n_1^{\uparrow}(E_F)$  et  $n_2^{\downarrow}(E_F)$  sont majoritaires, et les densités d'états  $n_1^{\downarrow}(E_F)$  et  $n_2^{\uparrow}(E_F)$  sont minoritaires. On voit clairement que les électrons de spin  $\uparrow$  initialement majoritaires et venant de l'électrode 1 n'ont pas assez d'états de spin  $\uparrow$  disponibles dans l'électrode 2 d'où une conductance tunnel faible pour canal de spin  $\uparrow$ , et que les électrons de spin  $\downarrow$  sont fortement minoritaires dans l'électrode 1 et ne peuvent combler tous les états de spin  $\downarrow$  à leur disposition dans l'électrode 2, d'où une conductance tunnel faible pour ce canal de spin  $\downarrow$ . Il en résulte une conductance globale faible et une résistance de la jonction tunnel élevée.



**Figure 1.7.** Effet tunnel entre deux métaux ferromagnétiques ( $MF_1$  et  $MF_2$ ) séparés par une barrière isolante  $I$  rectangulaire et déformée par une tension appliquée  $V$ . Les densités d'états  $n_1^\uparrow(E)$ ,  $n_1^\downarrow(E)$ ,  $n_2^\uparrow(E)$  et  $n_2^\downarrow(E)$  sont schématisées par des paraboles décalées en énergie par l'échange. En négligeant les phénomènes de *spin-flip* lors du passage à travers la barrière, les électrons de spin  $\uparrow$  et de spin  $\downarrow$  traversent alors la barrière de manière indépendante par deux canaux de spin distincts. La conduction totale à travers la barrière est alors modélisée par deux résistances électriques connectées en parallèle. Le schéma supérieur décrit le cas où les deux électrodes sont dans une configuration magnétique parallèle et le schéma inférieur le cas où les électrodes sont dans une configuration magnétique anti-parallèle [Tiu-th-00].

On développe alors l'équation décrivant la magnétorésistance tunnel  $TMR$  :

$$TMR = \frac{R_{ap} - R_p}{R_p} = \frac{G_p - G_{ap}}{G_{ap}} = \frac{(n_1^\uparrow n_2^\uparrow + n_1^\downarrow n_2^\downarrow) - (n_1^\uparrow n_2^\downarrow + n_1^\downarrow n_2^\uparrow)}{n_1^\uparrow n_2^\downarrow + n_1^\downarrow n_2^\uparrow} = \frac{2P_1 P_2}{1 - P_1 P_2} \quad (1.9)$$

où  $P_1$  et  $P_2$  désignent les polarisations au sens de Jullière des électrodes  $I$  et  $2$  respectivement. Cette quantité est sans dimension et s'exprime couramment en %. On remarquera que Jullière

n'introduit que la notion de polarisation électronique au niveau de Fermi et que les paramètres tels que l'épaisseur et la hauteur de la barrière ou la nature des électrodes n'interviennent pas ici. La conductance tunnel s'écrit alors :

$$G = G_{ff} (1 + P_1 P_2 \cos \theta) \quad (1.10)$$

où  $\theta$  est l'angle entre les directions d'aimantations des deux électrodes (Fig. 1.8) et  $G_{ff}$  la valeur moyenne de la conductance de surface.

## 1.5 Les modèles plus élaborés

Consécutivement aux premiers travaux de Jullière et à son modèle de magnétorésistance tunnel, de nombreux auteurs ont très largement amélioré ce dernier. L'avancée la plus significative dans ce domaine a été le développement d'un modèle proposé par Slonczewski [Slo-PRB-89] en 1989, qui intégrait pour la toute première fois la concordance des fonctions d'ondes à travers la barrière tunnel pour le transport dépendant du spin. Par la suite, différents auteurs ont proposé leurs modèles propres ou amélioré ceux déjà existants.

### 1.5.1 Modèle de Slonczewski

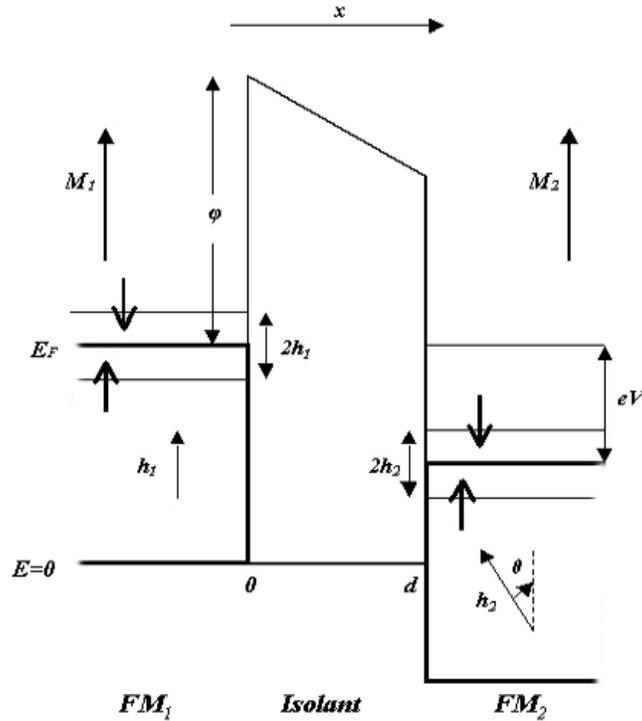
A partir de la théorie classique du courant tunnel [Bar-PRL-61] on suppose que les fonctions d'ondes électroniques émanant d'une des électrodes deviennent évanescentes dans la barrière isolante et qu'elles n'atteignent jamais l'autre électrode. Quand la barrière devient relativement mince, les fonctions d'ondes électroniques des deux électrodes se chevauchent dans l'isolant, et doivent être accordées dans l'ensemble de la barrière. La jonction doit donc être traitée comme un système quantique simple. Le modèle de Slonczewski [Slo-PRB-89] intègre dans les calculs du transport tunnel dépendant du spin cette concordance des fonctions d'ondes à travers la barrière tunnel.

Le modèle considère le cas d'une jonction ferromagnétique/isolant/ferromagnétique représentée ici sur la figure 1.8, avec une tension appliquée  $V$ , d'une épaisseur  $d$ , d'une hauteur de potentiel  $\phi$ .  $FM_1$  et  $FM_2$  représentent les électrodes ferromagnétiques 1 et 2 respectivement.  $h_1$  et  $h_2$  représentent le champ moléculaire pour  $FM_1$  et  $FM_2$  respectivement.

Dans le cas général, les deux électrodes ferromagnétiques sont de compositions différentes et les vecteurs d'onde  $k_{\uparrow}$  et  $k_{\downarrow}$  sont considérés comme étant différents pour les deux électrodes. Slonczewski trouve alors simplement la formulation générale :

$$G = G'_{fb} (1 + P_{fb} P_{fb'} \cos \theta) \quad (1.11)$$

avec  $P_{fb}$  et  $P_{fb'}$  la polarisation en spin effective des deux paires ferromagnétique/isolant.



**Figure 1.8.** Diagramme d'énergie pour un électron dans une jonction tunnel magnétique pour le cas où la configuration des aimantations des électrodes ferromagnétiques  $FM_1$  et  $FM_2$  sont parallèles. Le champ d'échange sépare les bandes d'énergie correspondant aux deux directions de spin (représentées par  $\uparrow$  et  $\downarrow$ ) [Dim-th-02].

Les expressions de la conductance tunnel données par les modèles de Jullière et Slonczewski (Equ. 1.10 et 1.11) sont tout à fait comparables dans la forme. La différence réside dans le facteur de polarisation. Le modèle de Jullière prend en compte la polarisation dans le volume des électrodes magnétiques tout en négligeant l'influence de la barrière isolante et de ses interfaces. Dans le modèle de Slonczewski, les effets d'interfaces (interfaces  $FM_1/Isolant$  et  $Isolant/FM_2$ ) sont pris en compte et la polarisation intrinsèque des électrodes ferromagnétiques est alors normalisée.

### 1.5.2 Validité du modèle de Jullière pour le courant tunnel dépendant du spin

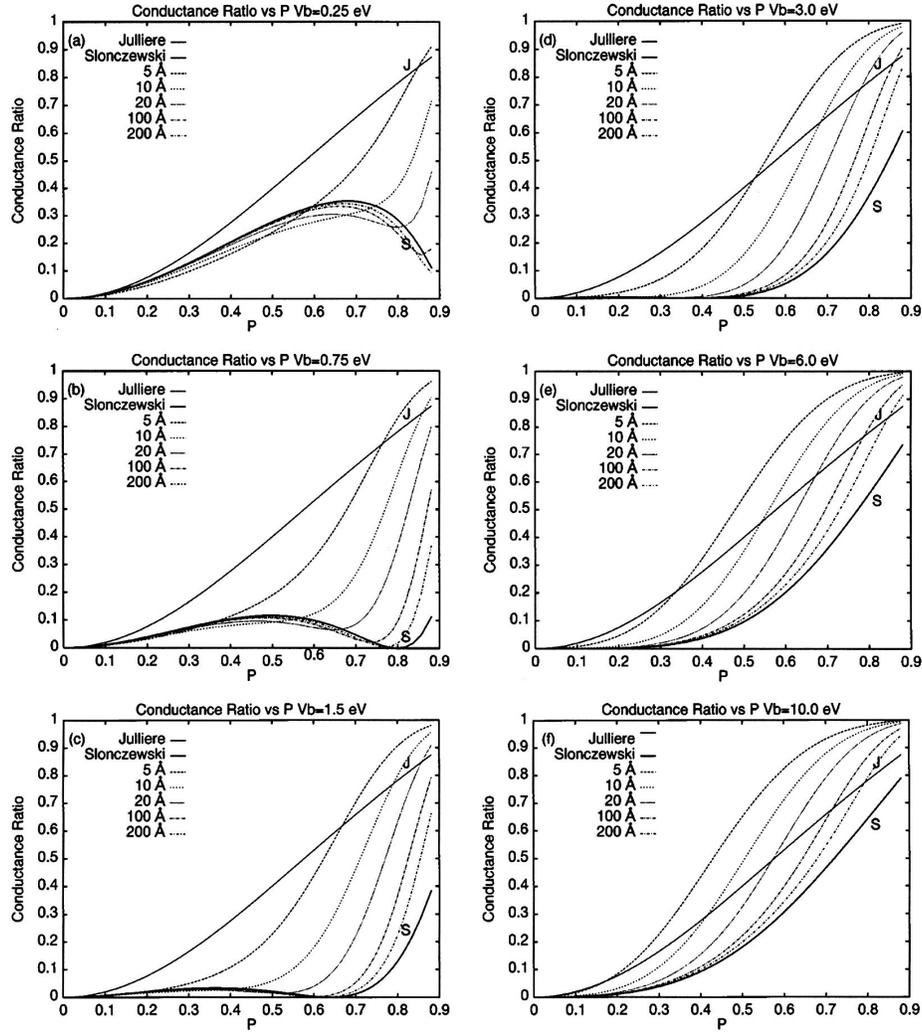
En 1997 MacLaren *et al.* [Mac-PRB-97] ont vérifié la validité du modèle de Jullière en le comparant à d'autres modèles, en particulier celui de Slonczewski décrit précédemment. Leurs travaux ont consisté à étudier la conductance d'électrons libres polarisés en spin à travers une barrière tunnel simple et comparer leurs résultats expérimentaux aux valeurs

numériques déduites des modèles de Jullière et Slonczewski. Pour ce faire, ils ont évalué numériquement la conductance tunnel à partir de l'équation 1.12 de Landauer-Büttiker [Lan-IJR-57][Büt-IJR-88] dans le cas d'une barrière aux épaisseur et hauteur variables (de 5 à 100 Å et 0,25 à 10 eV respectivement) tout en fixant l'énergie de Fermi à 6,8 eV.

$$G = \frac{e^2}{(2\pi)^2 h} \int d^2 k_{||} T(k_{||}) \quad (1.12)$$

où  $k_{||}$  est le vecteur d'onde pour un électron et  $T(k_{||})$  les coefficients unitaires de transmission de la barrière. Leurs résultats comparatifs sont représentés sur la figure 1.9.

On remarque sur cette figure que les deux modèles sont limités à certaines gammes de paramètres. La formulation de Slonczewski est très réaliste pour ce qui est de décrire un courant tunnel d'électrons libres pour une barrière de forte épaisseur (100 à 200 Å) et de faible hauteur (0,25 à 0,75 eV). Le modèle de Jullière quant à lui est réaliste lorsque les barrières sont de faible épaisseur (10 Å tout au plus). Cependant, même si le modèle de Slonczewski procure une description réaliste, il n'est pas simple de l'appliquer aux différents cas expérimentaux avec différents matériaux et des structures de bandes plus compliquées. Ceci est dû au fait que la polarisation effective  $P_{eff}$  dépend de l'alignement relatif des aimantations des deux couches ferromagnétiques et de la hauteur de barrière qui ne sont pas exclusifs pour chaque matériau. Les modèles plus élaborés doivent tenir compte des structures de bandes au niveau des interfaces.



**Figure 1.9.** Ratio de conductance ( $\Delta G/G$ ) par rapport à la polarisation au niveau de Fermi  $P$  pour un courant tunnel d'électrons libres dépendant du spin pour des hauteurs de barrière variables ( $Vb$ ). Dans chaque encart sont représentées les épaisseurs de la barrière de 5, 10, 20, 100 et 200 Å avec les courbes correspondantes de Jullière et Slonczewski légendées  $J$  et  $S$  respectivement [Mac-PRB-97].

### 1.5.3 Autres modèles à température nulle

Bratkovski [Bra-PRB-97] a tenté d'améliorer le modèle de Slonczewski en tenant compte de la réduction de la masse effective de l'électron à l'intérieur de la barrière isolante. Pour ce faire, il calcule le coefficient de transmission des électrons tout en gardant la continuité de la valeur du courant  $\frac{1}{m^*} \Psi^* \frac{d\Psi}{dx}$  à l'interface métal/oxyde. L'expression de la polarisation devient alors :

$$P_{eff} = P \frac{\kappa^2 - rk_{\uparrow}k_{\downarrow}}{\kappa^2 + rk_{\uparrow}k_{\downarrow}} \quad (1.13)$$

où  $r = m^*_{Al_2O_3} / m^*_{Fe}$  désigne le rapport des masses effectives de l'électron dans la barrière isolante ( $I$ ) et dans l'électrode ferromagnétique ( $F$ ). En considérant que la masse de l'électron dans l'alumine  $m^*_{Al_2O_3} = 0.4 \cdot m^*_{Fe}$  [Bra-PRB-97] et en considérant les paramètres suivant :

$$\begin{cases} k_{\uparrow} = 1,09 \text{ \AA}^{-1} \\ k_{\downarrow} = 0,42 \text{ \AA}^{-1} \end{cases} \quad [\text{Ste-J3M-77}] \quad \text{et une hauteur de barrière } V_b - E_F = 3 \text{ eV},$$

la polarisation calculée pour le système Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Fe avec la formule 1.13  $P_{eff} = 0,36$ , soit  $\Delta G/G = 24 \%$ . A titre de comparaison, la valeur de polarisation effective calculée à l'aide de l'équation 1.12 de Slonczewski et des mêmes paramètres est  $P_{eff} = 0,11$ , soit  $\Delta G/G = 2,6 \%$ . Nous voyons que l'équation 1.13 nous fournit une valeur du rapport  $\Delta G/G$  beaucoup plus proche de celles obtenues expérimentalement (de l'ordre de plusieurs dizaines de %)

On peut remarquer que dans la limite d'une barrière de potentiel rectangulaire haute ( $\kappa \gg k_1, k_2$ ), la conductance tunnel des électrons libres est proportionnelle à la densité d'état dans chaque électrode. Cependant, Zhang et Levy [Zha-EPJ-99] ont remarqué que la validité de ce résultat dépend du profil particulier de la barrière de potentiel. Le rôle des interfaces a été mis en évidence en s'intéressant particulièrement au calcul de la conductance dans le cas où l'on introduit un terme de potentiel diffuseur aux interfaces métal/isolant. Dans un système réel, et nous le verrons par la suite, le rôle des interfaces électrodes/barrière est primordial.

#### 1.5.4 Influence de la température sur une barrière tunnel

Nous pouvons remarquer que jusqu'ici le facteur température n'a pas été introduit dans les modèles abordés. Une augmentation de la température entraîne le peuplement d'états électroniques dans un intervalle d'énergie  $\sim k_B T$  au-dessus du niveau de Fermi. Dès 1964 Simmons [Sim-JAP-64] décrit la dépendance de la conductance à travers une barrière tunnel par l'expression :

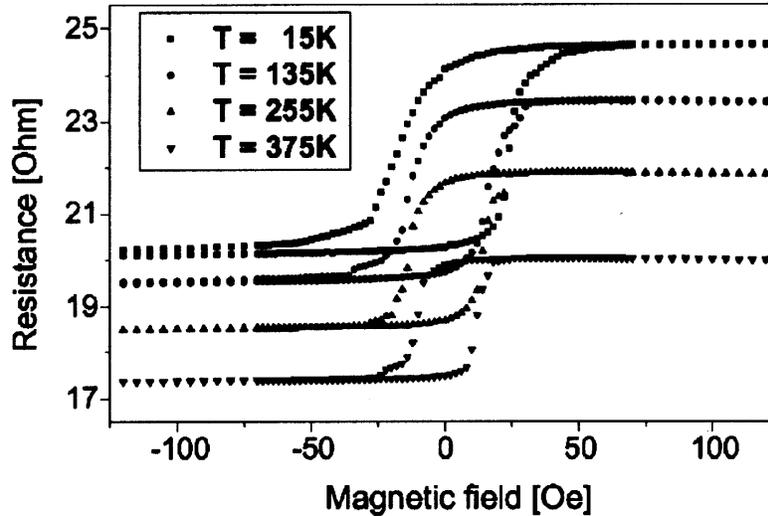
$$J(V, T) = J(V, 0) \frac{\pi B k_B T}{\sin(\pi B k_B T)} \quad (1.14)$$

$$\text{avec } \begin{cases} B = \frac{A}{2\sqrt{\varphi_0}} \\ A = 4 \frac{\pi \beta d}{h\sqrt{2m}} \end{cases} \quad (1.15)$$

où  $k_B$  désigne la constante de Boltzmann,  $d$  l'épaisseur de barrière exprimée en  $\text{\AA}$  et  $\beta \approx 1$ . En effectuant un développement limité d'ordre 2 pour des valeurs de  $k_B T \ll \varphi_0$ , Simmons obtient l'approximation suivante :

$$J(V, T) = J(V, 0) \left\{ 1 + \left[ 3 \cdot 10^{-9} (dT)^2 / \varphi_0 \right] \right\} \quad (1.16)$$

En considérant une épaisseur et une hauteur de barrière de  $15 \text{ \AA}$  et  $2 \text{ eV}$  respectivement, on obtient à l'aide de l'équation 1.16 une augmentation de la résistance de 3 % entre  $300 \text{ K}$  et  $0 \text{ K}$ , ce qui est faible comparé aux valeurs de résistance obtenues expérimentalement (par exemple Fig 1.10) qui montrent une augmentation comprise entre 10 % et 20 % entre la température ambiante et les très basses températures [Lu-JAP-98][Moo-PRL-98].



**Figure 1.10.** Série de cycles mineurs montrant la magnétorésistance d'une JTM à différentes températures. La jonction a été préalablement saturée dans la direction négative du champ magnétique externe [Hag-JAP-01].

Il est donc nécessaire de considérer ici l'apparition d'autres phénomènes intervenant sur les variations de la courbe  $R(T)$  :

- une contribution à la conductance indépendante du spin due à un processus d'effet tunnel par saut entre états localisés, assisté par phonons, à l'intérieur de la barrière amorphe. Cette contribution varie selon une loi de puissance en  $T^\gamma$  avec  $\gamma = 4/3$  lorsque le processus de saut met en jeu deux états localisés [Sha-PRB-98][Xu-PRB-95] ;
- une contribution à la conductance due à la diffusion par les magnons aux interfaces entre les électrodes magnétiques et l'isolant à haute température. Cette contribution correspond à une décroissance de  $R$  en  $T \ln T$  [Zha-PRL-97][Ved-EPJ-02] ;
- une contribution à la conductance due à la diffusion d'électrons sur des impuretés avec conservation du spin [Ved-EPJ-02].

## **1.6 Conclusion sur les différents modèles étudiés**

Ces modèles peuvent tous être utilisés pour décrire le comportement magnétorésistif d'une JTM. Cependant, ces différentes formulations ne sont pertinentes que dans des gammes de paramètres assez restrictives et ne peuvent en aucun cas décrire le comportement des JTM dans sa globalité. Aucun des différents modèles n'est préférable aux autres, c'est pourquoi nous nous limiterons aux formulations les plus simples. Nous considérerons deux modèles par la suite, c'est à dire le modèle de Simmons décrivant le courant à travers une barrière isolante fine et le modèle de Jullière décrivant le comportement magnétorésistif d'une JTM.

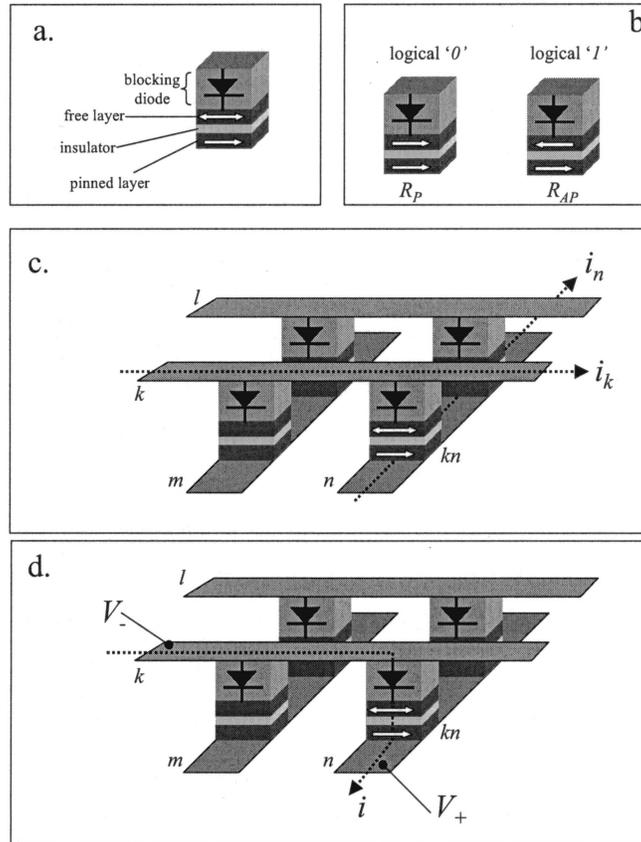
## 1.7 Réalisations sur les jonctions tunnel magnétiques

### 1.7.1 Etat de l'art et application aux MRAM

Des valeurs de magnétorésistance tunnel importantes à température ambiante ont été mesurées dans des jonctions tunnel pour la première fois au milieu des années 90 [Miy-J3M-95][Moo-PRL-95]. Depuis, d'énormes progrès ont été effectués en matière de techniques de fabrication et de compréhension des propriétés associées aux jonctions tunnel. Des magnétorésistances de 250 % pour des JTM à température ambiante ont été reportées récemment, ce qui nous donne des valeurs largement plus importantes que pour n'importe quelle magnétorésistance anisotrope (« AMR », soit quelques %) ou magnétorésistance géante (« GMR », au mieux quelques dizaines de %). En parallèle à ces très bons résultats, les résistances par unité de surface des jonctions ont été optimisées, tout en conservant les taux importants de magnétorésistance, pour atteindre actuellement des valeurs inférieures à  $10 \Omega \cdot \mu m^2$ , comparativement aux toutes premières jonctions produites ayant des valeurs de l'ordre du  $G\Omega \cdot \mu m^2$ . Ces larges progrès ont amené au développement de nouvelles technologies et applications, en particulier dans le domaine des mémoires avec les très prometteuses Mémoires Magnétiques à Accès Aléatoire (MRAM).

La première MRAM est apparue il y a une quinzaine d'années avec des éléments à AMR. Leurs performances limitées les ont cantonnées aux applications très spécifiques, telles les applications spatiales ou militaires. L'avancée majeure en matière de MRAM a été le développement des éléments à GMR. Le signal magnétorésistif peut alors atteindre près de 20 %, mais l'inconvénient majeur reste la résistance trop faible de ce type de structure entièrement métallique (bien inférieure à celle de l'électronique CMOS) et le fait de connecter en série les cellules mémoires réduit drastiquement le signal magnétorésistif. Les JTM sont de bien meilleurs candidats pour la fabrication de MRAM car elles ont non seulement une très forte magnétorésistance (de près de 70 % et modulable en fonction de la nature des électrodes et des oxydes), mais aussi une résistance conséquente et modifiable en fonction de la nature de l'isolant (matériaux, épaisseur, degrés d'oxydation...). Cette dernière propriété permet l'utilisation d'une seule JTM en série avec un transistor CMOS dans une cellule mémoire. Cette architecture à haute densité d'intégration est parfaitement adaptée aux mémoires à accès

rapide. Enfin, le courant de mesure est injecté perpendiculairement au plan du substrat et elles n'ont pas besoin d'être connectées en série.



**Figure 1.11.** (a) Représentation schématique d'une cellule mémoire de MRAM contenant une JTM et un transistor CMOS en série. (b) Représentation des états de bit 0 et 1 vis à vis de l'état physique de la JTM. (c) Procédure d'écriture de l'information sur un bit  $kn$  situé à l'intersection des lignes  $k$  et  $n$ . Les courants  $i_n$  et  $i_k$  sont les courants indispensables pour induire le champ magnétique de renversement de la couche libre. Les cellules mémoires adjacentes sont soumises uniquement à un des deux courants (par exemple  $km$ ) et l'information n'est pas stockée. (d) Procédure de lecture de l'information stockée dans la cellule mémoire  $kn$  avec une tension appliquée entre les lignes  $k$  et  $n$  induisant un courant à travers la cellule. Ce courant (résistance) est ensuite mesuré et comparé à une valeur de référence. La détermination de la résistance de la cellule mémoire donne l'état magnétique de la JTM correspondant à un 0 ou à un 1 [Dim-th-02].

Afin d'élaborer des MRAM fonctionnelles utilisant des JTM, deux éléments primordiaux doivent être optimisés, à savoir la barrière de la jonction tunnel et la couche magnétique « libre » qui stocke l'information. La barrière tunnel doit présenter une homogénéité physique et électrique maximale à l'échelle d'un wafer et une absence quasi-totale de court-circuits de conduction, tout en ayant une épaisseur très faible afin d'atteindre la résistance électrique adéquate. La couche douce (libre) des JTM doit avoir un champ de retournement faible et

équivalent pour chacun des points mémoires. Ce champ de retournement doit être optimisé quoiqu'il arrive pour réduire au maximum la consommation électrique de la MRAM lors du processus d'écriture.

### 1.7.2 Nature de l'oxyde de la barrière isolante

La barrière isolante est l'élément clef d'une jonction tunnel magnétique. Nous avons vu à travers la plupart des modèles abordés et la plupart des résultats expérimentaux que la barrière isolante joue un rôle essentiel dans l'apparition de la magnétorésistance dans une JTM. Les recherches dans le domaine se sont portées principalement sur le développement et la fabrication de barrières isolantes de très bonne qualité, à savoir fines (de quelques Å à quelques *nm*), planes, homogènes et parfaitement oxydées. De plus, la plupart des expériences ont démontré que la polarisation en spin du courant tunnel dépend du choix même de la barrière tunnel.

La barrière doit avoir moins de 2 *nm* d'épaisseur dans la plupart des cas. Elle doit être aussi constituée d'un oxyde non magnétique afin d'éviter les événements de renversement de la polarisation en spin (phénomène de « spin-flip ») des électrons lors du processus d'effet tunnel et former un oxyde stable qui ne diffuse pas dans les couches ferromagnétiques adjacentes.

Les premières mesures de polarisation menées par Meservey et Tedrow [Mes-PR-84] ainsi que les premiers résultats obtenus à température ambiante font de l'alumine  $\text{Al}_2\text{O}_3$  le meilleur matériau pour constituer une barrière tunnel. Une barrière d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  induit une polarisation en spin du courant tunnel dite normale, c'est à dire positive quel que soit le métal de transition utilisé en tant qu'électrode : on obtient en pratique une résistance de la jonction tunnel plus importante dans le cas où les aimantations sont antiparallèles que dans le cas où elles sont parallèles. Ceci peut s'expliquer par le fait que le tunneling des électrons *s* est favorisé [Tsy-JPCM-97].

D'autres types de barrière isolante ont été étudiés. Platt *et al.* [Pla-JAP-97] ont comparé des barrières variées telles que le CoO, le NiO, le  $\text{HfO}_2$ , le MgO et le  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ . Ce sont les barrières de MgO et  $\text{HfO}_2$  qui exhibent les meilleurs taux de magnétorésistance tunnel et la meilleure tenue (absence de trous d'épingle ou « pinholes » par exemple) lorsque l'on réduit l'épaisseur

de la couche. Dans tous les cas, ces barrières isolantes induisent une polarisation en spin du courant tunnel positif à l'instar de l' $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Des barrières d' $\text{AlN}$  [Wan-JAP-01], de  $\text{ZrO}_2$  [Wan-APL-01] ou de  $\text{ZrAlO}_2$  [Wan-APL-01] ont été également testées, mais les travaux ont débouché sur une TMR beaucoup moins importante que pour l' $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

Certains matériaux induisent par contre une polarisation en spin négative : la résistance de la jonction tunnel est alors la plus faible dans le cas où les aimantations sont antiparallèles. En 1999 De Teresa *et al.* [DeT-PRL-99] ont montré qu'une jonction tunnel magnétique avec une barrière de  $\text{SrTiO}_3$  et des électrodes de Co et de  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  (LSMO) induit une magnétorésistance négative. Cette TMR dite inverse est le résultat d'une polarisation négative pour le Co dans ce type de jonction car la polarisation en spin du LSMO est reconnue comme étant positive. De même que la polarisation positive du Co dans les jonctions avec une barrière d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  est due aux électrons  $s$ , la polarisation négative correspond à l'image d'une bande  $d$  du Co avec une forte densité d'états à l'énergie de Fermi pour les électrons de spin minoritaires. Ceci serait dû à la prédominance d'une liaison  $d-d$  entre le Co et le Ti ou le Sr [DeT-PRL-99].

### 1.7.3 Electrodes magnétiques

Concernant les électrodes magnétiques d'une JTM, il convient de distinguer la couche magnétique dite « libre » ou « douce », c'est à dire qui possède un champ de retournement réduit, et la couche magnétique dite « piégée » ou « dure », c'est à dire qui doit conserver la direction de son aimantation même soumise à un champ magnétique relativement important.

Les électrodes magnétiques d'une JTM sont constituées de manière générale de matériaux ferromagnétiques (FM) qui doivent présenter de forts taux de polarisation afin d'avoir un signal de TMR suffisant pour les applications. Le choix des matériaux pour la fabrication des JTM a été guidé par les nombreuses études déjà réalisées sur les vannes de spin. Les matériaux les plus couramment utilisés sont les métaux de transition tels que le fer, le nickel, le cobalt ainsi que leurs divers alliages. Tous ces matériaux appartiennent à la classe des matériaux magnétiques doux en raison de leur faible anisotropie magnétocristalline. La faible coercivité permet donc d'obtenir des couches dont le retournement est possible en champ faible (typiquement  $< 10 \text{ Oe}$ ).

A titre d'exemple, le tableau 1.1 présente quelques taux de polarisation des électrons tunnel dans différents matériaux magnétiques. L'utilisation de matériaux durs (c'est à dire à fort champ coercitif) ne produit pas de polarisation des électrons de manière satisfaisante. Il est donc nécessaire d'augmenter artificiellement le champ coercitif d'une des électrodes magnétiques douces. La solution retenue par la suite est le « piégeage » avec une couche en alliage antiferromagnétique (AF).

<b>Eléments</b>	Fe	Co	Ni	Gd
<b>Taux de polarisation</b>	44 %	34 %	11 %	4 %

**Tableau 1.1** Taux de polarisation des électrons tunnel dans différents matériaux magnétiques [Die-mag-99].

A l'interface entre le FM et l'AF s'établit une interaction d'échange, intervenant directement dans le piégeage, dont l'énergie  $J$  par unité de surface satisfait l'équation suivante :

$$M_S H e_F \succ J \quad 1.17$$

où  $M_S$  désigne l'aimantation totale de la couche FM,  $H$  le champ appliqué sur la bicouche,  $e_F$  l'épaisseur de la couche FM et  $J$  désigne l'énergie d'échange par unité de surface.

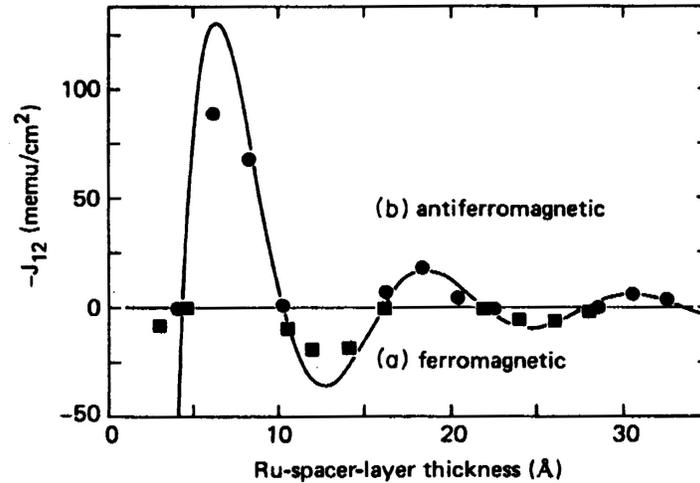
Les matériaux antiferromagnétiques les plus couramment utilisés pour piéger l'aimantation d'une couche FM sont le PtMn [Moo-JAP-02], l'IrMn [Sam-APL-00][Car-APL-00] et le FeMn [Moo-APL-99][Mat-JAP-99][Sam-APL-00]. Le tableau 1.2 donne les caractéristiques des différents AF précités dont la température de blocage  $T_B$  qui représente la température à partir de laquelle le couplage d'échange disparaît.

<b>Matériau</b>	<b>J (J.m<sup>-2</sup>)</b>	<b>T<sub>B</sub> (°C)</b>	<b>Résistance à la corrosion</b>
Fe <sub>50</sub> Mn <sub>50</sub>	5.10 <sup>-5</sup> – 4,7.10 <sup>-4</sup>	150	Faible
PtMn	2.10 <sup>-5</sup> – 3,2.10 <sup>-4</sup>	350	Bonne
Ir <sub>20</sub> Mn <sub>80</sub>	1,1.10 <sup>-4</sup>	240 - 260	Bonne

**Tableau 1.2.** Caractéristiques des matériaux antiferromagnétiques couramment utilisés [Sou-th-03].

D'autres matériaux antiferromagnétiques sont également possibles, tels le NiO [Hos-I3E-94][Sha-APL-98], le MnPdPt [Kis-I3E-96] ou le NiMn [Lin-APL-94]. Ils sont toutefois très peu utilisés du point de vue des applications.

Pour augmenter artificiellement le couplage d'échange, on utilise couramment un antiferromagnétique dit artificiel ou synthétique (SAF) formé d'une tricouche FM/NM/FM (avec NM = Cu ou Ru généralement).



**Figure 1.12.** Intensité du couplage d'échange entre deux couches de  $\text{Ni}_{80}\text{Co}_{20}$  à travers une couche intermédiaire de Ru. Les ronds et carrés indiqués sont des points de mesures expérimentales, la ligne solide est un ajustement déduit d'une des formulations du couplage RKKY [Par-PRB-91].

Dans un empilement FM/NM/FM, le signe du couplage entre les couches FM dépend de l'épaisseur de la couche métallique intermédiaire. De plus, l'intensité du couplage présente des oscillations d'amplitude décroissante en fonction de l'épaisseur, passant alternativement d'un couplage positif à un couplage négatif (figure 1.12). Dans un système CoFe/Ru/CoFe, le second maximum correspond à un couplage antiferromagnétique (maximum négatif) de forte amplitude et intervient pour une épaisseur de Ru d'environ  $0,7 \text{ nm}$ . De même, la figure 1.12 nous montre que pour un système  $\text{Ni}_{80}\text{Co}_{20}/\text{Ru}/\text{Ni}_{80}\text{Co}_{20}$  cette couche de Ru doit faire environ  $0,65 \text{ nm}$  afin d'obtenir un couplage antiferromagnétique maximal.

L'aimantation effective  $M_s$  de la structure SAF est très proche de 0. L'équation 1.17 nous indique que le produit  $M_s H_{eF}$  doit être supérieur à  $J$  pour vaincre le couplage d'échange de la structure et pour ce faire, si  $M_s \approx 0$  et  $e_F$  est faible (ce qui est le cas dans une JTM), le champ

magnétique externe  $H$  doit être très important. C'est pourquoi, le champ d'échange d'une structure SAF / AF est extrêmement élevé.

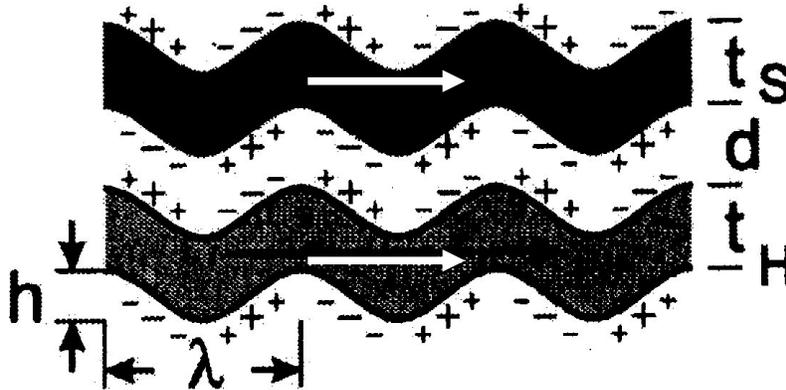
#### 1.7.4 Effets des interfaces – Défauts dans les jonctions tunnel magnétiques

Les interfaces entre les différentes couches d'une JTM jouent un rôle crucial. Les interfaces ne sont ni plus ni moins que des régions de transitions des propriétés physiques et chimiques d'une couche à l'autre, transitions qui peuvent être douces ou très abruptes selon les cas. Par exemple, certains matériaux adjoints à d'autres peuvent se mélanger aux interfaces et rendre les propriétés physiques et chimiques assez imprévisibles dans ces régions, dégrader très nettement les performances magnétorésistives des structures ou alors n'avoir aucune incidence sur ces dernières.

Les interfaces les plus importantes sont les deux interfaces FM/BI entre les deux électrodes ferromagnétiques et la barrière isolante. Elles interviennent directement sur les propriétés tunnel de la JTM et son comportement sous champ magnétique. Les deux couches FM doivent être entièrement métalliques et magnétiques aux interfaces avec la barrière. La présence d'atomes d'oxygène qui auraient migré de la barrière isolante vers les premières couches des électrodes FM entraîne une dépoliarisation des électrons tunnel qui est due à l'hybridation entre les fonctions d'ondes polarisées en spin et les fonctions d'ondes non polarisées [Chen-JAP-00]. Dans le cas du Co, au voisinage d'un atome d'O l'atome de Co aura tendance à perdre 2 électrons pour se transformer en ion  $\text{Co}^{2+}$  non magnétique alors que sans oxygène, il reste magnétique [Mon-th-03].

De la même manière la barrière tunnel doit être constituée de l'oxyde le plus homogène qu'il soit, avec un minimum de sites restés métalliques et un minimum de mélange (mixing) avec les espèces présentes dans les deux électrodes. Da Costa *et al.* [DaC-J3M-02] ainsi que Monso *et al.* [Mon-APL-02] ont montré dans des vanes de spin que l'absence de lacunes d'oxygène aux interfaces  $\text{CoFe}/\text{AlO}_x$  et  $\text{Co}/\text{AlO}_x$  respectivement peut coïncider avec un maximum de réflexion spéculaire des électrons de conduction donc un maximum de GMR. En l'absence de lacunes, ces électrons voient la couche d' $\text{AlO}_x$  comme un mur de potentiel lisse dans lequel ils peuvent difficilement pénétrer. L'absence de lacunes correspond également à un maximum de TMR dans les JTM.

D'autres effets dus aux éventuels défauts aux interfaces FM/BI peuvent intervenir de façon dramatique. Si la barrière tunnel n'a pas une épaisseur homogène (rugosité) et exhibe des trous de conduction (« pinholes » ou « trous d'épingle »), les deux couches FM se retrouvent en contact : un couplage ferromagnétique apparaît alors aux discontinuités de la barrière tunnel ainsi qu'un court circuit électrique qui rend la barrière inopérante. Il est donc nécessaire de réduire tant que possible la rugosité de la barrière tunnel ainsi que la rugosité des couches magnétiques sous jacentes en améliorant la qualité des dépôts des différentes couches. L'autre effet dû à la rugosité des couches est le couplage de Néel entre les couches magnétiques. La rugosité peut engendrer une structure morphologique ondulée, entraînant l'apparition de dipôles magnétiques aux interfaces (figure 1.13). Cette succession de dipôles engendre un champ dipolaire qui va coupler les couches magnétiques proches, entraînant alors un renversement des différentes couches magnétiques. C'est le couplage de Néel ou couplage dipolaire dit aussi couplage peau d'orange décrit par Louis Néel en 1962 [Née-OS-78].



**Figure 1.13.** Schéma mettant en évidence l'origine du couplage de Néel. Les deux couches sombres sont les couches FM tandis que la couche claire représente la barrière tunnel.  $\lambda$  et  $h$  sont les longueurs et hauteur de corrélation respectivement,  $d$  l'épaisseur de la barrière,  $t_s$  et  $t_h$  les épaisseurs des couches douce et dure respectivement. La flèche indique la direction de l'aimantation [Teg-JAP-01].

Dans le modèle idéal représenté sur la figure 1.13 le champ dipolaire  $H_d$  entre les deux couches magnétiques s'écrit :

$$H_d = \frac{\pi^2 h^2 M_H}{\sqrt{2} \lambda t_s} \exp\left(\frac{-2\pi\sqrt{2}d}{\lambda}\right) \left[ 1 - \exp\left(\frac{-2\pi\sqrt{2}t_s}{\lambda}\right) \right] \left[ 1 - \exp\left(\frac{-2\pi\sqrt{2}t_h}{\lambda}\right) \right] \quad 1.18$$

En fixant des valeurs courantes de  $\lambda$  et de  $h$ , ainsi que les épaisseurs des couches  $t_s$  et  $t_h$ , Tegen *et al.* [Teg-JAP-01] montrent à l'aide de l'équation 1.18 que le couplage de Néel est non négligeable pour des couches d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  d'une épaisseur courante dans les JTM ( $d < 2 \text{ nm}$ ). Si les couches magnétiques d'une JTM sont fortement couplées, la TMR résultante est faible voir nulle. Il est donc impératif d'avoir des interfaces très peu rugueuses.

## 1.8 Conclusion du chapitre 1

Ce chapitre a permis de présenter les principes physiques à la base du fonctionnement d'une jonction tunnel magnétique et de les relier à quelques résultats expérimentaux pertinents. De nombreux modèles différents ont été élaborés pour rendre compte du comportement d'une JTM, en partant initialement du modèle simple de Jullière qui s'appuie uniquement sur la notion de polarisation des électrodes métalliques, et du modèle de Simmons permettant d'ajuster les caractéristiques courant/tension et d'en extraire des paramètres de barrière. Le défaut de ces modèles est de ne pas prendre en compte la structure électronique réelle des électrodes métalliques à l'interface métal/oxyde, laquelle peut fortement influencer la qualité de l'effet tunnel à travers la barrière. Seule la considération de cette structure de bande réelle peut expliquer entre autres les phénomènes de TMR inversée récemment observés.

Expérimentalement, la réalisation de jonctions tunnel magnétiques ne pourra se faire qu'en maîtrisant l'élaboration de fines barrières d'oxydes et de couches ne présentant qu'un minimum de défauts. Les paramètres importants à contrôler lors du dépôt des différentes couches constituant une JTM seront la rugosité des couches, particulièrement celles qui seront sous jacentes à la barrière ainsi que l'absence de trous d'épingle dans la barrière ainsi que son processus d'oxydation.

D'une manière générale, il est impossible d'avoir un empilement parfait, car même en prenant les dispositions technologiques les meilleures, il reste toujours quantité de défauts, même infimes, qui interviennent physiquement dans le fonctionnement et les propriétés des JTM. Il conviendra donc de bien qualifier la nature de ces défauts pour comprendre les phénomènes physiques étudiés.

## Références du chapitre 1

- [Bai-PRL-88] M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitienne, G. Creuzet, A. Friederich, J. Chazelas, « Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices », *Phys. Rev. Lett.*, 61, 21, p2472, (1988).
- [Bar-PRL-61] J. Bardeen, « Tunneling from a many-particle point of view », *Phys. Rev. Lett.*, 6, p57, (1961).
- [Bra-PRB-97] A. M. Bratkovsky, « Tunneling of electrons in conventional and half metallic systems : towards very large magnetoresistance », *Phys. Rev. B*, 56, p2344, (1997).
- [Bru-PRB-92] P. Bruno, C. Chappert, « Ruderman-Kittel theory of oscillatory interlayer exchange coupling », *Phys. Rev. B*, 46, 1, p261 (1992).
- [Büt-IJRD-88] M. Büttiker, *IBM J. Res. Dev.*, 32, p317 (1988).
- [Car-APL-00] S. Cardoso, P. P. Freitas, C. De Jesus, P. Wei, J. C. Soares, « Spin tunnel junction thermal stability and interface interdiffusion above 300 °C », *Appl. Phys. Lett.*, 76, 5, p610, (2000).
- [Che-JAP-00] E. Y. Chen, R. Whig, J. M. Slaughter, D. Cronk, J. Goggin, G. Steiner, S. Therani, « Comparison of oxidation methods for magnetic tunnel junction material », *J. Appl. Phys.*, 87, 9, p6061, (2000).
- [DaC-J3M-02] V. Da Costa, A. Iovan, K. Ounadjela, W. Allen, J. F. Gregg, B. Dieny, « Spin-polarized electronic reflections at metal-oxide interfaces », *JMMM*, 240, 1-3, p140, (2002).
- [DeT-PRL-99] J. M. De Teresa, A. Barthélémy, A. Fert, J. P. Contour, R. Lyonnet, F. Montaigne, P. Seneor, A. Vaurès, « Inverse tunnel magnetoresistance in Co/SrTiO<sub>3</sub>/La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub> : new ideas on spin polarized tunneling », *Phys. Rev. Lett.*, 82, p4288, (1999).
- [Die-PRB-92] B. Dieny, P. Humbert, V.S. Speriosu, S. Metin, B.A. Gurney, P. Baumgart, H. Lefakis, « Giant magnetoresistance of magnetically soft sandwiches : dependence on temperature and on layer thickness », *Phys. Rev. B*, 45, p806, (1992).
- [Die-mag-99] B. Dieny, « Couches minces et multicouches magnétiques », *Magnétisme*, volume 2 - Matériaux et Applications, Collection Grenoble Sciences, (1999).
- [Dim-th-02] T. Dimopoulos, Thèse de Doctorat « Transport polarisé en spin dans les jonctions tunnel magnétiques : le rôle des interfaces métal/oxyde dans le processus tunnel », Université Louis Pasteur de Strasbourg, (2002).

- [Fer-JMP-76] A. Fert, I.A. Campbell, « Electrical resistivity of ferromagnetic nickel and iron based alloys », *J. Phys. F : Metal Phys.*, 6, p849, (1976).
- [Hag-JAP-01] T. Hagler, R. Kinder, G. Bayreuther, « Temperature dependence of tunnel magnetoresistance », *J. Appl. Phys.*, 89, 11, p7570, (2001).
- [Hos-I3E-94] H. Hoshiya, M. Komuro, K. Mitsuoka, Y. Sugita, « Giant magnetoresistance of spin valve films with NiO antiferromagnetic films », *IEEE-trans. J. Magn. Jpn.*, 9, 6, p236, (1994).
- [Jul-PL-75] M. Jullière, « Tunneling between ferromagnetic films », *Phys. Lett.*, 54A, p225, (1975).
- [Kis-I3E-96] H. Kishi, Y. Kitade, Y. Miyake, A. Tanaka, K. Kobayashi, « Study of exchange-coupled bias field in NiFe/PdPtMn thin films », *IEEE Trans. Magn.*, 32, p3380, (1996).
- [Lan-IJRD-57] R. Landauer, *IBM J. Res. Dev.*, 1, p223 (1957).
- [Lin-APL-94] T. Lin, D. Mauri, N. Staud, C. Hwang, J. K. Howard, G. L. Gorman, « Improved exchange coupling between ferromagnetic NiFe and antiferromagnetic NiMn based films », *Appl. Phys. Lett.*, 65, p1183, (1994).
- [Lu-JAP-98] Y. Lu, X.W. Li, G. Xiao, R.A. Altman, W.J. Gallagher, A. Marley, K. Roche, S. Parkin, « Bias voltage and temperature dependence of magnetotunneling effect », *J. Appl. Phys.*, 83, 11, p6515, (1998).
- [Mac-PRB-97] J. M. MacLaren, X. G. Zhang, W. H. Butler, « Validity of the Jullière model of spin-dependent tunneling », *Phys. Rev. B*, 56, p11827, (1997).
- [Mat-JAP-99] K. Matsuda, A. Kamijo, T. Mitsuzuka, H. Tsuge, « Exchange-biased magnetic tunnel junctions fabricated with in situ natural oxidation », *J. Appl. Phys.*, 85, 8, p5261, (1999).
- [Mes-PR-84] R. Meservey, P. M. Tedrow, *Phys. Rep.* (4), 238, p173, (1994).
- [Miy-J3M-95] T. Miyazaki, N. Tezuka, *J. Magn. Magn. Mater.*, 139, pL231, (1995).
- [Mon-th-03] S. Monso, Thèse de Doctorat « Fabrication et tests de points mémoire non-volatiles à base de jonctions tunnel magnétiques », Université Joseph Fourier, (2003).
- [Mon-Apl-02] S. Monso, B. Rodmacq, S. Auffret, G. Casali, F. Fettar, B. Gilles, B. Dieny, P. Boyer, « Crossover from in plane to perpendicular anisotropy in Pt/CoFe/AlOx sandwiches as a function of Al oxidation : a very accurate control of the oxidation of tunnel barriers », *Appl. Phys. Lett.*, 80, 22, p4157, (2002).

- [Moo-PRL-95] J.S. Moodera, L.R. Kinder, T.M. Wong, R. Meservey, « Large magnetoresistance at room temperature in ferromagnetic thin film tunnel junctions », *Phys. Rev. Lett.*, 74, p3273, (1995).
- [Moo-PRL-98] J.S. Moodera, J. Nowak, R.J.M. van de Veerdonk, « Interface magnetism and spin wave scattering in ferromagnet-insulator-ferromagnet tunnel junctions », *Phys. Rev. Lett.*, 80, p2941, (1998).
- [Moo-APL-99] K. S. Moon, R. E. Fontana Jr, S. S. P. Parkin, « Exchange-biased magnetic tunnel junctions : dependence of offset field on junction width », *Appl. Phys. Lett.*, 74, 24, p3690, (1999).
- [Moo-JAP-02] K. Moon, Y. Chen, Y. Huai, « PtMn based spin-dependent tunneling materials with thin alumina barrier fabricated by two-step natural oxidation », *J. Appl. Phys.*, 91, 10, p7965, (2002).
- [Née-OS-78] Louis Néel, « Sur un nouveau mode de couplage entre les aimantations de deux couches minces ferromagnétiques », *Oeuvres Scientifiques*, Editions du CNRS, p521, (1978).
- [Par-PRB-91] S. S. P. Parkin, D. Mauri, « Spin engineering : direct determination of the Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida far-field range function in ruthenium », *Phys. Rev. B*, 44, 13, p7131, (1991).
- [Par-PRL-93] S. S. P. Parkin, « Origin of enhanced magnetoresistance of magnetic multilayers : spin-dependent scattering from magnetic interfaces states », *Phys. Rev. Lett.*, 71, 10, p1641, (1993).
- [Pla-JAP-97] C. L. Platt, B. Dieny, A. E. Berkowitz, « Spin polarized tunneling in reactively sputtered tunnel junctions », *J. Appl. Phys.*, 81, p5523, (1997).
- [Sam-APL-00] M. G. Samant, J. Lüning, J. Stöhr, S. S. P. Parkin, Thermal stability of IrMn and MnFe exchange-biased magnetic tunnel junctions, *Appl. Phys. Lett.*, 76, 21, p3097, (2000).
- [Sim-JAP-63] J.G. Simmons, « Generalized formula for the electric tunnel effect between similar electrodes separated by a thin insulating film », *J. Appl. Phys.*, 34, p1793, (1963).
- [Sim-JAP-64] J.G. Simmons, « Generalized thermal J/V characteristic for the electric tunnel effect », *J. Appl. Phys.*, 35, p2655, (1964).
- [Sha-PRB-98] C. H. Shang, J. Nowak, R. Jansen, J.S. Moodera, « Temperature dependence of magnetoresistance and surface magnetization in ferromagnetic tunnel junctions », *Phys. Rev. B*, 58, pR2917, (1998).
- [Sha-APL-98] C. H. Shang, G. P. Berera, J. S. Moodera, « Exchange-biased ferromagnetic tunnel junctions via reactive evaporation of nickel oxide films », *Appl. Phys. Lett.*, 72, p605, (1998).

- [Slo-PRB-89] J.C. Slonczewski, « Conductance and exchange coupling of two ferromagnets separated by a tunneling barrier », *Phys. Rev. B*, 39, p6995, (1989).
- [Sou-th-03] R. Sousa, Thèse de Doctorat, « Magnetic Random Access Memory (MRAM) based on spin-dependent tunnel junctions », Lisbonne, Portugal, (2003).
- [Ste-J3M-77] M. B. Stearns, « Simple explanation of tunneling spin-polarization of Fe, Co, Ni and its alloys », *J. Magn. Magn. Mater.*, 5, p167, (1977).
- [Teg-JAP-01] S. Tegen, I. Mönch, J. Schumann, H. Vinzelberg, C. M. Schneider, « Effect of Néel coupling on magnetic tunnel junctions », *J. Appl. Phys.*, 89, p8169, (2001).
- [Tiu-th-00] C.V. Tiusan, Thèse de Doctorat européen « Magnétisme et transport polarisé en spin dans les jonctions tunnel magnétiques. Utilisation du transport tunnel comme une sonde micromagnétique », Université Louis Pasteur de Strasbourg, (2000).
- [Tsy-JPCM-97] E.Y. Tsybal, D.G. Pettifor, « Modeling of spin-polarized electron tunneling from 3d ferromagnets », *J. Phys. : Condens. Matter*, 9, pL411, (1997).
- [Ved-EPJ-02] A. Vedyayev, R. Vlutters, N. Ryzhanova, J.C. Lodder, B. Dieny, « Interpretation of the magnetoresistance in doped magnetic tunnel junctions », *Eur. Phys. J.*, B25, p5, (2002).
- [Wan-APL-01] J. Wang, P. P. Freitas, E. Snoeck, P. Wei, J. C. Soares, « Spin-dependent tunnel junctions with  $ZrO_x$  barriers », *Appl. Phys. Lett.*, 79, p4387, (2001).
- [Wan-JAP-01] J. Wang, S. Cardoso, P. P. Freitas, P. Wei, N. Barradas, J. C. Soares, « Tunnel junctions with AlN barriers and FeTaN electrodes », *J. Appl. Phys.*, 89, 11, p6868, (2001).
- [Xu-PRB-95] Y. Xu, D. Ephron, M.R. Beasley, « Directed inelastic hopping of electrons through metal-insulator-metal tunnel junctions », *Phys. Rev. B*, 52, p2843, (1995)
- [Zha-PRL-97] S. Zhang, P.M. Levy, A.C. Marley, S.S.P. Parkin, « Quenching of magnetoresistance by hot electrons in magnetic tunnel junctions », *Phys. Rev. Lett.*, 79, 19, p3744, (1997).
- [Zha-EPJ-99] S. Zhang, P.M. Levy, « Models for magnetoresistance in tunnel junctions », *Eur. Phys. J.*, B10, p599, (1999).

## **Chapitre 2**

### **Techniques d'élaboration et de caractérisation de multicouches et de jonctions tunnel magnétiques**

Dans ce chapitre, nous exposerons les techniques expérimentales que nous avons utilisé afin de réaliser et de caractériser les jonctions tunnel magnétiques. Nous présenterons tout d'abord d'une manière générale les techniques d'élaboration de JTM, en particulier la pulvérisation cathodique et la structuration par lithographie optique. Par la suite, nous nous focaliserons sur nos propres techniques en décrivant les différents outils utilisés ainsi que les divers échantillons préparés durant cette thèse. Nous clôturerons ce chapitre en décrivant succinctement les différentes techniques utilisées pour caractériser les jonctions tunnel magnétiques.

#### **2.1 Techniques d'élaboration de multicouches et de jonctions tunnel magnétiques**

##### **2.1.1 Dépôts de couches minces par pulvérisation cathodique**

Les jonctions tunnel magnétiques ainsi que l'ensemble des échantillons étudiés dans le cadre de cette thèse ont été élaborés par pulvérisation cathodique. La pulvérisation cathodique est une technique de croissance de couches minces répandue et décrite dans de nombreux ouvrages [Vos-APB-91]. Elle consiste à déposer sur un substrat des atomes arrachés à une cible constituée du matériau à déposer par des chocs d'ions contenus dans un plasma (Fig. 2.1). Ce plasma s'obtient à partir d'un gaz (argon généralement), à une pression comprise entre  $10^{-2}$  et  $1 \text{ mbar}$ , soumis à un champ électrique entre la cible faisant office de cathode et une anode disposée parallèlement à la cible à quelques millimètres. Un magnétron plan est constitué d'une cathode refroidie à l'eau, fixée sur des aimants ou des électro-aimants créant un champ magnétique dont les lignes de champ sont fermées de manière à confiner à la surface de la cathode, dans une région annulaire, les électrons secondaires émis lors du bombardement ionique. Ainsi, le plasma est plus dense et confiné au voisinage du magnétron.

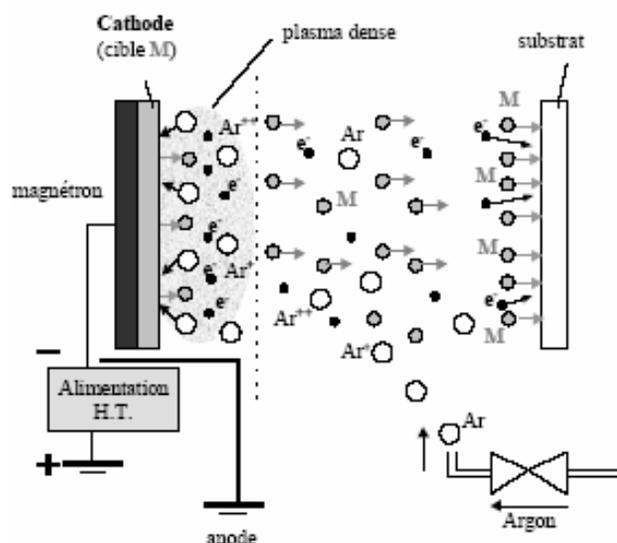


Figure 2.1. Schéma du principe de la pulvérisation cathodique [Tiu-Th-00].

Il existe deux types de polarisations dites DC (en continu) et RF (radio-fréquence) qui permettent de déposer des matériaux conducteurs (métaux et alliages métalliques) et des matériaux peu ou non conducteurs (isolants, verres, semi-conducteurs...) respectivement. Les vitesses de dépôt sont en général contrôlées par les tensions de polarisations DC ou RF, la pression du gaz inerte introduit dans l'enceinte pour créer le plasma ainsi que la géométrie des magnétrons. Il est également possible d'introduire dans la chambre de dépôt des gaz réactifs comme l'oxygène ou l'azote.

## 2.1.2 Fonctionnement du bâti de dépôt Plassys

### 2.1.2.1 Généralités

Le bâti de dépôt par pulvérisation cathodique de la société Plassys exploité par le Laboratoire de Magnétisme Louis Néel (LLN) du CNRS est séparé en deux parties distinctes (Fig. 2.2). La première partie est la chambre de dépôt qui comporte les cibles et leurs magnétrons disposés sur un barillet. La deuxième partie est le sas permettant l'introduction des échantillons disposés également sur un barillet. Le sas et la chambre sont séparés par une vanne mobile dont l'ouverture et la fermeture sont contrôlées électroniquement. Lorsque la vanne est fermée, cette configuration permet d'ouvrir le sas (chargement ou retrait des

échantillons...) sans remettre la chambre à l'air libre. Ainsi la chambre et les cibles sont en permanence sous vide. La chambre (beaucoup plus volumineuse que le sas) n'est ouverte que lorsque l'on change une ou plusieurs des cibles.

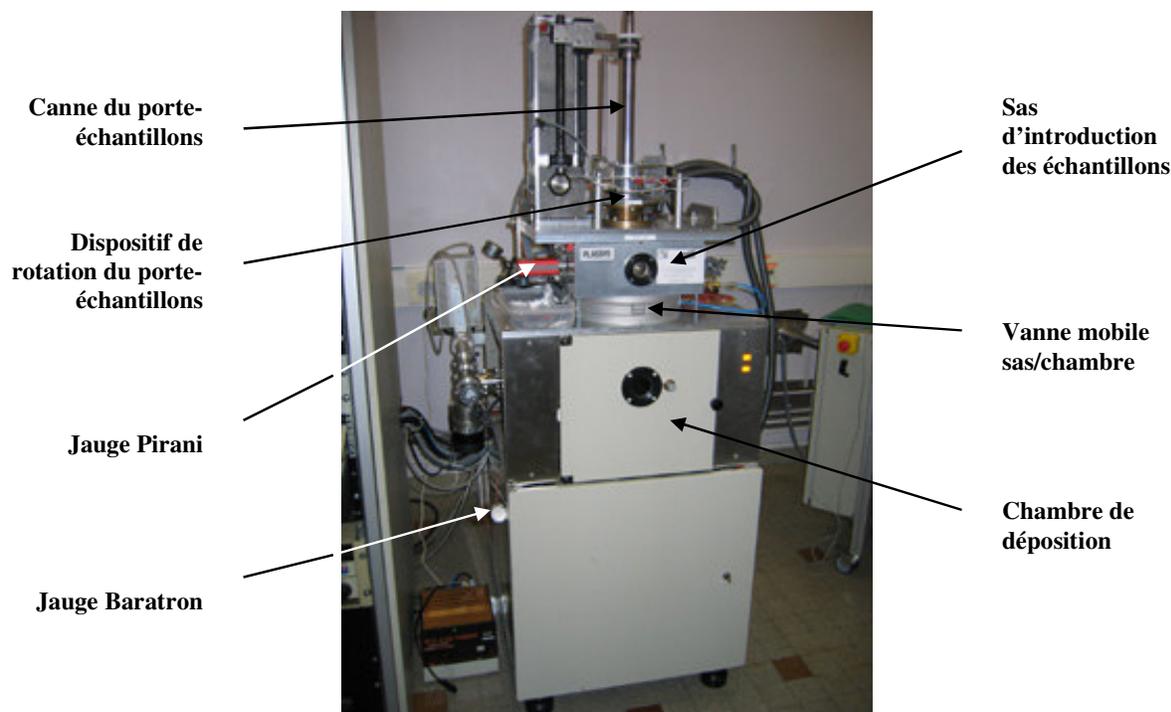


Figure 2.2. Bâti de dépôt par pulvérisation cathodique Plassys.

La chambre (Fig. 2.3) comporte quatre paires de cibles dites face à face disposées sur le barillet. Dans ce cas de figure, chacune des quatre paires de cibles est sous divisée en deux petites cibles disposées parallèlement face à face (Fig. 2.4). Les paires de cibles sont disposées perpendiculairement au plan des substrats (échantillons). Un magnétron unique pour chacune des paires de cibles permet d'avoir un plasma confiné au centre des cibles car à très haut champ, le champ magnétique peut être considéré comme étant uniaxial. Le barillet permet de faire tourner l'ensemble des quatre paires de cibles parallèlement au plan des substrats et de placer l'une ou l'autre paire de cibles face aux substrats selon le matériau que l'on veut déposer. L'allumage du plasma et la rotation du barillet sont contrôlés électroniquement via une interface informatique.

Le sas (Fig. 2.5) comporte un porte-substrats rotatif (qui permet de mettre l'un ou l'autre substrat en face de la paire de cibles désirée) permettant d'effectuer des dépôts avec ou sans

champ magnétique appliqué sur les échantillons, à température ambiante, à chaud ( $700\text{ °C}$  par chauffage électrique) ou à froid ( $77\text{ K}$  par introduction de  $\text{N}_2$  liquide).

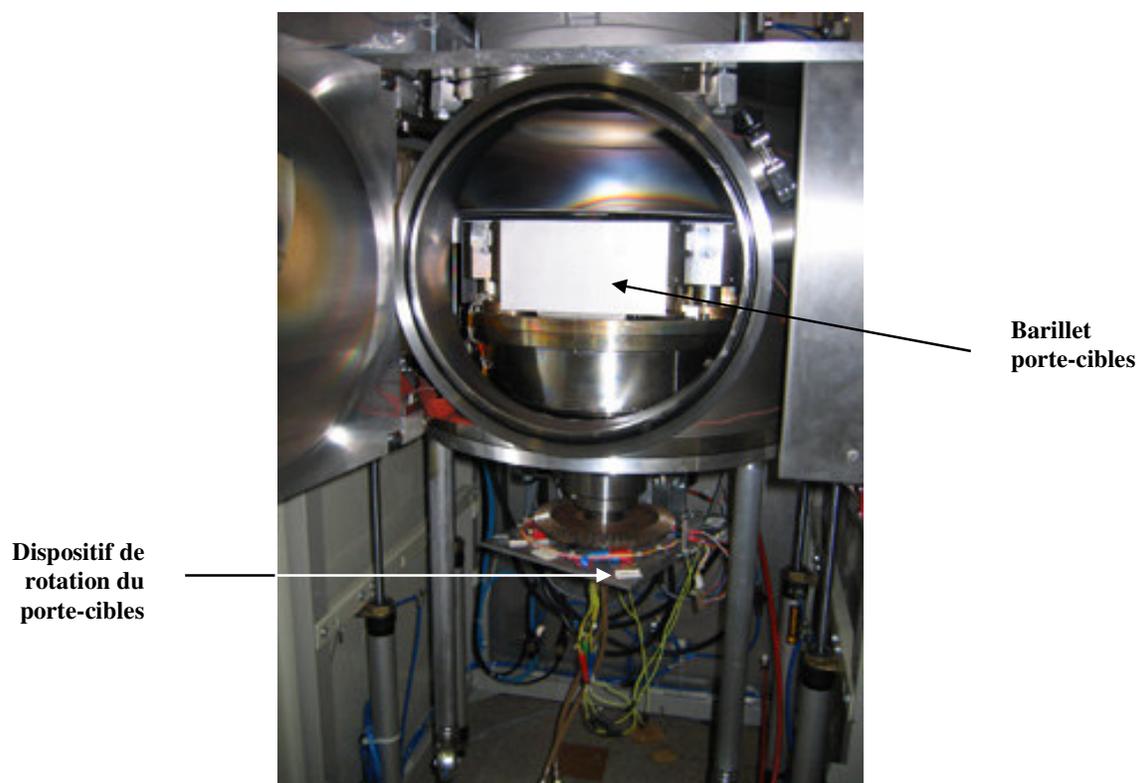


Figure 2.3. Chambre de dépôt par pulvérisation cathodique du bâti Plassys.

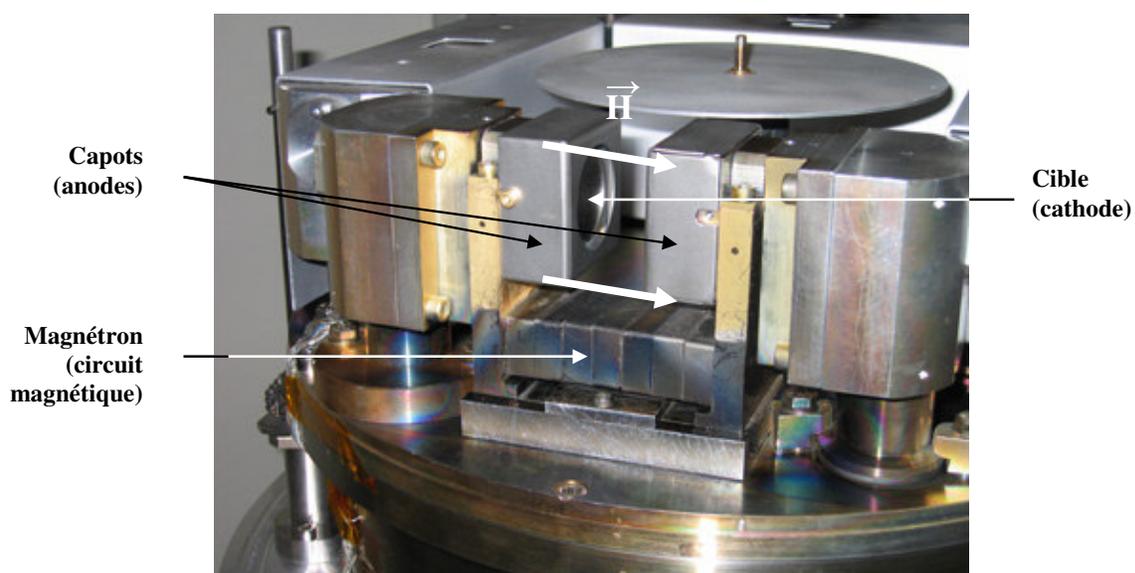


Figure 2.4. Vue détaillée du dispositif de dépôt par pulvérisation cathodique du bâti Plassys.

Tous les échantillons du bâti Plassys présentés dans cette thèse s'effectueront avec des substrats à température ambiante. Le porte-substrats est disposé au bout d'un bras permettant de descendre les échantillons au niveau des cibles lorsque la vanne sas/chambre est ouverte.

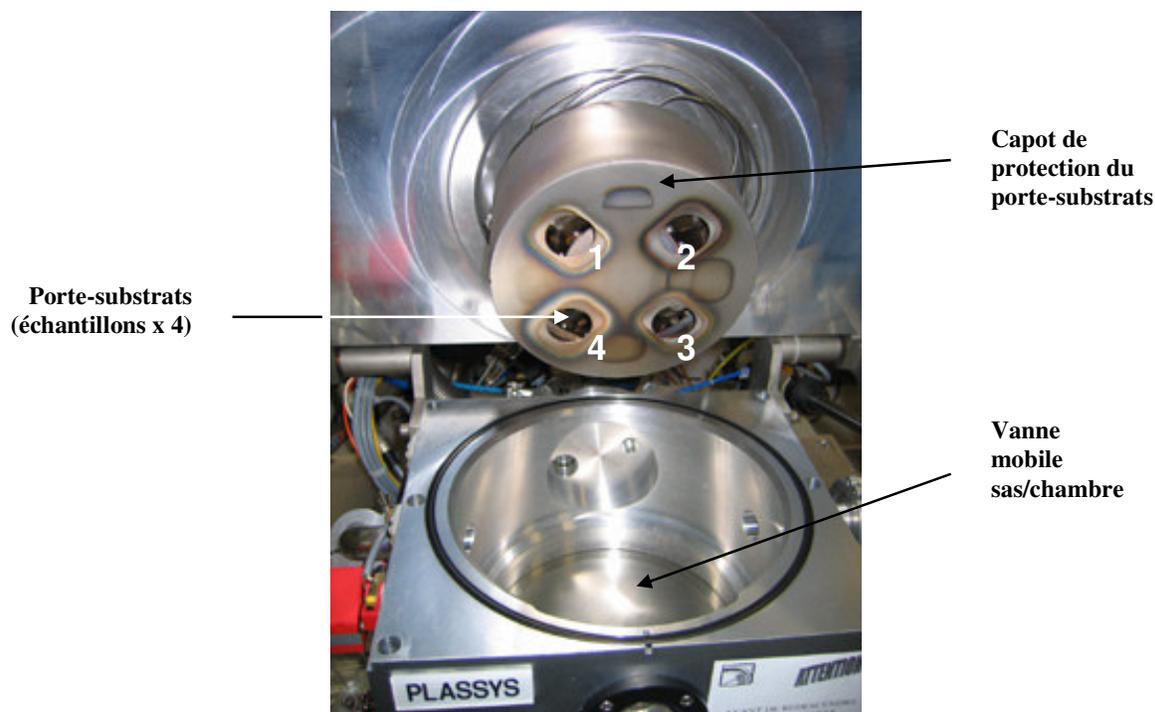


Figure 2.5. Vue détaillée du sas et du porte-échantillons du bâti Plassys.

Le vide nécessaire que l'on doit atteindre avant toute pulvérisation s'obtient grâce à une pompe primaire chassant les gaz jusqu'à une pression d'environ  $10^{-2}$  mbar à partir de laquelle une pompe secondaire cryogénique prend le relais. La pompe secondaire permet d'atteindre un vide d'environ  $1.10^{-8}$  mbar dans le meilleur des cas (lorsque les fuites du bâti sont fortement minimisées). Des micro-vannes pilotées via l'interface informatique permettent d'injecter et de contrôler la pression partielle des gaz (Ar essentiellement et une petite quantité de  $N_2$ ) lors des étapes de pulvérisation. La pression partielle d'Ar utilisée durant la pulvérisation est de l'ordre de  $3$  à  $4.10^{-3}$  mbar. C'est cette pression que nous utiliserons systématiquement lors de tous les dépôts que nous serons amenés à effectuer durant cette thèse.

### 2.1.2.2 Principe de l'oxydation naturelle et module d'oxydation du bâti Plassys

La barrière tunnel d'une JTM a ceci de différent par rapport aux autres couches qu'il s'agit d'un oxyde, l' $\text{Al}_2\text{O}_3$  dans notre cas. Plusieurs méthodes existent pour déposer par pulvérisation cathodique des couches d' $\text{Al}_2\text{O}_3$ . La première consiste à déposer une couche à partir d'une cible d' $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Etant donné qu'il s'agit d'un oxyde, il faut utiliser la pulvérisation cathodique RF dont n'est pas équipée notre machine. Il convient d'employer une autre méthode qui consiste à oxyder une couche d'Al métallique après l'avoir déposée.

Deux techniques largement employées interviennent pour oxyder cette couche d'Al : l'oxydation plasma et l'oxydation naturelle.

L'oxydation plasma consiste à oxyder la couche d'Al grâce à un plasma créé dans une atmosphère mixte Ar/ $\text{O}_2$ . Cette oxydation plasma peut très bien se faire par pulvérisation cathodique RF ou DC. Pendant l'activation, certaines espèces apparaissent au sein du plasma telles l'O<sup>-</sup>, l'O ou l'O<sup>2+</sup> et sont transférées sur la surface de l'échantillon. Le transfert continu de charges à travers la surface de la couche à oxyder permet le maintien d'un champ électrique fort entraînant un taux de diffusion des ions très élevé, même pour des couches d'oxydes relativement épaisses. Le procédé d'oxydation plasma dépend fortement du type de plasma utilisé (RF, DC ou encore micro-onde), de la puissance électrique injectée et de la pression partielle de l' $\text{O}_2$  et de l'Ar. Cette technique est la plus utilisée actuellement pour fabriquer des JTM de très bonne qualité et d'une manière reproductible. Cependant ce n'est pas cette technique que nous emploierons car elle nécessite une enceinte spécifique dédiée à l'oxydation pour éviter les problèmes de contamination des cibles métalliques, enceinte dont notre bâti n'est pas équipé.

Nous utiliserons l'oxydation naturelle qui consiste à laisser s'oxyder la couche d'Al dans une atmosphère d' $\text{O}_2$  pendant un laps de temps défini et à une pression contrôlée. L'oxydation naturelle est également appelée oxydation thermique, procédé très efficace mais assez lent, ce qui justifie l'utilisation de l'oxydation plasma dans de nombreux équipements employés dans l'industrie. L'exposition de la plupart des métaux à de l' $\text{O}_2$  ou à un gaz contenant de l' $\text{O}_2$  entraîne la formation d'un oxyde. Après la formation d'une première couche d'oxyde à la surface du métal, l'oxydation des couches sous-jacentes requiert la diffusion des atomes d'O à travers cette première couche d'oxyde. Le taux de croissance de l'oxyde est très rapide pour la première couche et diminue drastiquement pour les couches sous-jacentes. La figure 2.6

schématise la situation lorsqu'une couche d'oxyde d'épaisseur  $L(t)$  sépare le métal natif de l'atmosphère d' $O_2$  à un temps  $t$ . La somme des courants ioniques  $J_i$  et électriques  $J_e$  (Fig. 2.6) est supposée nulle. Selon ce modèle, dit de Mott et Cabrera [Mot-TFS-39][Cab-RPP-49] le taux de croissance de l'oxyde dépend du courant ionique selon l'expression :

$$\frac{dL(t)}{dt} = R_i J_i \quad (2.1)$$

où  $R_i$  est une constante de proportionnalité. Le mécanisme dépend donc très fortement de l'épaisseur de la couche d'oxyde. Dans notre cas, nous nous situons à la limite des épaisseurs très fines ( $< 20 \text{ \AA}$ ) pour lesquelles le mécanisme dominant d'oxydation est la diffusion par effet tunnel.

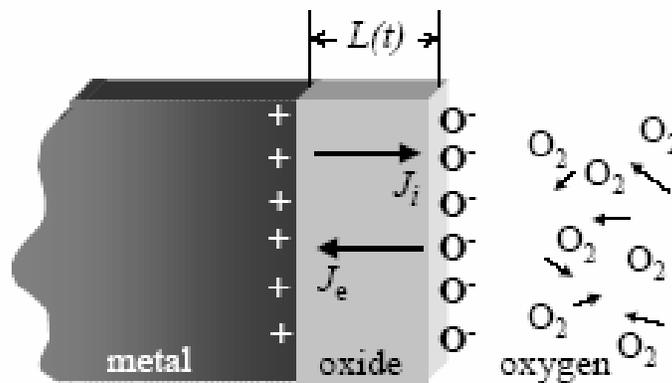


Figure 2.6. Après création de la première couche d'oxyde séparant le métal natif de l'atmosphère d'oxygène, la croissance de l'oxyde dépend de la contribution des courants ioniques et électriques à travers la couche d'oxyde [Dim-Th-02].

Le procédé d'oxydation naturelle du bâti Plassys bénéficie de la présence du sas séparant la chambre de pulvérisation des échantillons à oxyder. Une fois que les couches constituant la première électrode de la JTM ainsi que la fine couche d'Al sont déposées sur les substrats, on remonte les échantillons et on ferme la vanne sas/chambre sans casser le vide du sas. Une adduction manuelle d' $O_2$  est montée sur le sas ainsi qu'un manomètre (cadran à aiguille gradué de 0 à 1 bar) et une pompe secondaire turbo accouplée à une pompe primaire à membrane. On introduit manuellement et en quelques secondes l' $O_2$  jusqu'à une pression  $P$  de quelques dizaines de mbar visualisée à l'aide du manomètre. Une fois le temps

d'oxydation atteint, on pompe l'O<sub>2</sub> du sas en ouvrant la vanne raccord/sas puis on procède soit à la récupération des échantillons en cassant le vide ou à d'autres séries de dépôts en réouvrant la vanne sas/chambre.

### 2.1.3 Structuration par lithographie optique

Il existe, à partir de dépôts préparés par pulvérisation cathodique, deux méthodes distinctes pour fabriquer des jonctions tunnel magnétiques.

La première méthode consiste à déposer les différentes couches formant la JTM à travers une série de masques afin d'obtenir une géométrie des électrodes de mesure sous la forme d'une croix. Dans cette configuration, la surface « utile » de la JTM est définie par la zone de superposition des deux électrodes. Cette méthode d'élaboration relativement directe s'avère très limitée. De nombreux problèmes peuvent apparaître, comme la contamination des interfaces pendant le changement de masque ou l'existence de courants de fuite dans le substrat [Nas-Th-99] et entre les deux électrodes si les masques ont été mal disposés. Pour finir, cette méthode ne permet pas de réaliser des motifs d'une taille inférieure à 50  $\mu\text{m}$  (donc des JTM d'une taille minimale de 2500  $\mu\text{m}^2$ ).

La seconde méthode, que nous utiliserons dans le cadre de cette thèse, consiste à utiliser les techniques de la micro-électronique que sont la lithographie et la gravure ionique sèche.

Les multicouches constituant une JTM sont alors déposées sans interruption sous formes de couches continues et sont ensuite mises en forme lors du processus de gravure par un faisceau d'ions. Cette méthode évite les problèmes de contamination des interfaces et permet de réaliser des jonctions dont la taille latérale est micronique, voir submicronique. Ce dernier aspect est d'une importance capitale dans la perspective des applications de stockage d'informations à très haute densité auxquelles sont destinées les JTM.

Le principe de la lithographie optique ou photolithographie est illustré sur la figure 2.7. La surface de l'échantillon est tout d'abord recouverte avec une résine dite photosensible. La résine est ensuite insolée (exposée) à travers un masque sur lequel figurent les motifs opaques au rayonnement ultraviolet auquel la résine est particulièrement sensible (Fig. 2.7 (a)). L'échantillon est ensuite plongé dans un bain développeur (Fig. 2.7 (b)) dissolvant

sélectivement les zones de résine insolées (pour une résine dite positive) ou les zones de résine non insolées (pour une résine dite négative). On obtient alors une surface dont certaines régions sont masquées par des motifs de résine.

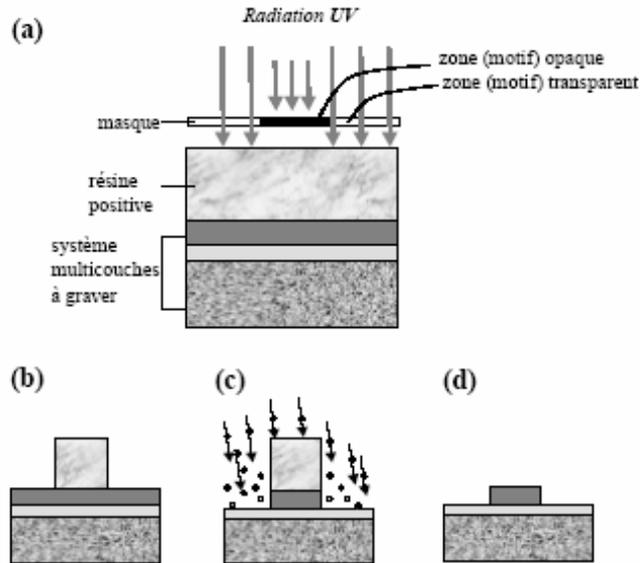


Figure 2.7. Etapes de lithographie UV utilisant une résine positive :

- (a) Enrésinement et insolation à travers un masque opaque au rayonnement UV
- (b) Développement du motif induit dans la résine
- (c) Gravure ionique sèche par faisceau d'ions
- (d) Dissolution de la résine insolée à l'aide d'un solvant [Tiu-Th-00].

On peut ensuite effectuer deux types d'opérations:

- soit la surface de l'échantillon est bombardée par un faisceau d'ions  $Ar^+$  et les zones non protégées par la résine seront gravées (Fig. 2.7 (c)). Après la gravure, l'échantillon est plongé dans un bain de solvant (acétone) afin d'éliminer la résine restante.

- soit un métal ou un isolant est déposé sur toute la surface de l'échantillon avant de dissoudre la résine dans le solvant. A l'issue de cette opération, le dépôt ne subsiste que sur les régions de la surface qui n'ont pas été protégées par la résine. Cette opération s'appelle communément un lift-off et cette technique sera utilisée dans le cadre de cette thèse. A noter que le motif obtenu après gravure est le négatif de celui du masque.

Dans le cadre de cette thèse au laboratoire SPINTEC, nous définirons les JTM en plusieurs étapes de lithographie décrites sur la figure 2.9. Les masques utilisés lors des différentes étapes de lithographie sont représentés sur la figure 2.8.

A partir du dépôt multicouche (figure 2.9 (a)), une première étape de lithographie à l'aide du masque 1 suivie d'une gravure ionique permet de définir le « barreau » qui formera l'électrode inférieure de la jonction (figure 2.9. (b)). Une seconde étape de lithographie à l'aide du masque 2 suivie d'une gravure ionique permet de définir dans chaque « barreau » la surface utile de deux jonctions ainsi que les plots de contact (figure 2.9.(c)).

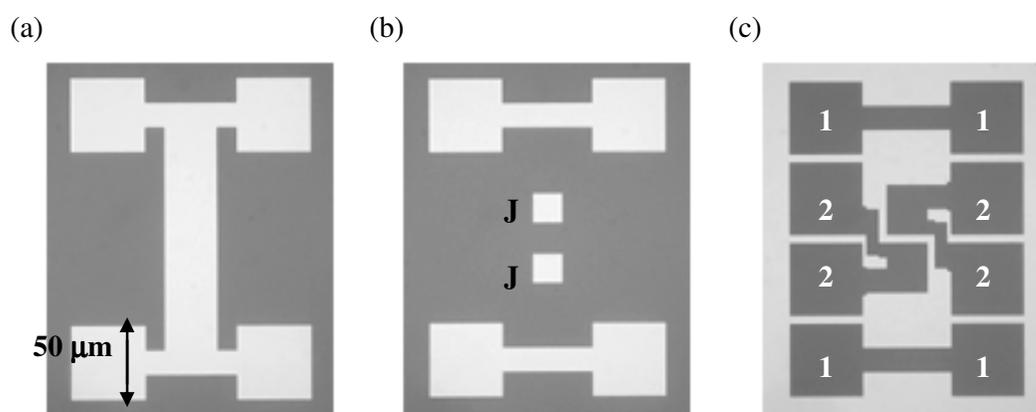


Figure 2.8. Masques utilisés lors des différentes étapes de lithographie UV pour structurer les JTM

(a) Masque 1 : définition des motifs des jonctions individuelles

(b) Masque 2 : définition de chaque JTM (deux par motif, signalées par un J) dans chacun des motifs

(c) Masque 3 : définition des contacts métalliques formant les électrodes inférieures (1) et supérieures (2)

Les zones claires sont constituées d'un métal opaque (Chrome sur la plupart des masques) et les zones sombres sont transparentes.

En dehors de ces zones, la multicouche est gravée jusqu'à la couche MF2 comprise ce qui permettra par la suite de prendre un contact électrique en dessous de la couche MF2 par la couche tampon. Cette opération est importante car en gravant totalement les couches magnétiques, leurs propriétés magnétiques sont mieux définies.

Une couche d'isolant épaisse ( $\text{SiO}_2$  d'une épaisseur approximative de  $800 \text{ \AA}$ ) est ensuite déposée sur toute la surface de l'échantillon par pulvérisation cathodique RF à partir d'une cible de verre. Pendant ce dépôt, la surface supérieure des jonctions ainsi que la surface des plots de contact sont protégées par le motif de résine utilisé dans l'étape de gravure préalable (figure 2.9 (d)).

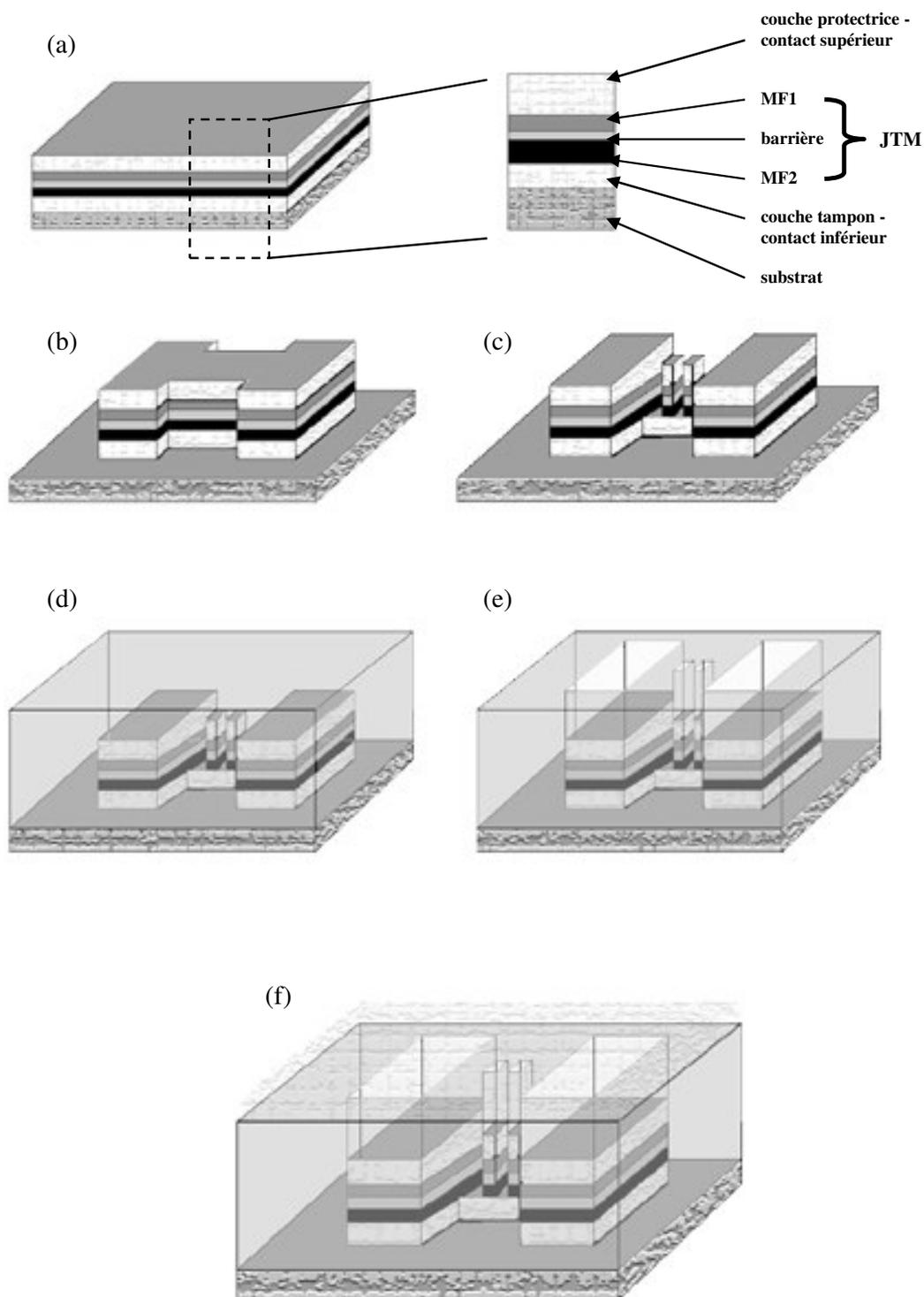


Figure 2.9. Etapes de lithographie UV pour structurer les jonctions tunnel magnétiques

- (a) structure initiale en pleine tranche
- (b) définition des motifs de jonctions
- (c) définition des deux JTM dans chaque motif
- (d) dépôt d'un isolant ( $\text{SiO}_2$ ) pour isoler et protéger les surfaces latérales de chacune des JTM
- (e) étape de *lift-off* permettant d'ouvrir les via vers les électrodes inférieures et le sommet des JTM
- (f) dépôt d'une couche métallique permettant le contact électrique vers les électrodes inférieures et les JTM.

S'ensuit une étape dite « lift-off » permettant d'éliminer le  $\text{SiO}_2$  déposé sur la résine résiduelle et ainsi d'ouvrir les via vers les deux jonctions et les plots de contact (Fig. 2.9 (e)). Cette étape est délicate car il est difficile de bien ouvrir les via, surtout quand les motifs définissant les JTM sont petits (taille latérale  $< 1 \mu\text{m}$ ). Il est donc nécessaire de plonger les échantillons dans l'acétone pendant plusieurs heures, de renouveler le solvant régulièrement et de soumettre le bain aux ultrasons.

Une fois les via ouverts, une troisième étape de lithographie avec le masque 3 permet de définir les motifs des contacts permettant de relier les électrodes inférieures et supérieures à un réseau de plots de mesures en quatre pointes. S'ensuit une dernière pulvérisation cathodique DC avec un métal conducteur (Au, Al, Ag, Pt...) recouvrant l'ensemble de la surface de l'échantillon (Fig. 2.9 (f)). Un dernier lift-off permet de définir le réseau de plots de contact représenté sur la figure 2.8 (c). Les JTM obtenues (figure 2.10) sont opérantes et mesurables.

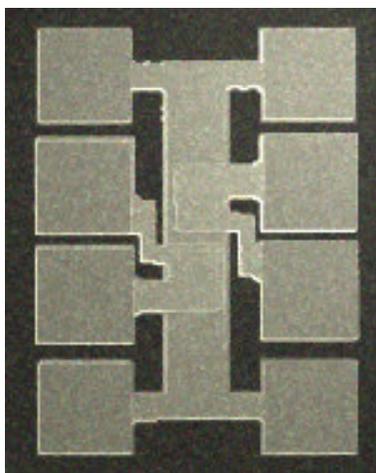


Figure 2.10. Deux jonctions tunnel magnétiques entièrement structurées obtenues après toutes les étapes de lithographie, gravure et lift-off.

## 2.1.4 Echantillons préparés dans le bâti Plassys

### 2.1.4.1 Vannes de spin

Toutes les vannes de spin élaborées au laboratoire comportent un spacer de Cu. Les électrodes ferromagnétiques sont constituées de NiFe et de Co ou d'un empilement de ces

deux types de couches. Dans certains cas nous avons ajouté une couche antiferromagnétique de FeMn afin de piéger la couche dure de l'empilement. La figure 2.11 schématise une vanne de spin avec piégeage de la couche dure par une couche de FeMn. La couche dure de cette vanne de spin est constituée de Co (épaisseur typique de 3 nm), élément ayant un taux de polarisation et une anisotropie magnétique élevés.

Le spacer conducteur est en Cu d'une épaisseur optimale de 2,5 nm. La couche douce comporte une couche de Co (épaisseur typique de 5 nm) à l'interface avec le Cu et une couche de NiFe (épaisseur typique de 5 nm). La dernière couche de Ta est une couche de protection (pour éviter toute oxydation de la couche ferromagnétique supérieure) d'une épaisseur d'environ 1 nm.

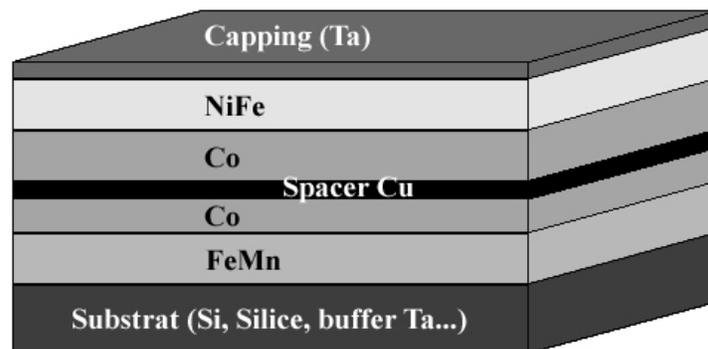


Figure 2.11. Schéma représentant une vanne de spin constituée d'une couche dure de Co piégée avec une couche antiferromagnétique de FeMn, d'une couche douce constituée d'un empilement d'une couche de Co et d'une couche de NiFe, d'un spacer de Cu ainsi que d'une couche fine de protection (capping) en Ta.

Les taux de GMR de ces vannes de spin ont été obtenus par des mesures de résistance électriques en quatre pointes sous champ magnétique sur un appareil Phase Metrics au laboratoire SPINTEC. Les mesures se font en CIP (Current In Plane) ce qui permet de tester électriquement les vannes de spin en pleine tranche dès leur élaboration. Les taux de GMR mesurés dans le meilleur des cas (avec les épaisseurs détaillées précédemment) sont d'environ 3 % à température ambiante.

Ce type de vannes de spin a été élaboré en plusieurs étapes car nous n'avons que quatre cibles alors que nous avons besoin de cinq éléments ou alliages distincts (Ta, FeMn, Co, Cu, NiFe). Une ouverture de la chambre est alors nécessaire pour introduire la cinquième et dernière

cible, à savoir celle de NiFe (ce qui sous-entend enlever la cible de Co, FeMn ou Cu), tout en maintenant les échantillons sous vide dans le sas.

#### 2.1.4.2 Miroirs de spin

Le miroir de spin (figure 2.12) développé par Da Costa *et al.* [DaC-J3M-02], tire partie du phénomène de réflexion spéculaire des électrons de conduction à l'interface entre une électrode métallique (magnétique ici) et une couche isolante. En déposant une couche métallique oxydée à la surface de l'électrode magnétique supérieure, on « confine » les électrons dans la structure FM1/isolant/FM2 et on favorise ainsi la polarisation en spin des électrons de conduction.

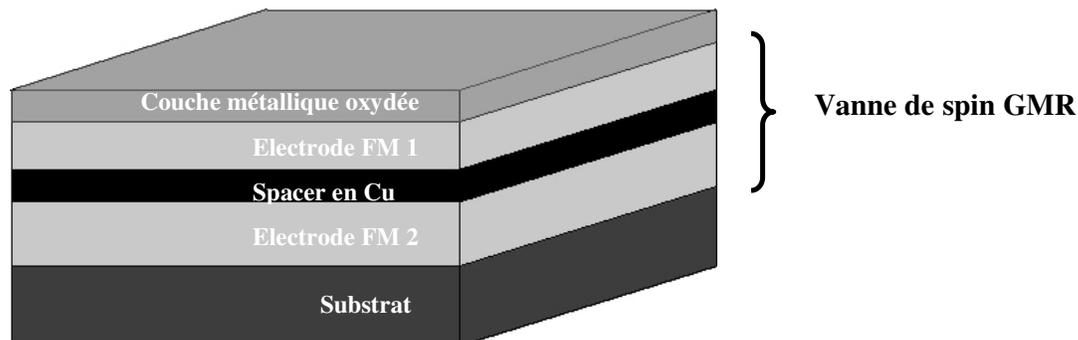


Figure 2.12. Schéma type d'un miroir de spin constitué d'une couche fine métallique partiellement ou totalement oxydée déposée sur une vanne de spin classique.

Ce type d'échantillon est utile pour contrôler la qualité de la couche métallique oxydée. En effet, la réflexion spéculaire est d'autant plus efficace que la couche métallique est entièrement oxydée. A l'inverse, une couche métallique sous-oxydée « capturera » une partie des électrons de conduction (qui transiteront par les parties restées métalliques qui de plus ne contribuent pas à la réflexion spéculaire) qui ne seront pas polarisés dans la structure FM1/isolant/FM2, dégradant ainsi le taux de GMR. D'une même manière, une couche métallique sur-oxydée transmettra une partie de ses atomes d'oxygène, oxydant partiellement à l'interface la couche ferromagnétique adjacente FM1, dégradant ainsi ses propriétés conductrices et magnétiques. Ceci a pour effet de limiter la polarisation des électrons de conduction, d'augmenter la résistance électrique de la structure, de freiner la réflexion spéculaire et de faire chuter le taux de GMR.

La mesure du taux de GMR d'un miroir de spin avant et après irradiation à des fluences différentes permettra de savoir si les ions lourds rapides provoquent des effets sensibles sur une couche isolante ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), et par extension, sur la barrière tunnel isolante d'une JTM.

#### 2.1.4.3 Demi-jonctions tunnel magnétiques

Lors de cette thèse, nous allons utiliser des demi jonctions magnétiques faites de l'empilement d'une couche ferromagnétique simple de Co sur un substrat de Si et d'une couche d'Al oxydée naturellement avec le procédé d'oxydation décrit dans le paragraphe 2.1.2.2.

Ces échantillons permettront de faire une cartographie par AFM/TUNA (procédé décrit plus tard dans ce chapitre) de l'intensité du courant tunnel traversant la couche isolante lorsque celle-ci est soumise à un potentiel. La cartographie de l'intensité du courant tunnel nous permet de vérifier l'homogénéité et les caractéristiques électroniques de la couche isolante. C'est pourquoi quelques échantillons de demi-jonctions **Co /  $\text{AlO}_x$ (10)** seront irradiés par des ions lourds rapides afin de vérifier l'impact de ces irradiations sur les propriétés de la couche isolante (chapitre 4).

#### 2.1.4.4 Couches fines de $\text{Gd}_x\text{Co}_{1-x}$

Nous serons amenés à étudier les propriétés magnétiques de couches de  $\text{Gd}_x\text{Co}_{1-x}$  préparées par pulvérisation cathodique dans le bâti Plassys. Ces mesures et résultats seront exposés dans le chapitre 3.

La préparation de ces couches a nécessité la fabrication de deux paires de cibles de pulvérisation constituées d'un alliage de Gd et de Co à la stœchiométrie bien établie. La fabrication d'une cible est réalisée à l'aide d'un four à induction électromagnétique sous argon (Fig. 2.13). Les températures de fusion du Co et du Gd sont de  $1345\text{ }^\circ\text{C}$  et de  $780\text{ }^\circ\text{C}$  respectivement. Dès que les deux éléments sont totalement fondus, l'induction électromagnétique va induire des mouvements de convection dans l'alliage en fusion permettant le mélange total des deux éléments. Une fois cette étape franchie, nous devons stabiliser l'alliage à une température de cristallisation dépendant de la stœchiométrie. Le diagramme de phase du  $\text{Gd}_x\text{Co}_{1-x}$  (Fig. 2.14) nous indique que la phase cristallographique

obtenue sera constituée de cristaux de  $Gd_2Co_{17}$  et de  $GdCo_3$  pour l'alliage  $Gd_{14}Co_{86}$  et de cristaux de  $GdCo_5$  et de  $Gd_2Co_7$  pour l'alliage  $Gd_{19}Co_{81}$ .



Figure 2.13. Four à induction électromagnétique du Laboratoire Louis Néel.

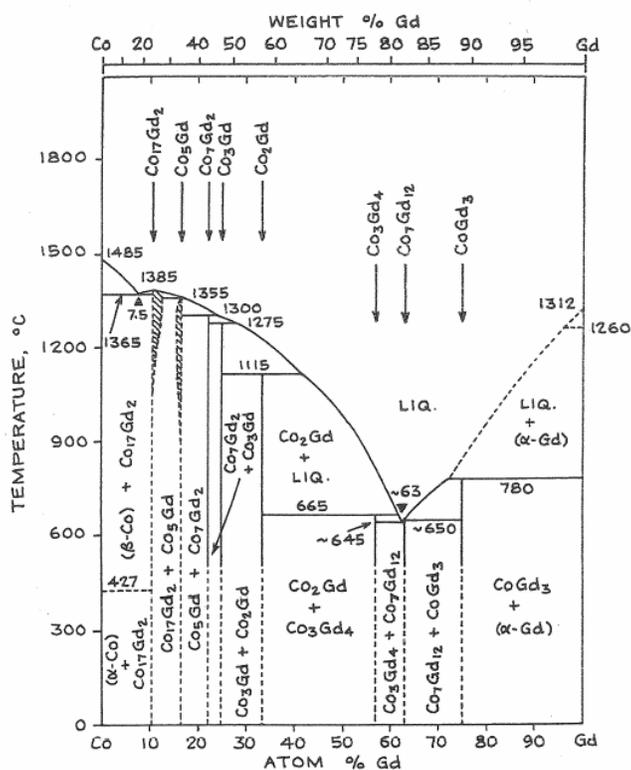


Figure 2.14. Diagramme de phase de l'alliage  $Gd_xCo_y$  [Bus-JLCM-69].

Dans les deux cas, nous stabilisons la température à environ  $900\text{ }^{\circ}\text{C}$  pendant 24h00 afin d'obtenir une phase cristallographique homogène, température pour laquelle notre alliage est solide. Par la suite, nous faisons refroidir l'alliage en réduisant progressivement l'induction électromagnétique ce qui a pour effet de figer la phase cristallographique homogène obtenue et d'éviter toute dégradation de l'alliage, lequel ne supporterait pas l'effet d'une trempe rapide car il est soumis à des contraintes qui le fragilisent et peuvent le faire exploser.

Toutes ces étapes se font sous argon afin d'éviter toute oxydation des éléments, particulièrement lorsque ceux-ci sont à température élevée. La dernière étape consiste à découper le bloc obtenu en deux cibles distinctes de  $30\text{ mm}$  de diamètre par électroérosion. Les cibles obtenues ont une épaisseur de  $5\text{ mm}$  et, après un bain de décapage à l' $\text{HNO}_3$  concentré, elles sont collées sur les supports de cible à l'aide d'une colle thermique chargée en particule d'Ag.

### 2.1.5 Fabrication de jonctions tunnel magnétiques IPCMS

Certaines jonctions tunnel magnétiques que nous serons amenés à utiliser dans le cadre de cette thèse nous ont été fournies par l'Institut de Physique et de Chimie des Matériaux de Strasbourg (IPCMS). Leur méthode de réalisation diffère peu de la notre et fait appel aux mêmes techniques que sont la pulvérisation cathodique et la lithographie UV.

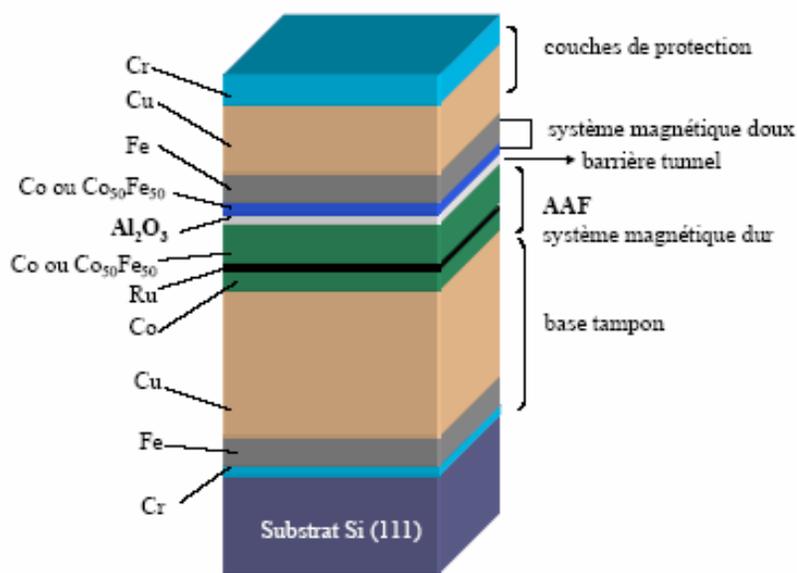


Figure 2.15. Schéma de l'empilement multicouche d'une jonction tunnel magnétique dont l'électrode dure est constituée d'un système antiferromagnétique artificiel. Cet empilement constitue la structure de base des JTM de l'IPCMS utilisées durant cette thèse.

L'empilement initial est décrit sur la figure 2.15 et les différentes étapes de structuration sont décrites sur la figure 2.16. Par contre, leur processus de fabrication ne fait pas appel au lift-off mais à la gravure ionique réactive (RIE) en particulier lors de l'étape « d'ouverture » de l'isolant pour avoir accès aux contacts électriques (Fig. 2.16 (e)). La dernière étape de lithographie suivie du dépôt d'une bicouche Nb/Al (Fig. 2.16 (f)) permet de définir les contacts électriques des couches ferromagnétiques supérieures et inférieures des JTM.

Les multicouches en pleine tranche déposées ont été structurées au laboratoire de SIEMENS à Erlangen (Allemagne). Leur procédé a permis d'obtenir des JTM carrées ayant des tailles latérales égales à 10, 20, 50 ou 100  $\mu\text{m}$ . La figure 2.17 nous donne un aperçu d'une JTM de l'IPCMS structurée au laboratoire SIEMENS.

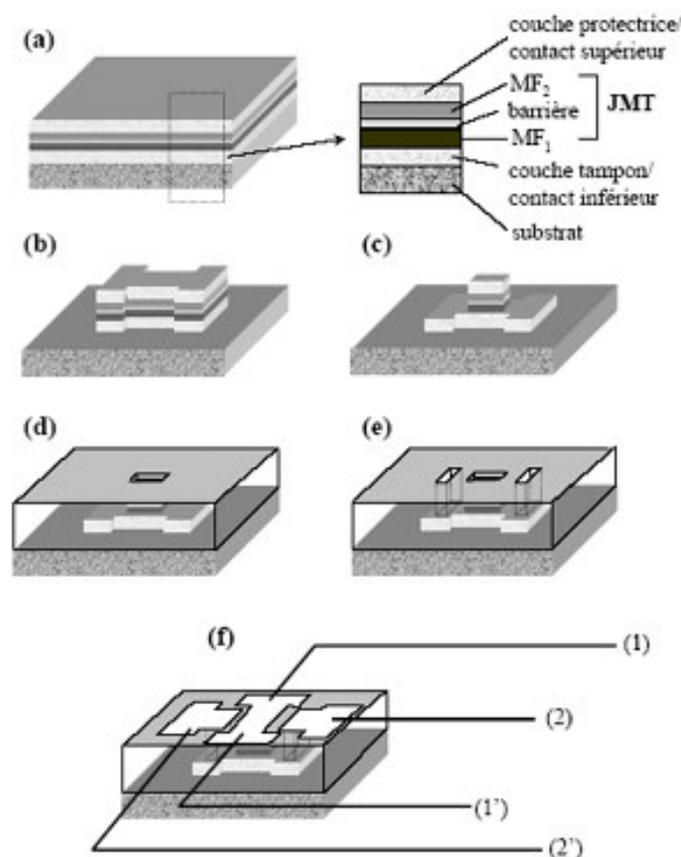


Figure 2.16. Étapes de lithographie UV pour structurer les jonctions tunnel magnétiques IPCMS

- (a) structure initiale en pleine tranche
- (b) définition des motifs de jonctions individuelles
- (c) définition de la JTM (surface active) dans chaque motif de jonction individuelle
- (d) dépôt d'un isolant ( $\text{SiO}_2$ ) pour isoler et protéger les surfaces latérales de chacune des JTM
- (e) gravure ionique réactive (RIE) dans l'isolant afin d'accéder à la couche tampon conductrice
- (f) dépôt des contacts métalliques formant les électrodes du haut (1), (1') et du bas (2), (2') [Tiu-Th-00].

D'autres JTM provenant des sociétés VEECO et Cypress Semiconductors ont été utilisées durant cette thèse, mais pour des raisons de confidentialité, leurs procédés de structuration respectifs ne sont pas autorisés à être divulgués.

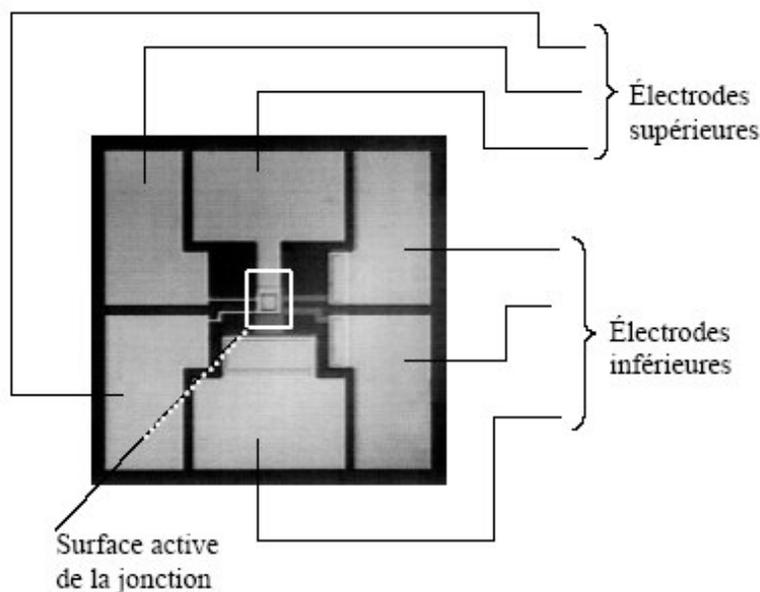


Figure 2.17. Jonction tunnel magnétique structurée par la lithographie optique UV au laboratoire SIEMENS. La surface de la JTM représentée ici est de  $20 \times 20 \mu\text{m}^2$  [Tiu-Th-00].

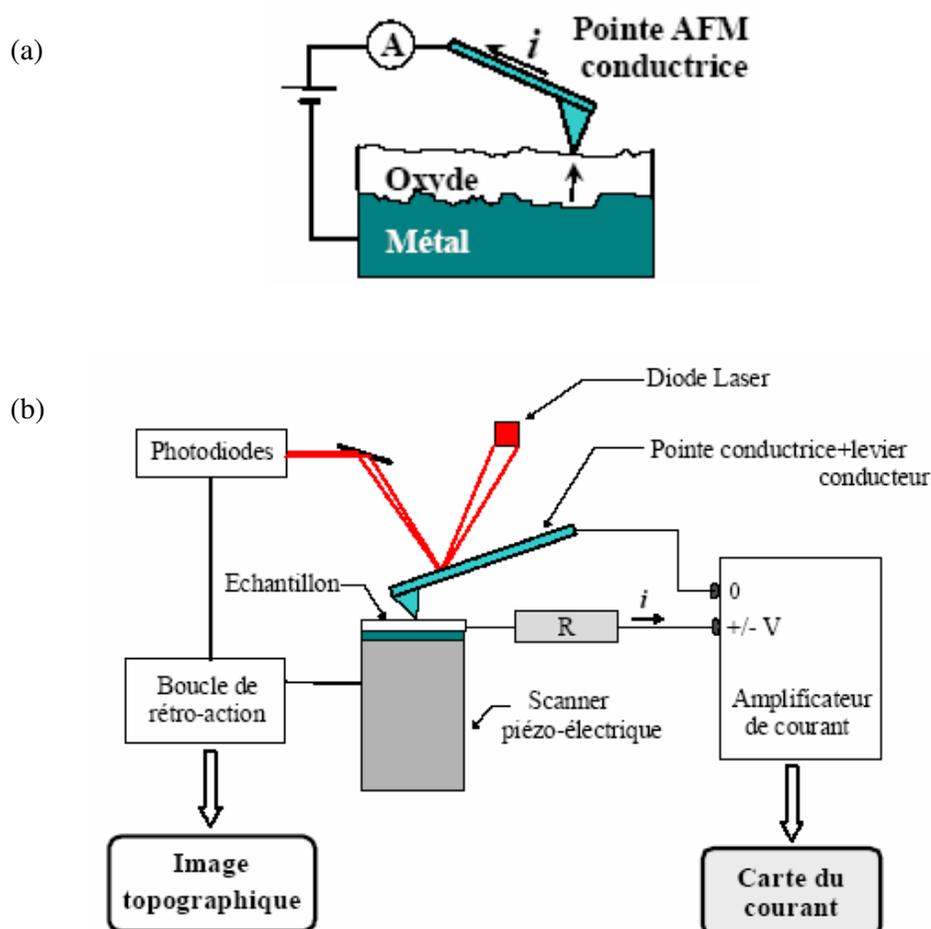
## 2.2 Techniques de caractérisation de multicouches et de jonctions tunnel magnétiques

### 2.2.1 Caractérisation structurale – Cartographie des courants tunnel (AFM/TUNA)

Par la microscopie AFM conventionnelle, nous accédons à des informations sur la distribution spatiale de la rugosité en surface. Cependant, nous sommes incapables d'obtenir des informations sur l'homogénéité spatiale chimique de l'oxyde, ou bien sur la topologie de l'interface enterrée, c'est à dire les corrélations des rugosités des différentes couches d'une multicouche. Néanmoins, ces aspects sont très importants car ils peuvent déterminer des fluctuations de la hauteur et de la largeur de la barrière tunnel, induisant des fluctuations spatiales du courant tunnel. Afin de pouvoir étudier ces propriétés, une nouvelle technique de

mesure a été développée à l'IPCMS de Strasbourg par Victor da Costa [DaC-JAP-98][DaC-EPJB-00].

Les propriétés locales de transport de la jonction sont étudiées en utilisant une pointe conductrice [Mor-JJAP-89][Hou-APL-96][DaC-JAP-98] composée d'une pointe standard de  $\text{Si}_3\text{N}_4$  sur laquelle a été déposé un film conducteur de  $\text{TiN}_x$ .



**Figure 2.18.** Schéma du principe de fonctionnement de la cartographie des courants tunnel.

- (a) Schéma simplifié avec un tension appliquée entre la pointe conductrice formant l'électrode supérieure de la JTM et l'électrode inférieure.
- (b) Schéma détaillé avec l'AFM opérant en mode contact et mesurant simultanément la topographie et les courants tunnel à travers la couche d'oxyde [Tiu-Th-00].

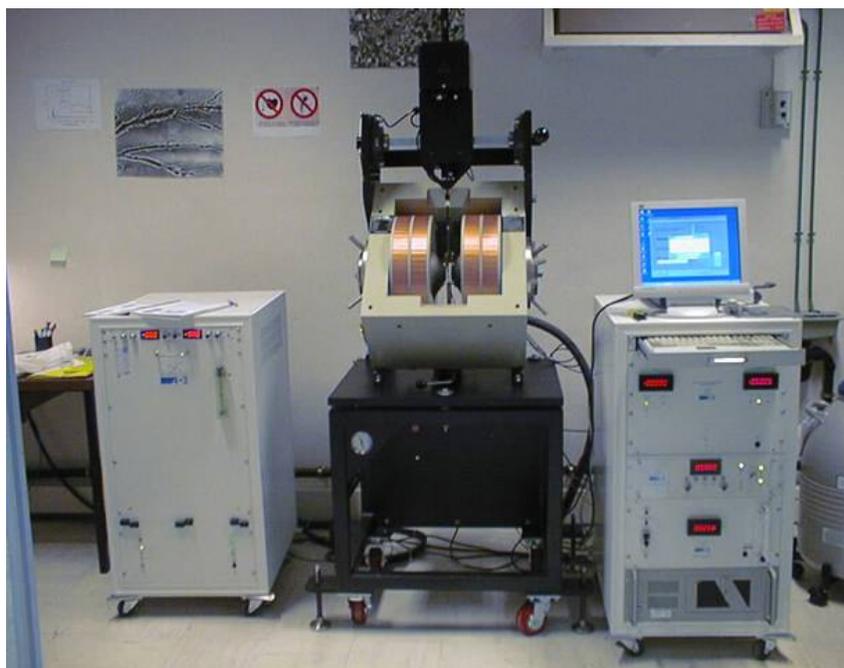
En opérant en mode contact et à force constante (quelques  $nN$ ), la pointe conductrice sonde la surface supérieure de l'oxyde et est utilisée comme électrode supérieure de la jonction tunnel

(figure 2.18 a)). Une tension continue, typiquement  $1\text{ V}$ , est appliquée entre l'électrode métallique inférieure de la jonction tunnel et la pointe conductrice pour faire circuler un courant à travers la barrière (figure 2.18 (b)). Cette technique permet de mesurer simultanément la rugosité de la surface et l'intensité du courant transmis. Ainsi, elle permet de localiser les différents types de défauts dans la barrière isolante qui induisent des fluctuations du courant tunnel à une échelle nanométrique. L'échelle de la mesure est alors déterminée par la dimension de la pointe qui, au niveau de la courbure, est d'approximativement  $30\text{ nm}$ .

## 2.2.2 Caractérisation des propriétés magnétiques et électriques

### 2.2.2.1 Magnétomètre à échantillon vibrant (VSM)

Le magnétomètre à échantillon vibrant (figure 2.19) permet de déterminer en fonction du champ magnétique appliqué et de la température les propriétés magnétiques de couches minces et de petits cristaux de nature diverse (ferromagnétiques, oxydes magnétiques etc.).



**Figure 2.19.** Vue générale d'un magnétomètre à échantillon vibrant (ou *Vibrating Sample Magnetometer* VSM). A gauche se trouve l'alimentation en courant continu des bobines d'Helmholtz induisant le champ magnétique appliqué, au centre le VSM en lui-même et à droite la console permettant de paramétrer la ou les mesures magnétométriques et l'acquisition des mesures.

Le principe de cet appareil repose sur une méthode de flux qui consiste à mesurer le flux induit  $F$  dans un bobinage par déplacement périodique de l'échantillon. Plus précisément, on fait vibrer verticalement (axe  $z$ ) à une fréquence  $f$  un échantillon placé au centre d'un bobinage de mesure avec une amplitude constante. La tension induite dans les bobines de détection par un échantillon de moment magnétique  $\mu$  est obtenue à partir du théorème de réciprocité :

$$F = \frac{B}{I} \mu \quad (2.2)$$

où  $B$  est le champ magnétique qui serait produit par un courant fictif  $I$  circulant dans les bobines de détection. La tension  $V$  induite dans les bobines de détection est donnée par la relation :

$$V = -\frac{dF}{dt} = -\mu \frac{d}{dz} \frac{B}{I} \cdot \frac{dz}{dt} \quad (2.3)$$

La mesure de la tension  $V$  permet de déterminer les variations du flux  $F$  consécutives à la vibration de fréquence  $f$  et de déduire le moment magnétique  $\mu$  de l'échantillon en fonction du champ appliqué.

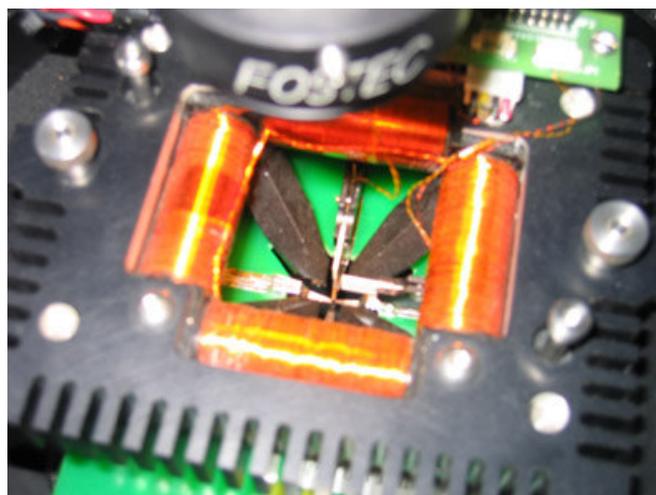
L'intérêt de cette méthode de mesure est sa rapidité car les dérives parasites gênantes sont des signaux pseudo-continus éliminés par la détection synchrone.

Le VSM utilisé lors de cette thèse est un modèle de la société DMS dont la sensibilité est de  $10^{-9} \text{ A.m}^2$  à  $300 \text{ K}$  et de  $10^{-8} \text{ A.m}^2$  à température variable et dont le champ magnétique maximum est de  $2,8 \text{ T}$ .

#### 2.2.2.2 Testeur sous pointes (Phase Metrics)

Certaines mesures de transport que nous décrivons dans cette thèse ont été effectuées grâce à un testeur sous pointes Phase Metrics. Ce testeur permet de caractériser des wafers d'un diamètre allant jusqu'à  $8 \text{ pouces}$  disposés sur un support mobile et permet d'effectuer des mesures de transport avec un nombre variables de pointes (pouvant aller jusqu'à seize) et

avec un champ magnétique dans le plan variable en direction et en intensité (avec un maximum de  $1200 \text{ Oe}$ ). Un quadripôle (figure 2.20) à quatre bobines indépendantes permet de créer un champ magnétique local au niveau de l'échantillon, champ qui est mesuré via deux sondes de Hall perpendiculaires l'une à l'autre.



**Figure 2. 20.** Quadripôle du testeur sous pointes Phase Metrics. On peut distinguer les quatre bobines indépendantes, les deux sondes de Hall ainsi que le réseau de pointes de contact.

Des cartes à pointes ayant chacune les géométries et les dimensions requises ajustées aux motifs des échantillons (particulièrement lorsqu'ils sont lithographiés) peuvent être adaptées. Un logiciel, un moniteur et une caméra permettent de configurer les cartes, les paramètres de test ainsi que de placer précisément les pointes sur les échantillons. Dans notre cas, nous n'utiliserons qu'une seule carte permettant de mesurer deux échantillons distincts en quatre pointes. Cette carte possède des pointes dont la taille et la disposition correspondent aux contacts représentés sur la figure 2.8(c). Le testeur permet d'effectuer un grand nombre de tests tels que des cycles magnétorésistifs ou des mesures de caractéristiques  $I(V)$  etc.

### 2.2.2.3 Effet Hall extraordinaire (EHE)

L'appareil de mesure utilisé permet des mesures d'EHE dans une gamme de températures allant de  $0$  à  $300 \text{ K}$ , le champ magnétique induit perpendiculairement au plan des couches pouvant aller jusqu'à  $6 \text{ T}$  (grâce à une bobine supraconductrice), le courant électrique de mesure étant de  $10 \text{ mA}$  typiquement.

L'effet Hall dans un conducteur non magnétique n'est autre que la conséquence de la force de Lorentz  $\vec{F}$  exercée sur les porteurs de charges électriques selon la formulation suivante :

$$\vec{F} = q\vec{E} + q\vec{v} \wedge \vec{B} \quad (2.4)$$

avec  $\vec{v}$  étant le vecteur vitesse du porteur de charge.

Si l'on applique à un matériau conducteur une densité de courant  $\vec{j}_x$  et un champ magnétique  $\vec{B}_z$ , alors il apparaît un champ électrique  $\vec{E}_y$  comme représenté sur la figure 2.21.

Le champ électrique  $\vec{E}_y$  induit une tension électrique mesurable  $V_H$  dite tension de Hall. On parlera ici d'Effet Hall ordinaire (EHO).

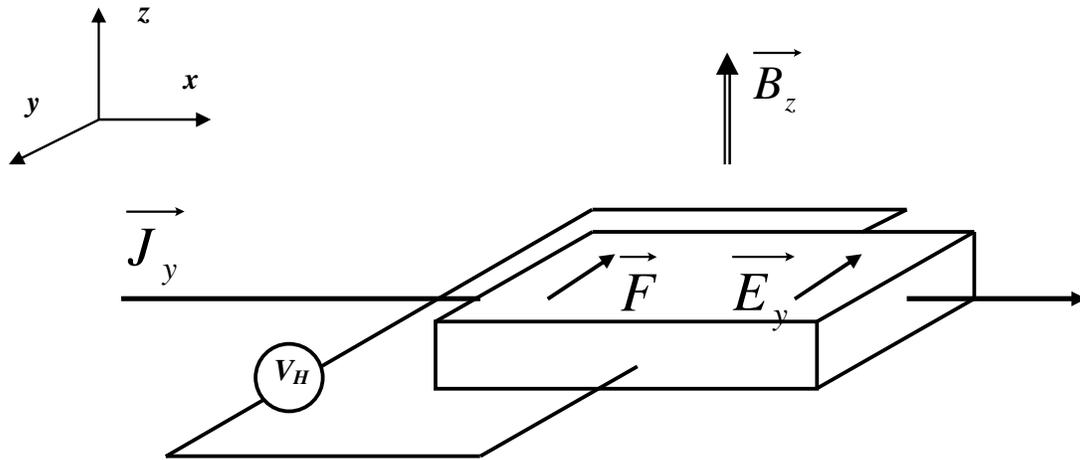


Figure 2. 21. Principe de l'effet Hall

D'une manière générale, la relation entre la densité de courant  $\vec{j}$ , le tenseur de conductance et le champ électrique  $\vec{E}$  est donnée par :

$$\vec{j} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} & \sigma_{xz} \\ \sigma_{xy} & \sigma_{yy} & \sigma_{yz} \\ \sigma_{xz} & \sigma_{yz} & \sigma_{zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} \quad (2.5)$$

Pour un échantillon isotrope, c'est à dire avec  $\sigma_{xx} = \sigma_{yy} = \sigma_{zz} = \sigma$  et le reste des termes nuls, on retrouve la loi d'Ohm classique  $\vec{j} = \sigma \vec{E}$ . Dans le cas où l'échantillon n'est pas isotrope,  $\vec{j}$  n'est pas obligatoirement parallèle à  $\vec{E}$  et on parle ici d'effet Hall planaire.

Dans un conducteur magnétique (ferromagnétique, ferrimagnétique...), il existe une contribution supplémentaire à l'effet Hall. La résistivité Hall (en  $\Omega.m$ ) peut alors s'exprimer avec la combinaison linéaire suivante :

$$\rho_{xy} = \rho_H = \rho_0 B + \mu_0 \rho_S M_S \quad (2.6)$$

avec  $\rho_0$  étant le coefficient Hall ordinaire (en  $m^3.C^{-1}$ ) et  $\rho_S$  étant le coefficient Hall extraordinaire (en  $m^3.C^{-1}$ ). L'effet Hall ordinaire est linéaire en champ alors que l'effet Hall extraordinaire est lui linéaire en aimantation.

Les deux contributions à la tension Hall dues aux effets Hall ordinaire et extraordinaire selon  $\vec{y}$  sont respectivement :

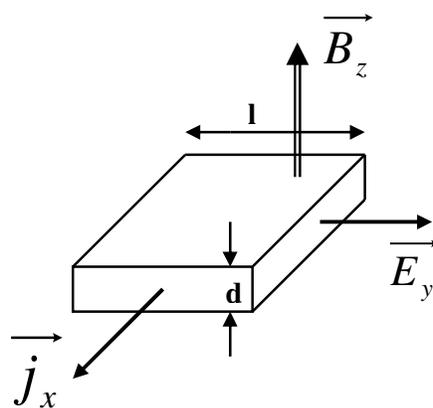
$$\begin{cases} V_{EHO} = \rho_0 j_x B_z l = \rho_0 B_z l \frac{I}{S} \\ V_{EHE} = \mu_0 \rho_S j_x M_z l \end{cases} \quad (2.7)$$

ou  $l$  est la largeur du conducteur (figure 2.22) et  $S$  est la surface traversée par courant,

$\rho_0 = \frac{1}{ne}$  avec  $n$  le nombre de porteurs de charge par unité de volume et  $e$  la charge élémentaire ( $1,6.10^{-19} C$ ).

Pour un métal conducteur,  $n$  est compris entre  $10^{28}$  et  $10^{30}$  porteurs. $m^{-3}$ . Dans le cas d'un semiconducteur,  $n$  est compris entre  $10^{22}$  et  $10^{23}$  porteurs. $m^{-3}$ .

La tension Hall ordinaire mesurée est de l'ordre du  $\mu V$ , comparable au bruit de mesure. La contribution de l'effet Hall extraordinaire est bien plus grande, de l'ordre du  $mV$ . Il s'ensuit que toutes les mesures effectuées en effet Hall dans ce type de matériau décriront uniquement l'effet Hall extraordinaire.



**Figure 2. 22.** Champ magnétique appliqué, champ et courant électrique vis-à-vis de l'épaisseur  $d$  et de la largeur  $l$  d'une piste conductrice.

## Références du chapitre 2

- [Bus-JLCM-69] K. H. J. Buschow, A. S. Van Der Goot, « The intermetallic compounds in the gadolinium-cobalt system », JLCM, 17, p249, (1969).
- [Cab-RPP-49] N. Cabrera, N. F. Mott, Rept. Progr. Phys., 12, p163, (1949).
- [Dac-JAP-98] V. Da Costa, F. Bardou, C. Beal, Y. Henry, J. P. Bucher, K. Ounadjela, « Nanometric cartography of tunnel current in metal–oxide junctions », J. Appl. Phys., 83, p6703, (1998).
- [DaC-EPJB-00] V. Da Costa, Y. Henry, F. Bardou, M. Romeo, K. Ounadjela, Euro. Phys. J. B. 13, p297, (2000).
- [DaC-J3M-02] V. Da Costa, A. Iovan, K. Ounadjela, W. Allen, J. F. Gregg, B. Dieny, « Spin-polarized electronic reflections at metal-oxide interfaces », JMMM, 240, 1-3, p140, (2002).
- [Dim-Th-02] T. Dimopoulos, « Transport polarisé en spin dans les jonctions tunnel magnétiques : le rôle des interfaces métal/oxyde dans le processus tunnel », Thèse de Doctorat, Université Louis Pasteur de Strasbourg, (2002).
- [Hou-APL-96] F. Houzé, R. Meyer, O. Shnieegans, L. Boyer, Appl. Phys. Lett., 69, p1975 (1996)
- [Mor-JJAP-89] S. Morita, T. Ishizaka, Y. Sugawara, T. Okada, S. Mishima, S. Imai, and N. Mikoshiba, Jpn. J. Appl. Phys., part 2, 28, L1634, (1989).
- [Mott-TFS-39] N. F. Mott, Trans. Faraday Soc., 35, p1175, (1939).
- [Nas-Th-99] J. Nassar, Thèse de Doctorat, Ecole Polytechnique, (1999).
- [Tiu-Th-00] C. V. Tiusan, « Magnétisme et transport polarisé en spin dans des jonctions tunnel magnétiques, utilisation du transport tunnel comme une sonde micromagnétique », Thèse de Doctorat, Université Louis Pasteur de Strasbourg, (2000).
- [Vos-APB-91] J. L. Vossen, W. Kern, « Thin Film Processes II », Academic Press Inc., Boston, (1991).

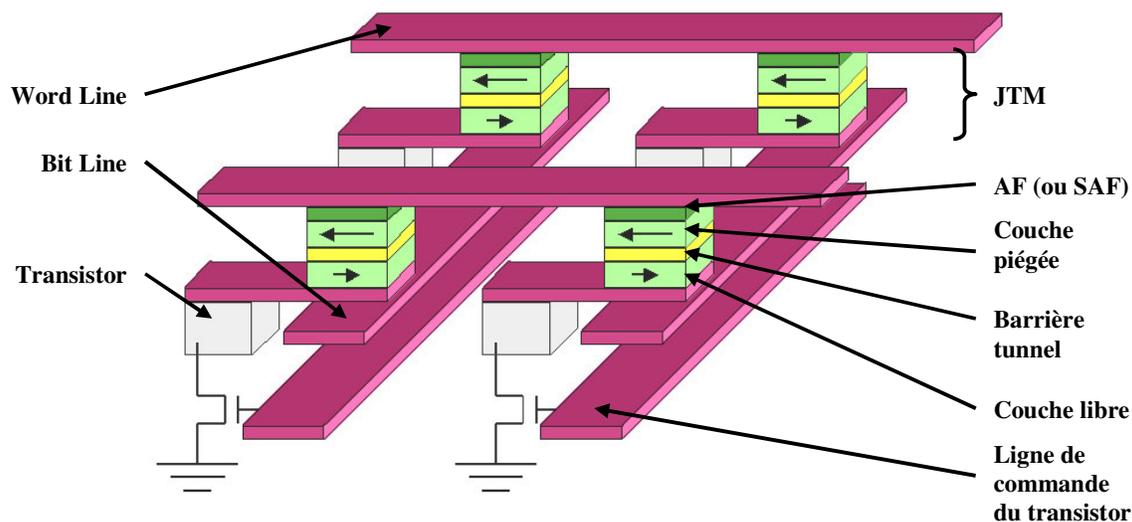
## Chapitre 3

### Préparation et caractérisation de couches minces d'alliage amorphe ferrimagnétique de $Gd_xCo_y$

#### 3.1 Contexte des travaux

##### 3.1.1 Etat de l'art des MRAM à base de jonctions tunnel magnétiques et limitations d'une architecture à écriture par un champ magnétique externe

Comme nous l'avons vu précédemment dans le chapitre 1, les jonctions tunnel magnétiques peuvent être employées en tant que structures de base des points mémoires constituant une mémoire magnétique dite MRAM. L'architecture actuellement la plus prometteuse est décrite sur la figure 3.1 [Jul-PL-75][Moo-PRL-95].



**Figure 3.1.** Architecture d'une MRAM à base de JTM à écriture par un champ magnétique externe.

Comme on peut le voir sur cette figure, chaque élément mémoire est constitué de l'association d'un transistor et d'une JTM composée de deux couches magnétiques basées sur des métaux de transition 3d (Fe, Ni, Co). Préférentiellement, une des deux couches ferromagnétiques est couplée à une couche antiferromagnétique AF (naturelle ou synthétique SAF, cette dernière

étant composée de plusieurs couches) dont la fonction est de piéger cette couche dite piégée afin que son aimantation ne bascule pas pendant le processus d'écriture.

L'architecture comporte trois niveaux de lignes dont deux (disposées généralement perpendiculairement l'une à l'autre, la « word line » et la « bit line ») sont destinées à générer les impulsions de champ magnétique permettant la commutation de l'aimantation de la couche libre lors du processus d'écriture. Ces impulsions de champ magnétique sont produites par des impulsions de courant électrique courtes (typiquement de 2 à 5 ns) d'une intensité de l'ordre de 10 mA le long des deux lignes précitées. L'intensité et la synchronisation de ces impulsions sont ajustées de sorte que seule l'aimantation de la couche libre du point mémoire se trouvant à la croisée des deux lignes commute à l'écriture. La troisième ligne est dédiée à l'ouverture ou la fermeture des transistors (que l'on peut considérer comme étant des interrupteurs) pour pouvoir adresser chaque point mémoire individuellement.

Lors du processus d'écriture, le transistor du point mémoire sélectionné est en mode bloqué dit OFF, aucun courant ne le traverse. Une impulsion de courant est alors envoyée dans les deux lignes d'induction correspondantes au point mémoire, impulsion de courant suffisante pour provoquer l'apparition d'un champ magnétique faisant basculer l'aimantation de la couche libre du point mémoire sélectionné à l'intersection mais pas assez importante pour induire un champ magnétique susceptible de renverser l'aimantation des couches libres des points mémoires sur l'une ou l'autre ligne d'induction. En résumé, seule la contribution conjointe des deux champs magnétiques à l'intersection est suffisante pour faire basculer l'aimantation de la couche libre du point mémoire sélectionné.

Lors du processus de lecture, le transistor du point mémoire sélectionné est en mode ouvert dit ON par l'envoi d'une impulsion de courant dans sa base par l'intermédiaire de la ligne de commande. Un courant de mesure est alors envoyé dans une des deux lignes d'induction (ligne opposée à la ligne de contrôle) de façon à ce que ce courant traverse la JTM et le transistor. Par ce courant on procède alors à une mesure de la résistance électrique de la JTM, résistance que l'on compare à une référence connue et permettant de relever l'état magnétique de la JTM selon qu'elle soit très résistive (aimantations des couches libres et piégées dans le sens opposé) ou peu résistive (aimantations des couches libre et piégée dans le même sens). Ainsi, l'état correspondant du point mémoire (bit 1 ou 0) est déterminé.

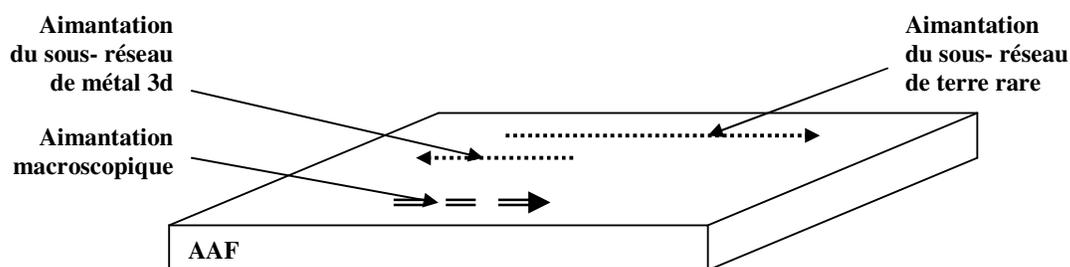
Cette architecture exhibe plusieurs limites :

- l'écriture étant assurée par un champ magnétique externe, elle est assujettie à la valeur du champ de retournement individuel de chaque point mémoire. Si la fonction de distribution des champs de retournement pour l'ensemble des points mémoire est large, il est nécessaire que le champ magnétique sur le point mémoire sélectionné soit supérieur au champ de retournement le plus élevé de la distribution, au risque de renverser accidentellement certains points mémoires situés sur la ligne et ou la colonne correspondante dont le champ de retournement, situé dans la partie basse de la distribution, est plus faible que le champ magnétique généré par la ligne ou la colonne seule. Inversement, si l'on souhaite s'assurer qu'aucun point mémoire ne soit écrit par une ligne ou une colonne seule, il faut limiter le courant d'écriture de façon à ne jamais dépasser sur ces points mémoire le champ magnétique correspondant à la partie basse de la distribution, au risque de ne pas écrire le point mémoire sélectionné à l'intersection desdites lignes et colonnes si son champ de retournement est dans la partie haute de la distribution. En d'autres termes, cette architecture à sélection par champ magnétique à l'aide de lignes et de colonnes de conducteurs peut facilement conduire à des erreurs d'adressage à l'écriture. Compte tenu de ce qu'il est attendu que la fonction de distribution des champs de retournement des points mémoires soit d'autant plus large que leur dimension est faible, puisque c'est la géométrie des points mémoires (forme, irrégularités, défauts, ...) qui domine le renversement de l'aimantation, cet effet ne pourra qu'empirer dans les générations de produits futures ;
- étant entendu qu'en général la valeur moyenne du champ de renversement augmente lorsque la taille des points mémoires diminue, un courant d'autant plus important est attendu dans les générations de produits futures. En conséquence, la puissance électrique requise pour le fonctionnement de ces mémoires sera d'autant plus grande que l'intégration sera poussée.

### 3.1.2 Avantages de l’utilisation d’une couche libre d’AAF dans une JTM

A la vue des limitations que présentent ces deux architectures (écriture par un champ magnétique externe et écriture par un courant électrique polarisé en spin), il est nécessaire de développer une architecture et/ou une structure permettant de minimiser les erreurs d’adressage dans un cas, et de diminuer fortement la densité de courant requise dans l’autre cas, respectivement.

Il existe une architecture alternative [Noz-BIE-02] dans laquelle il est proposé de remplacer les couches ferromagnétiques usuelles (Fe, Ni, Co et leurs alliages) par des alliages amorphes ferrimagnétiques (AAF), composés d’au moins une terre rare et d’au moins un métal 3d dans des proportions variables. Les alliages amorphes métal de transition 3d / terre rare sont caractérisés par leurs propriétés magnétiques, c’est à dire l’aimantation  $M_S$ , l’anisotropie magnétique planaire  $K_u$  et/ou perpendiculaire  $K_p$ , une température de compensation  $T_{comp}$  et une température de Curie  $T_c$ . Comme on peut le voir sur la figure 3.2, l’aimantation macroscopique d’une couche d’AAF peut être décomposée en deux contributions : une première contribution due au sous-réseau des atomes de terre rare et une seconde due au sous-réseau des atomes de métal de transition. L’aimantation macroscopique est la somme vectorielle des aimantations des deux sous-réseaux.

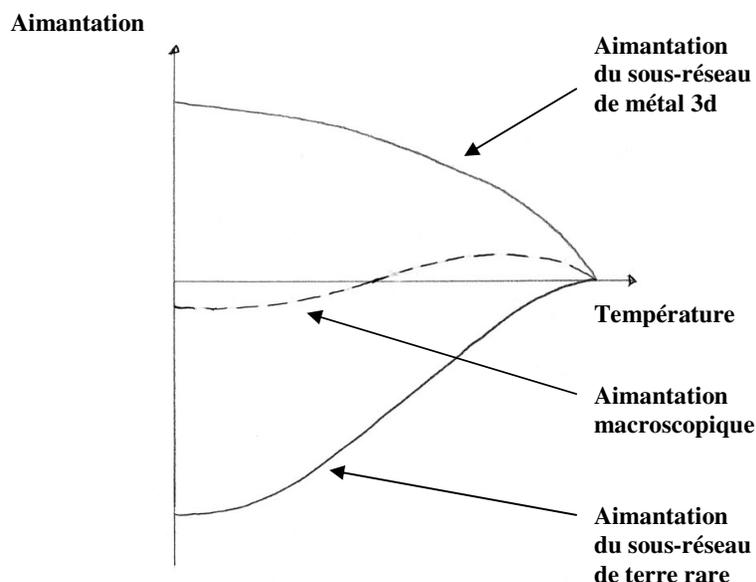


**Figure 3.2.** Décomposition schématique de l’aimantation macroscopique d’une couche d’un alliage amorphe ferrimagnétique en deux aimantations dues aux sous-réseaux métal 3d et terre rare.

Notons qu’une terre rare légère s’alignera parallèlement au métal de transition 3d, une terre rare lourde anti-parallèlement. Dans un ferrimagnétique, il existe un fort couplage d’échange positif entre deux même éléments, et un fort couplage d’échange négatif entre deux différents éléments. Par ailleurs, les aimantations des deux sous-réseaux sont fortement couplées entre

elles, résultant en un comportement conjoint lors du renversement de l'aimantation macroscopique ou de la réorientation par une excitation sélective de l'un des sous-réseaux.

La figure 3.3 montre que les variations en température des aimantations des deux sous-réseaux sont très différentes, conduisant à une variation avec la température de l'importance relative des contributions des deux sous-réseaux à l'aimantation macroscopique.



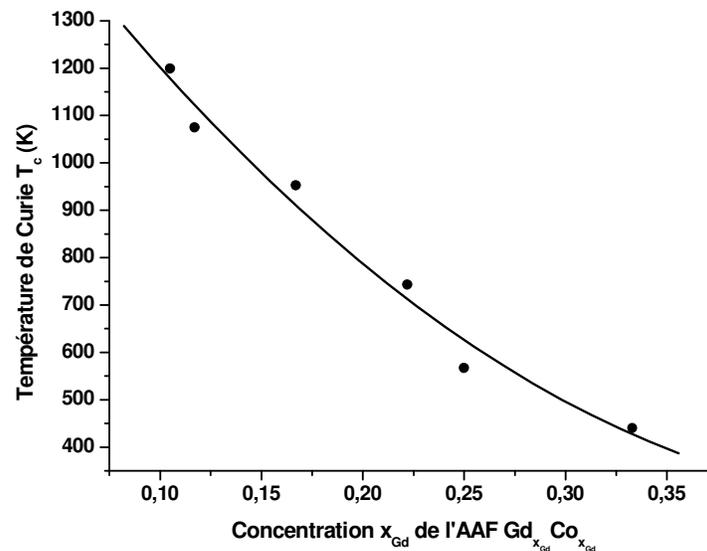
**Figure 3.3.** Variations en température des aimantations des sous-réseaux de terre rare et de métal de transition et variation en température de l'aimantation macroscopique résultante.

En règle générale, l'aimantation du sous-réseau de terre rare décroît en température plus vite que l'aimantation du sous-réseau de métal de transition.

Les ferrimagnétiques présentent une température de Curie  $T_c$  au-delà de laquelle ils ont un comportement paramagnétique, c'est à dire pas d'aimantation spontanée, une faible susceptibilité magnétique  $\chi$  qui suit une loi dite de Curie-Weiss du type  $\chi = C/(T-T_f)$  ( $C$  étant la constante de Curie et  $T_f \approx T_c$ ), et dont les moments magnétiques sont désordonnés à  $T > T_c$ . En deçà de cette  $T_c$ , l'aimantation des deux sous-réseaux peut varier différemment en température, et l'aimantation totale peut s'annuler à une température  $T_{comp} < T_c$ . La  $T_c$  va dépendre de la nature des éléments magnétiques de l'alliage, de leur concentration ainsi que de la présence ou non d'éléments non magnétiques de substitution. La figure 3.4 nous montre

un exemple de variation de la  $T_c$  en fonction de la composition d'un alliage amorphe ferrimagnétique (AAF) de  $Gd_xCo_{1-x}$ .

Comme décrit précédemment, les ferrimagnétiques peuvent présenter une température dite de compensation  $T_{comp}$ , température pour laquelle l'aimantation totale  $M_{tot}$  est nulle, car les aimantations des deux sous-réseaux (ici,  $M_{Co}$  et  $M_{Gd}$  pour un alliage de  $Gd_xCo_{1-x}$ ) sont antiparallèles et ont la même valeur absolue. A  $T_{comp}$ , le champ coercitif  $H_c$  d'un ferrimagnétique est théoriquement infini (pas d'énergie Zeeman), l'aimantation totale  $M_s$  tend vers 0, tandis que de part et d'autre de  $T_{comp}$ ,  $H_c$  décroît d'autant plus rapidement que la température est proche de  $T_{comp}$ .



**Figure 3.4.** Température de Curie  $T_c$  d'un AAF de  $Gd_xCo_{1-x}$  en fonction de la concentration  $x_{Gd}$ . Les points sont les données expérimentales, la courbe étant une approximation polynomiale d'ordre 2 [Kat-J3M-81].

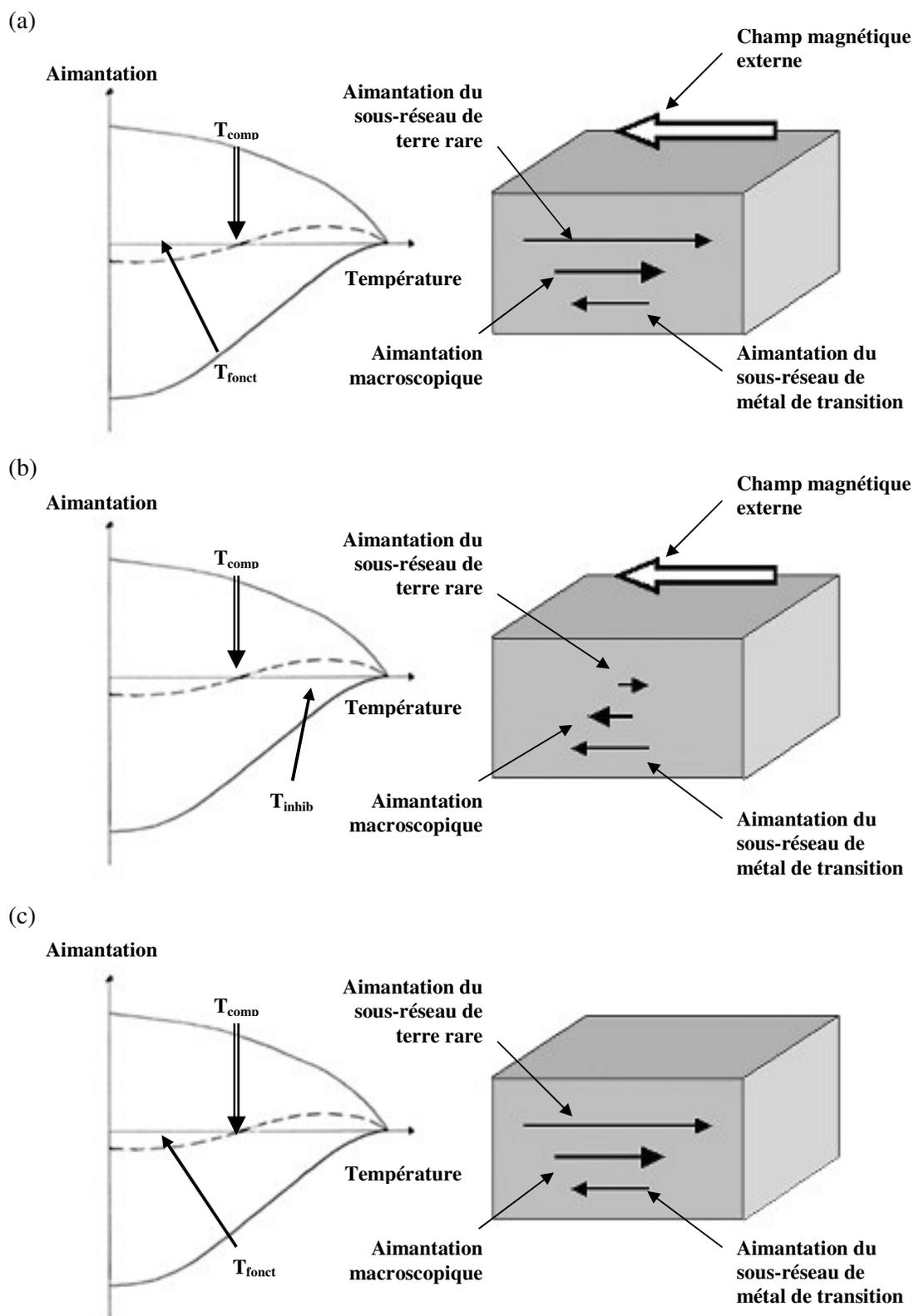
Dans cette architecture, le point mémoire est formé d'une JTM de type AAF comportant une couche magnétique piégée « classique », une barrière isolante et une couche magnétique libre d'alliage AAF dont on souhaite renverser l'aimantation pour écrire le point mémoire.

La température de fonctionnement  $T_{fonct}$  de la mémoire est choisie proche de la température de compensation  $T_{comp}$  de la couche libre d'AAF ( $T_{fonct} \geq T_{comp}$ ), de façon à garantir des champs de retournement élevés des points mémoires au repos. A l'écriture, par une impulsion dans la ligne de contrôle, on ouvre le transistor de commande correspondant au point mémoire

sélectionné. Le courant qui passe dans le point mémoire est choisi suffisant pour échauffer ce dernier à une température supérieure à  $T_{comp}$ , l'échauffement étant facilité par la résistivité importante des alliages AAF utilisés dans la couche libre. La conséquence de cet échauffement est la chute brutale du champ de retournement de la couche libre du point mémoire à écrire.

L'intérêt de cette architecture est qu'il est possible d'abaisser le champ de retournement d'un point mémoire sélectionné à des valeurs très inférieures à celles des autres points mémoire de la MRAM, et plus particulièrement inférieures à la borne inférieure de la distribution de champs de retournement de l'ensemble de la mémoire, qui elle, reste à la température de fonctionnement. On augmente ainsi fortement la sélectivité à l'écriture ce qui a pour effet d'éliminer les erreurs d'adressage observées dans l'état de l'art précédent.

Il existe également une variante améliorée. Dans ce cas, on choisit d'avoir  $T_{fonct} < T_{comp}$ . La procédure à l'écriture est la suivante : on envoie par les conducteurs d'excitation un courant d'amplitude telle que le champ magnétique créé soit très supérieur au champ de retournement du point mémoire sélectionné pour s'assurer de son écriture sans erreur quelles que soient ses propriétés intrinsèques. Les autres points mémoire sont inhibés de la manière suivante : si le point mémoire possède une aimantation macroscopique de sens identique au champ magnétique créé, c'est donc un champ stabilisant. En conséquence l'état dudit point mémoire n'est pas affecté, quelle que soit l'amplitude du champ magnétique appliqué. Par contre, si l'aimantation de la couche libre est de sens opposé au champ magnétique externe d'écriture, on l'inhibe selon la procédure suivante : comme on peut le voir sur la figure 3.5 (b), où seule la couche libre d'AAF est représentée, en commandant avant l'envoi d'une impulsion de courant dans les lignes d'excitation l'ouverture du transistor correspondant, on chauffe le point mémoire à une température  $T_{inhib}$  au-dessus de la  $T_{comp}$  de la couche libre d'AAF. Le passage au dessus de la température  $T_{comp}$  a pour effet de renverser l'aimantation macroscopique du point mémoire puisque les contributions relatives de l'aimantation du sous-réseau de terre rare et de l'aimantation du sous-réseau de métal de transition s'inversent. Par cette procédure de chauffage, l'aimantation macroscopique du point mémoire à inhiber est dans le sens du champ magnétique externe d'écriture qui devient un champ stabilisant : l'aimantation du point mémoire inhibé n'est pas renversée.



**Figure 3.5.** Couche libre en alliage amorphe ferrimagnétique (AAF) d'une JTM dans une MRAM à écriture par un champ magnétique externe à sélection par inhibition.

Lorsque l'écriture du point mémoire à écrire est terminée, on coupe d'abord le champ magnétique externe d'écriture puis on coupe le courant de chauffage du point mémoire inhibé. La couche libre d'AAF se refroidit à la température de fonctionnement au repos  $T_{fonct}$  au-dessous de  $T_{comp}$  et retrouve son état d'aimantation initial comme on peut le voir sur la figure 3.5 (c).

L'intérêt de cette technique est d'éliminer toutes les erreurs d'adressage potentielles puisque le champ d'écriture est un champ stabilisant sur tous les points mémoire, quel que soit leur état d'aimantation, sauf sur les points mémoire à écrire (aimantation à retourner) pour lequel il peut donc être très supérieur au champ de retournement moyen. Les erreurs d'adressage sont donc impossibles. Cette technique d'adressage par inhibition permet également d'écrire plusieurs points mémoire simultanément, puisque la sélection est réalisée par inhibition des autres points mémoire. Le processus d'écriture peut même être simplifié à deux étapes : l'écriture simultanée des points mémoire dans une direction, et l'écriture simultanée des points mémoire dans l'autre direction. Cette approche permet de maximiser la vitesse d'écriture globale de la mémoire. De plus, il est ainsi possible d'éliminer un des niveaux de lignes d'excitation pour se limiter à un seul niveau, suffisant ici pour générer un champ magnétique externe d'écriture efficace. Les possibilités d'intégration sont ainsi accrues et les procédés de fabrication sont simplifiés.

## 3.2 Caractéristiques générales d'un alliage amorphe ferrimagnétique de $Gd_xCo_{1-x}$

### 3.2.1 Introduction

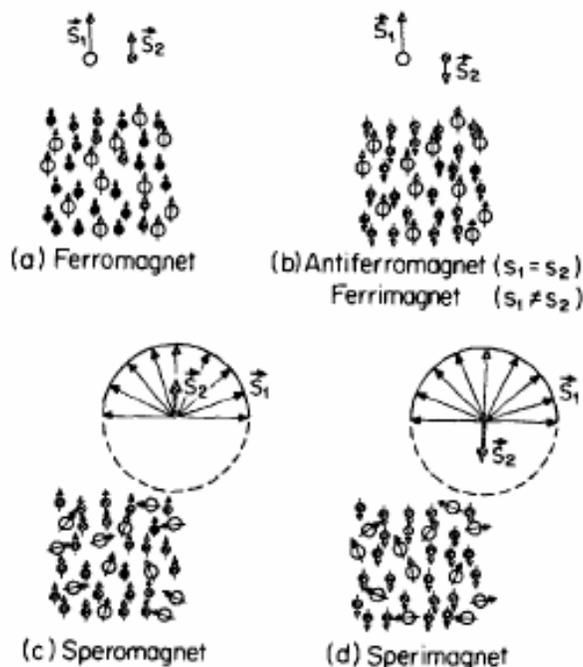
Pour réaliser des MRAM telles que discutées précédemment, il faut pouvoir intégrer un AAF à une structure de type JTM. L'esprit de cette étude consiste à déterminer la nature de l'AAF à utiliser, à examiner les propriétés physiques et chimiques de ce type de matériau ainsi que de valider, à la vue de ces résultats, la faisabilité technique de ce type de MRAM.

### 3.2.2 Choix du $Gd_xCo_{1-x}$ en tant qu'AAF dans une JTM

L'existence d'une température de compensation pour un ferrimagnétique dépend de sa composition. La  $T_{comp}$  d'un alliage ferrimagnétique peut être déterminée expérimentalement par des mesures magnétométriques (mesure directe de  $M$ ) ou de transport (mesure indirecte de  $H_c$ ) en fonction de  $T$ . Dans le cadre d'une application d'un alliage amorphe en tant que couche magnétique dans une jonction tunnel magnétique (et par extension une MRAM), comme discuté précédemment, l'alliage doit être ferrimagnétique, exhiber une anisotropie magnétique (une aimantation définie  $+M$  ou  $-M$ ) et un champ coercitif aussi faible que possible (en dehors de la  $T_{comp}$  pour une écriture plus facile), posséder une température de compensation et posséder une température de Curie élevée.

Les alliages à base de terres rares légères sont à proscrire (La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm et Eu) car ils exhibent un comportement ferromagnétique. Les terres rares lourdes (Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb et Lu) sont indiquées car les alliages exhibent alors un comportement ferrimagnétique [Car-JPD-95].

Certains de ces alliages amorphes terre rare lourde / métal de transition 3d présentent du spérilmagnétisme [Rhy-PRB-74], représenté sur la figure 3.6 (d). Ces matériaux peuvent exhiber une  $T_{comp}$ , mais leur anisotropie magnétique est très élevée, comme c'est le cas pour le TbFe, GdFe ou le DyCo [Coe-PRL-76].



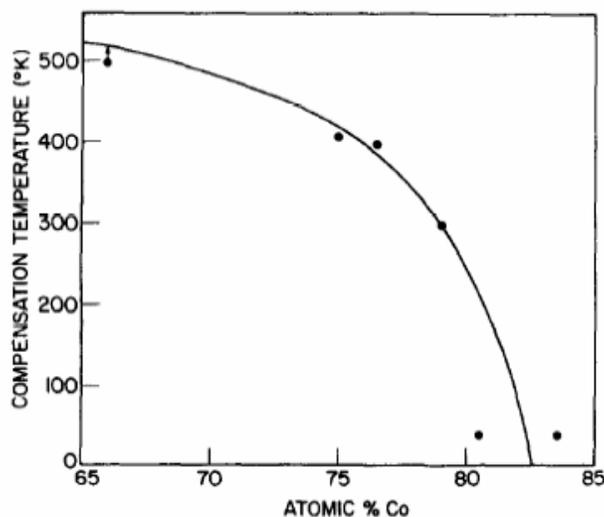
**Figure 3.6.** Représentation schématique de quelques structures magnétiques d'AAF : (a) ferromagnétisme, (b) antiferromagnétisme, (c) sperrmagnétisme, (d) sperrimagnétisme [Oha-JAP-87].

Le meilleur candidat pour notre application [Cha-APL-73] est un AAF de  $Gd_xCo_{1-x}$ , qui, pour une vaste gamme de compositions, exhibe une résistance électrique élevée, un comportement ferrimagnétique, une température de compensation, une température de Curie élevée, une faible anisotropie magnétique et un champ coercitif peu élevé.

La figure 3.7 montre la courbe de  $T_{comp}$  en fonction de la concentration atomique  $x_{Co}$  en Co d'un AAF de  $Gd_{1-x}Co_x$ . Cette figure nous montre que l'AAF  $Gd_{1-x}Co_x$  exhibe une température de compensation comprise entre 0 et 300 K avec une concentration atomique  $x_{Gd}$  en Gd allant approximativement de 0,175 à 0,21 respectivement. On constate que la  $T_{comp}$  n'existe pas pour une concentration  $x_{Gd}$  inférieure à 0,175, et que la  $T_{comp}$  atteint la  $T_c$  pour  $x_{Gd} \approx 0,35$ . Au-delà de cette concentration, il n'y a pas de  $T_{comp}$ .

Il est clair qu'à la vue de ces données expérimentales, la température de compensation  $T_{comp}$  varie de façon drastique en fonction de la concentration  $x_{Gd}$  de Gd, et ce pour des variations de  $x_{Gd}$  très fines. La pente moyenne  $dT_{comp}/dx_{Gd}$  pour  $x_{Gd} \approx 0,19$  est d'environ 76 % pour une variation de  $x_{Gd}$  de 0,01 (soit 1 % des atomes de l'alliage). Ces données expérimentales nous

démontrent qu'une faible variation de la composition stœchiométrique de l'alliage ferrimagnétique entraîne une variation importante de  $T_{comp}$ .



**Figure 3.7.** Température de compensation en fonction de la concentration atomique  $x_{Co}$  de Co dans un alliage amorphe de  $Gd_{1-x}Co_x$  [Cha-APL-73]

La  $T_{comp}$  va également dépendre de la nature des éléments magnétiques de l'alliage, de la présence ou non de différents éléments non magnétiques de substitution, ainsi que des conditions de préparation de l'alliage. Etant donné que notre appareillage au Laboratoire Louis Néel possède une gamme de température de mesure allant de 0 à 300 K, il est nécessaire d'avoir un AAF de  $Gd_xCo_{1-x}$  avec une concentration  $x$  entre 0,175 et 0,21 si l'on désire l'étudier dans des conditions proches de sa  $T_{comp}$ . De plus, la valeur de  $dT_{comp}/dx$  étant très élevée, une infime variation de concentration entraîne une grande variation de la  $T_{comp}$ , donc on choisit d'avoir un alliage permettant d'avoir une  $T_{comp}$  intermédiaire, c'est à dire 150 K. L'alliage correspondant est, toujours selon la figure 3.7, le  $Gd_{0,19}Co_{0,81}$ .

### 3.3 Aimantation des couches minces de $Gd_xCo_{1-x}$

Les couches minces de  $Gd_xCo_{1-x}$  étudiées au Laboratoire Louis Néel ont été déposées par pulvérisation cathodique dans le bâti Plassys. Les caractéristiques du dépôt sont les suivantes : une vitesse de dépôt de  $1 \text{ \AA} \cdot s^{-1}$ , une pression constante d'Ar de  $4 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$ , et un vide initial de  $10^{-7} \text{ mbar}$  (limite supérieure). La procédure de dépôt est exécutée selon le procédé développé dans le chapitre 2. Deux paires de cibles ont été utilisées : une paire de cibles de  $Gd_{19}Co_{81}$  et une paire de cibles de  $(Gd_{14}Co_{86})_{95}Zr_5$ . Nous avons associé 5 % de Zr à l'alliage, car le Zr est connu pour ses propriétés amorphisantes lorsque l'on dépose de couches minces d'alliages amorphes par pulvérisation cathodique [Sur-JAP-93][Shi-I3E-01].

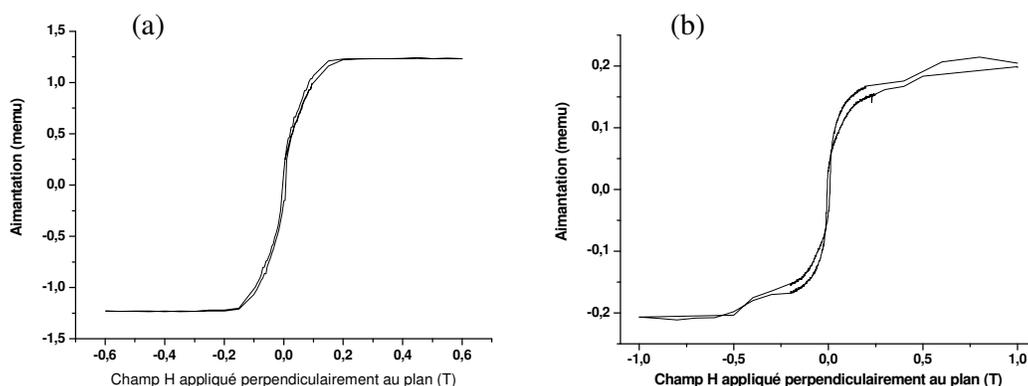
Les couches minces préparées à l'aide de la paire de cibles de  $Gd_{19}Co_{81}$  ont présenté un problème de stœchiométrie. En effet, la composition des couches minces, déterminée par l'analyse par dispersion d'énergie de rayons X (EDX, dont la précision en composition est d'environ 1 %), est très différente de celles des deux cibles. Ces couches minces ont présenté une concentration  $x$  en Gd de plus de 0,33, c'est à dire que la dérive par rapport à la composition de la paire de cibles est d'environ 70 %. L'origine du problème est vraisemblablement un rendement de pulvérisation plus élevé pour le Gd (taux de 0,67) que pour le Co (taux de 0,343). De plus, la paire de cible pourrait exhiber un enrichissement progressif en Co, ce qui poserait un problème d'homogénéité en composition sur l'épaisseur d'une couche mince.

Etant donné que cette stœchiométrie obtenue ne nous convient pas pour des mesures autour de la  $T_{comp}$ , nous avons utilisé une seconde paire de cibles, enrichies en Co et avec 5 % de Zr. Les échantillons déposés avec ces cibles de  $(Gd_{14}Co_{86})_{95}Zr_5$ , également analysés par EDX, présentent une composition moyenne de  $(Gd_{28}Co_{72})_{95}Zr_5$ . Le problème rencontré sur la paire de cibles précédente se présente encore sur cette nouvelle paire de cibles.

Désirant une composition plus proche de  $(Gd_{20}Co_{80})_{95}Zr_5$ , nous avons alors collé une pastille circulaire de Co pur d'un diamètre de 5 mm au centre de chaque cible de  $(Gd_{14}Co_{86})_{95}Zr_5$  (faisant un diamètre de 30 mm). Les couches minces déposées et analysées par EDX ont alors présenté une composition moyenne de  $(Gd_{23}Co_{77})_{95}Zr_5$ . Shin *et al.* [Shi-J3M-02] ont mesuré la  $T_{comp}$  de couches minces, déposées par pulvérisation cathodique dans des conditions

similaires aux nôtres, d'une composition de  $(Gd_{22,7}Co_{77,3})_{95}Zr_5$ . Cette  $T_{comp}$  est d'environ  $190\text{ K}$ , et on s'attend alors à ce que la compensation de nos couches minces intervienne à une température supérieure de quelques dizaines de degrés.

Des couches minces de  $(Gd_{23}Co_{77})_{95}Zr_5$  déposées sur un substrat de  $Si/SiO_2$ , et d'une épaisseur de  $30$  et  $40\text{ nm}$  ont été mesurées au VSM en température. La figure 3.8 montre le cycle  $M(H^\perp)$  de ces deux échantillons à une température de  $50\text{ K}$ .

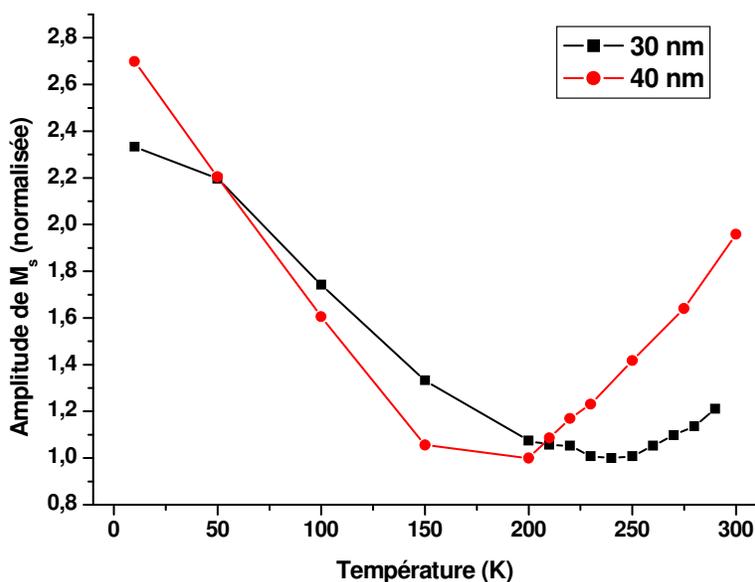


**Figure 3.8.** Courbes d'hystérésis  $M(H^\perp)$  de couches minces de  $(Gd_{23}Co_{77})_{95}Zr_5$  à  $50\text{ K}$ . (a) : épaisseur de  $30\text{ nm}$ , (b) : épaisseur de  $40\text{ nm}$ . L'échantillon (b) étant plus petit que l'échantillon (a), ceci explique la différence de niveau d'aimantation à saturation.

Dans les deux cas, la rémanence est faible, mais le champ de saturation est relativement élevé ( $0,15\text{ T}$  pour (a) et  $0,5\text{ T}$  pour (b)). Afin de déterminer la température de compensation grâce aux mesures d'aimantation  $M(H)$  par VSM, il est intéressant de relever l'amplitude  $A_{Ms}$  de l'aimantation à saturation  $M_s$  en fonction de la température. En effet, au point de compensation  $T_{comp}$ , l'aimantation totale  $M_{tot}$  de la couche mince devrait être théoriquement nulle et son champ coercitif infini.

La figure 3.9 présente les deux courbes  $A_{Ms}(T)$  pour les deux échantillons. On peut constater sur cette figure que l'aimantation des deux couches minces passe par un minimum, mais n'est pas nulle, ce qui a déjà été observé sur des couches minces en pleine tranche [Cha-APL-73]. Pour l'échantillon de  $30\text{ nm}$  d'épaisseur, le minimum est atteint à une température d'environ  $240\text{ K}$ , et pour l'échantillon de  $40\text{ nm}$ , le minimum est atteint à une température d'environ  $180\text{ K}$ . On peut considérer que la  $T_{comp}$  moyenne des couches minces déposées correspond à la

température de ces minima [Cha-APL-73] car au minimum de l'aimantation, une analyse par effet Kerr confirme bien le renversement de l'aimantation des deux éléments magnétiques. Si l'on compare ces résultats à la  $T_{comp}$  de 190 K mesurée par Shin *et al.* [Shi-J3M-02] sur des couches minces de  $(Gd_{22,7}Co_{77,3})_{95}Zr_5$ , nos résultats sont cohérents.

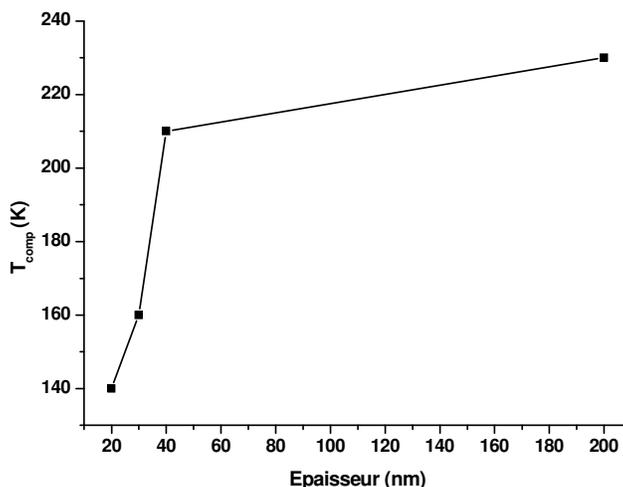


**Figure 3.9.** Amplitude des courbes d'hystérésis  $M(H^\perp)$  des deux couches minces de  $(Gd_{23}Co_{77})_{95}Zr_5$  d'une épaisseur de 30 nm et 40 nm.

Il est possible que les couches minces en pleine tranche ne soient pas homogènes en stœchiométrie sur toute leur surface et/ou leur épaisseur, ce qui explique pourquoi on observe un minimum, et non une disparition de l'aimantation. Il apparaît donc un problème d'hétérogénéité stœchiométrique de nos couches minces qui peut avoir des conséquences importantes sur la reproductibilité de la  $T_{comp}$  pour une même composition de cibles de pulvérisation.

La figure 3.10 présente la  $T_{comp}$  de quelques couches minces de  $(Gd_{23}Co_{77})_{95}Zr_5$  d'épaisseurs différentes, déduite de nos mesures magnétométriques. On voit sur cette figure que la  $T_{comp}$  varie très largement en fonction de l'épaisseur de la couche, en particulier pour les faibles épaisseurs. Ce phénomène a déjà été observé par Tanaka *et al.* [Tan-JJAP-82] sur des couches de GdCo : la  $T_{comp}$  varie non seulement selon l'épaisseur de la couche mince déposée, mais également en fonction du substrat utilisé et du procédé de nettoyage de celui-ci avant dépôt. Dans notre cas, les substrats sont des carrés de Si recouvert d'une couche de  $SiO_2$  d'une

épaisseur de 100 ou 200 nm. Les observations de Tanaka *et al.* ont démontré que l'oxygène de la couche superficielle du substrat, ainsi que les gaz présents pendant le dépôt, comme l'argon, l'oxygène ou l'azote réagissent avec les couches déposées, en particulier les tous premiers plans atomiques déposés.



**Figure 3.10.** Température de compensation  $T_{comp}$  de couches minces de  $(Gd_{23}Co_{77})_{95}Zr_5$  en fonction de leur épaisseur.

Les résultats des mesures magnétométriques et de la composition stœchiométrique démontrent que le dépôt de couches minces de GdCo par pulvérisation cathodique n'est pas un procédé simple et établi. On peut relever plusieurs problèmes et leurs conséquences :

- une possible inhomogénéité en composition d'une même couche en épaisseur et/ou latéralement ;
- une différence importante entre la composition stœchiométrique des cibles de pulvérisation et celle des couches obtenues ;
- une dépendance des propriétés physiques d'une couche mince d'AAF selon les techniques de nettoyage et la nature des substrats, les procédés de dépôt etc. ;
- une  $T_{comp}$  difficilement prévisible et non reproductible.

### 3.4 Transport dans les couches minces de $Gd_xCo_{1-x}$

Les mesures de transport en champ magnétique et en température sur les couches minces de  $(Gd_{23}Co_{77})_{95}Zr_5$  l'ont été par effet Hall extraordinaire (EHE) et par mesure de la résistance électrique en quatre pointes.

#### 3.4.1 Résistance électrique

Les mesures de transport électrique en quatre pointes alignées sur des couches minces pleine tranche révèlent une résistance électrique  $\rho$  à 300 K de 200 à 300  $\mu\Omega.cm$ , ce qui correspond aux différents résultats de la littérature sur les alliages amorphes de  $Gd_xCo_{1-x}$  [Maj-J3M-90]. La dépendance de la résistance électrique en température peut s'écrire :

$$\rho = \rho_0.(1 + \alpha T).$$

Le facteur  $\alpha$  est très réduit, de l'ordre de  $10^{-4} K^{-1}$ , d'où une variation de  $\rho$  en température très faible (inférieure à 5% de 0 à 300 K), ce qui est une caractéristique des matériaux conducteurs amorphes [Kau-PRB-86][Weg-PRB-00].

#### 3.4.2 Magnétorésistance

Aucune mesure de magnétorésistance (MR) n'a été entreprise sur les échantillons, mais les propriétés magnétorésistives de ces derniers ont déjà été bien identifiées dans la littérature. Les mesures de magnétorésistance en courant CIP et à basses températures dans des couches minces de GdCo ont révélé des valeurs de magnétorésistance  $\Delta\rho/\rho$ , essentiellement due à l'AMR, inférieures à 1 % [Maj-J3M-90][Weg-PRB-00], même à très hauts champs. Ces valeurs de magnétorésistances sont très largement inférieures à la variation de résistance sous champ par effet Hall extraordinaire, que nous traiterons plus tard. De plus, les courbes d'EHE sont impaires en champ, contrairement aux courbes de magnétorésistance, qui elles sont paires.

#### 3.4.3 Effet Hall extraordinaire

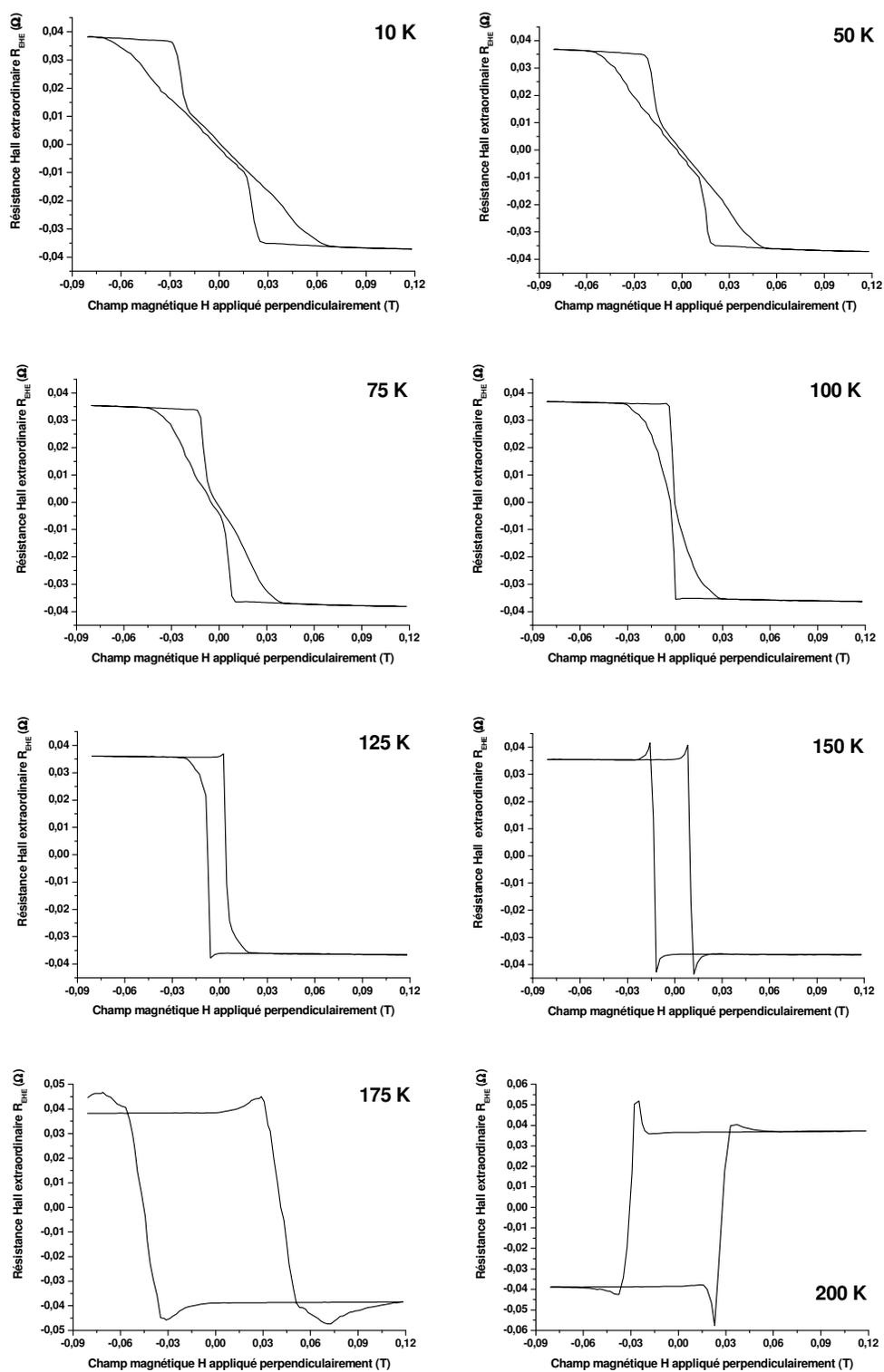
Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent (équation 2.6), la résistivité Hall est donnée par la relation :

$$\rho_H = \rho_0 B + \mu_0 \rho_s M_s \quad (3.1)$$

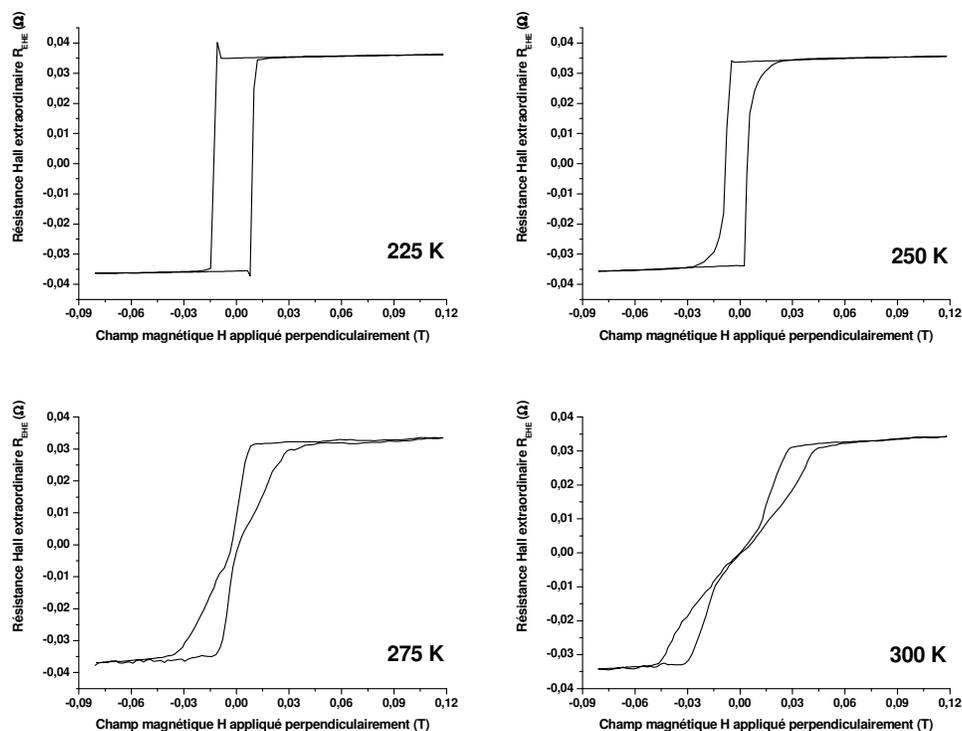
où  $\rho_0$  est le coefficient Hall ordinaire et  $\rho_s$  est le coefficient Hall extraordinaire. Dans la plupart des cas,  $\rho_s$  peut être considéré comme 100 fois plus important que  $\rho_0$ . Ainsi, les mesures de résistivité par EHE exhibent uniquement l'état d'aimantation du matériau, et leur dépendance vis-à-vis du champ appliqué (effet Hall ordinaire) est négligeable [McG-JAP-77].

#### 3.4.3.1 Courbes $R_{EHE}(H^\perp, T)$ de couches de GdCo en pleine tranche

Les figures 3.11 et 3.12 présentent une série de courbes de la résistance Hall  $R_{EHE}$  mesurée sous champ perpendiculaire et pour plusieurs températures d'une couche mince de 200 nm d'épaisseur en alliage amorphe  $(Gd_{20}Co_{80})_{95}Zr_5$ , d'une  $T_{comp}$  d'environ 185 K [Ran-CP-05].



**Figure 3.11.** Courbes d'hystérésis de  $R_{EHE}(H^\perp)$  à plusieurs températures (de 10 à 200 K) d'une couche mince de  $(Gd_{20}Co_{80})_{95}Zr_5$  d'une épaisseur de 200 nm [Ran-CP-05].

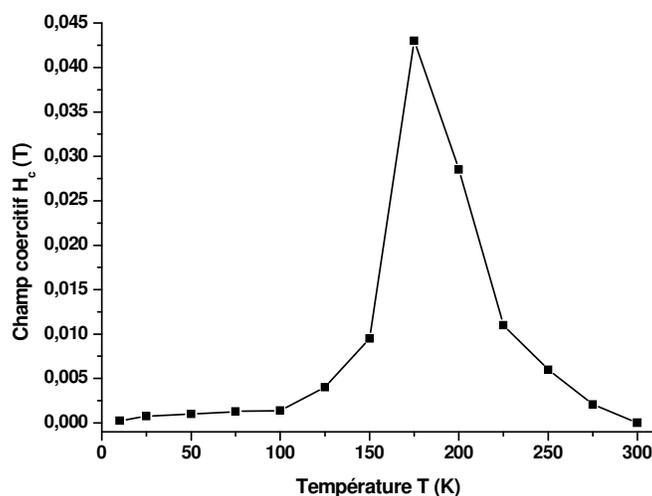


**Figure 3.12.** Courbes d’hystérésis de  $R_{EHE}(H^\perp)$  à plusieurs températures (de 225 à 300 K) d’une couche mince de  $(Gd_{20}Co_{80})_{95}Zr_5$  d’une épaisseur de 200 nm [Ran-CP-05].

Comme on peut le constater, la forme globale de l’hystérésis de la courbe  $R_{EHE}(H^\perp)$  change sensiblement à différentes températures. Pour  $T$  inférieure à 100 K et supérieure à 275 K, on observe la présence de deux hystérésis mineurs aux deux extrémités (à fort champ  $H^\perp$  appliqué) de l’hystérésis principal. Ceci est dû à l’apparition et la disparition de domaines magnétiques, en particulier au sein d’un matériau présentant une anisotropie perpendiculaire [Cap-JAP-71]. A mesure que  $T$  est proche de la  $T_{comp}$  de 185 K, l’hystérésis devient de plus en plus carré et le champ coercitif  $H_c$  augmente drastiquement.

On peut remarquer que les courbes présentent une anisotropie magnétique perpendiculaire marquée à proximité de la  $T_{comp}$ . Au passage de la  $T_{comp}$ , le cycle d’hystérésis  $R_{EHE}(H^\perp)$  se renverse, comme on peut le constater entre les courbes à 175 et 200 K : l’aimantation du sous-réseau de métal 3d, inférieure à l’aimantation du sous-réseau de terre rare à  $T < T_{comp}$  (la couche exhibe un signe Hall dit négatif), devient supérieure à  $T > T_{comp}$  (la couche exhibe un signe Hall dit positif). Les premières études assignaient le rôle dominant au sous-réseau de Co

dans la dépendance en température de l'EHE [Oka-I3E-74]. Des travaux postérieurs [Oga-JJAP-76] ont montré que l'amplitude de la résistivité Hall ne dépend pas de l'aimantation de l'échantillon, mais dépend de la quantité de Gd présent dans l'alliage. Si la concentration de Gd augmente, la résistivité Hall fait de même linéairement. Le fait que la résistivité Hall varie avec la concentration de Gd montre que la contribution du Gd est plus importante que celle du Co si on se rapporte à un seul atome.

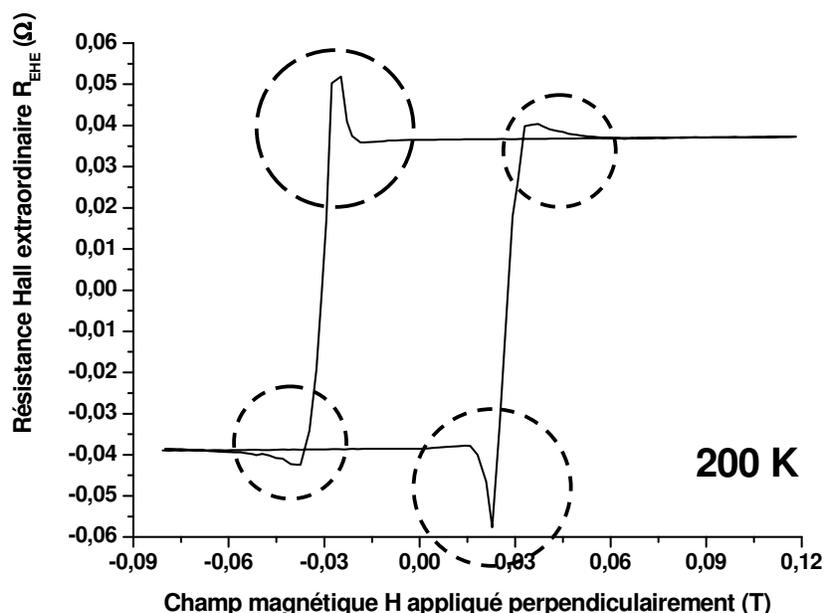


**Figure 3.13.** Courbe du champ coercitif  $H_c$  d'une couche mince de  $(Gd_{20}Co_{80})_{95}Zr_5$  d'une épaisseur de 200 nm en fonction de la température  $T$ , déduite des courbes de  $R_{EHE}(H^{\perp})$  en température [Ran-CP-05].

McGuire *et al.* [McG-JAP-77] ont supposé que les deux sous-réseaux de Gd et de Co ont chacun une contribution significative à l'effet Hall spontané, contribution qu'ils définissent comme étant le rapport  $\rho_H/\rho$  avec  $\rho_H$  l'amplitude de résistivité Hall et  $\rho$  la résistivité intrinsèque du matériau. Pris séparément, le Gd a une contribution négative  $\rho_H/\rho < 0$  alors que le Co a au contraire une contribution positive  $\rho_H/\rho > 0$ : le Gd contribue à avoir une tension Hall positive si son aimantation est antiparallèle au champ appliqué, similairement, le Co contribue à avoir une tension Hall négative dès lors que son aimantation est antiparallèle au champ appliqué, et inversement. La tension Hall résultante est alors la somme de la contribution des deux sous-réseaux dont les aimantations sont antiparallèles.

La figure 3.13 représente la courbe du champ coercitif  $H_c$  en fonction de la température  $T$ , déduite des courbes d'hystérésis des figures 3.11 et 3.12. On voit très clairement sur cette courbe que  $H_c$  est très important au voisinage de la  $T_{comp}$ , comme le prévoit la théorie.

Les courbes  $R_{EHE}(H^\perp)$  aux températures comprises entre 125 et 225 K (figures 3.11 et 3.12) exhibent une particularité singulière : près de la  $T_{comp}$ , les courbes  $R_{EHE}(H^\perp)$  exhibent des fluctuations anormales à proximité de  $H_c$  (détail sur la figure 3.14). La résistance Hall augmente et diminue de telle manière que les valeurs de ces fluctuations sont supérieures et inférieures aux valeurs de  $R_{EHE}(H^\perp)$  à saturation.



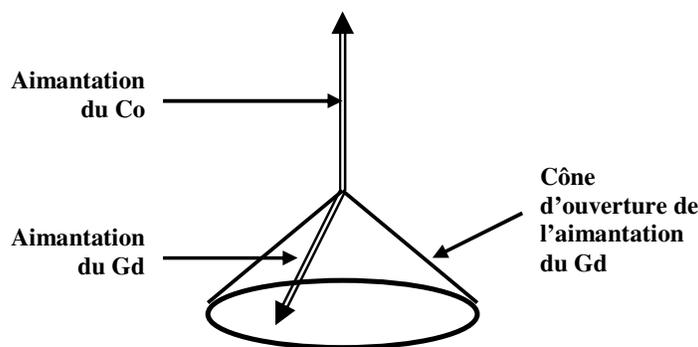
**Figure 3.14.** Courbes d'hystérésis de  $R_{EHE}(H^\perp)$  à 200 K d'une couche mince de  $(Gd_{20}Co_{80})_{95}Zr_5$  d'une épaisseur de 200 nm. Les cercles en pointillés indiquent les fluctuations anormales de  $R_{EHE}(H^\perp)$  [Ran-CP-05].

Ce phénomène a déjà été observé à plusieurs reprises dans des couches minces en pleine tranche de GdCo, de diverses compositions et épaisseurs, déposées par pulvérisation cathodique [Shi-J3M-02]. De plus, l'apparition de ces fluctuations est totalement reproductible. Aucune explication qualitative et/ou quantitative n'a été avancée à ce jour dans la littérature. Les fluctuations anormales à proximité du champ coercitif  $H_c$  sont présentes également sur la majorité de nos courbes, et ce pour tous les échantillons. Afin d'expliquer la présence de ces fluctuations anormales, plusieurs hypothèses peuvent être envisagées :

- i) Un effet dû à la création et à la propagation de domaines et de parois : A proximité de  $H_c$ , des domaines délimités par des parois se créent et se propagent : il est donc judicieux de tenir compte de ces phénomènes dont les conséquences sur les mesures d'EHE ne sont pas appréhendées.

ii) Un effet du à l'inhomogénéité stœchiométrique des couches : Nous avons vu que les couches déposées exhibaient des inhomogénéités importantes en composition, que ce soit latéralement ou en épaisseur, et qu'un certain nombre d'éléments (Ar, O, N...) peuvent également contaminer les couches. Il est donc possible que ces inhomogénéités entraînent des effets particuliers qu'il nous reste à définir.

iii) Une augmentation de la contribution à l'EHE du au spérismagnétisme : Deux cas sont possibles : les contributions à l'EHE des sous-réseaux de Co et de Gd sont du même signe ou de signe contraire. Dans le cas où les signes seraient identiques, l'aimantation des deux sous-réseaux pointant dans deux directions opposées, les deux contributions à l'EHE s'opposent. Les « sur-fluctuations » seraient dues à l'ouverture du « cône » de la terre rare à proximité du champ coercitif  $H_c$ , c'est à dire à proximité du basculement de l'aimantation totale. Dans ce cas, les deux sous-réseaux ne sont plus antiparallèles : la contribution du Co à l'EHE ne change pas, mais la composante perpendiculaire du sous-réseau de Gd se trouve réduite par l'ouverture du cône : il en résulte une augmentation de la contribution totale à l'EHE, c'est à dire que le rapport  $\rho_H/\rho$  est maximal.



**Figure 3.15.** Représentation schématique de l'orientation relative des aimantations du Co et du Gd dans le cas où l'AAF de  $Gd_xCo_{1-x}$  présenterait du spérismagnétisme. Le cône d'ouverture suggère que l'aimantation du Gd peut prendre une orientation s'inscrivant dans ce cône.

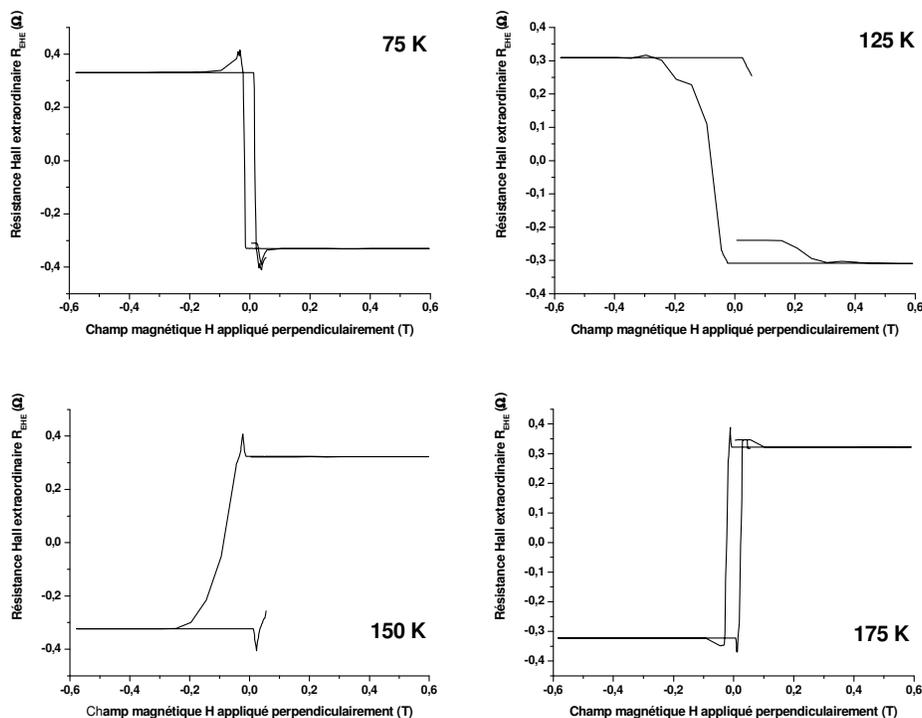
Dans l'autre cas où les signes seraient opposés, les deux contributions à l'EHE s'ajoutent. Les « sur-fluctuations » seraient alors dues à la fermeture du « cône » de la terre rare à proximité du champ coercitif  $H_c$  pour obtenir une configuration des deux aimantations totalement antiparallèle : à ce moment précis, le rapport est  $\rho_H/\rho$  maximal.

Dans le cas où une de ces hypothèses est vraie, il nous reste à expliquer le ou les processus sous-jacents.

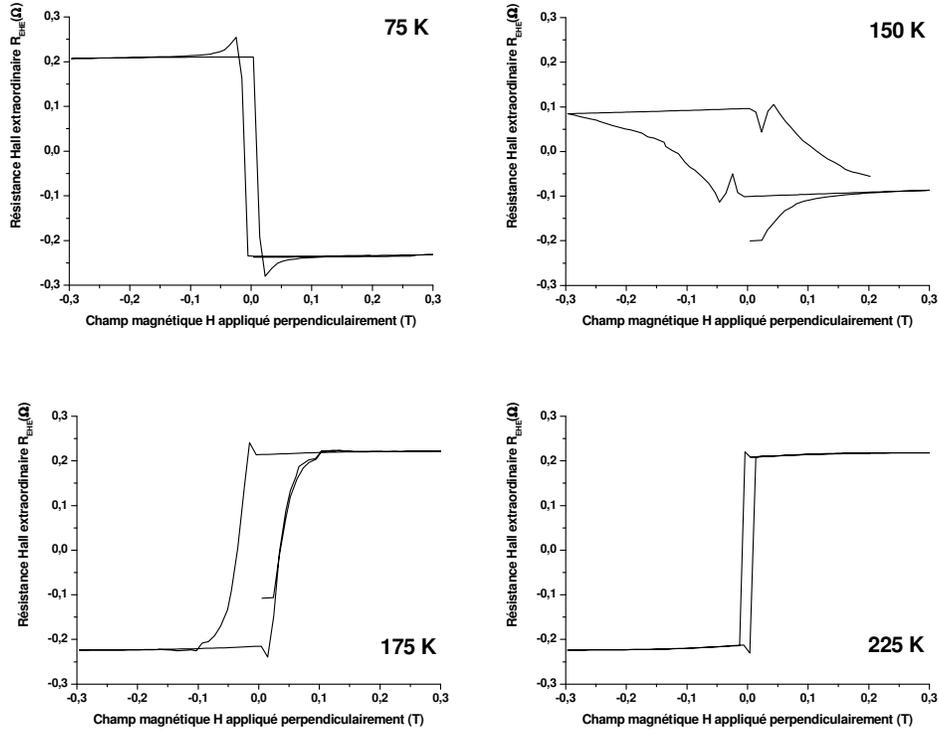
Afin de mieux comprendre et valider ces résultats, nous avons effectué les mêmes mesures de  $R_{EHE}(H^\perp, T)$ , selon un procédé et avec un matériel identiques [Ran-CP-05], sur des couches en pleine tranche de  $(Gd_{23}Co_{77})_{95}Zr_5$  d'une épaisseur de 20, 30 et 40 nm. Les figures 3.16, 3.17 et 3.18 montrent quelques courbes de  $R_{EHE}(H^\perp, T)$  pour les couches d'une épaisseur de 20, 30 et 40 nm respectivement.

Les courbes de  $R_{EHE}(H^\perp)$  des trois couches minces exhibent une anisotropie magnétique perpendiculaire marquée, une augmentation de  $H_c$  et du champ de saturation au voisinage de la  $T_{comp}$ , ainsi que les fluctuations anormales à proximité de  $H_c$ .

On peut remarquer que les valeurs de  $T_{comp}$  déterminées par les mesures magnétométriques sont confirmées par les mesures d'EHE pour chacune des couches (approximativement 140, 160 et 210 K pour les couches de 20, 30 et 40 nm respectivement).



**Figure 3.16.** Courbes d'hystérésis de  $R_{EHE}(H^\perp)$  à plusieurs températures d'une couche mince en pleine tranche de  $(Gd_{23}Co_{77})_{95}Zr_5$  d'une épaisseur de 20 nm.



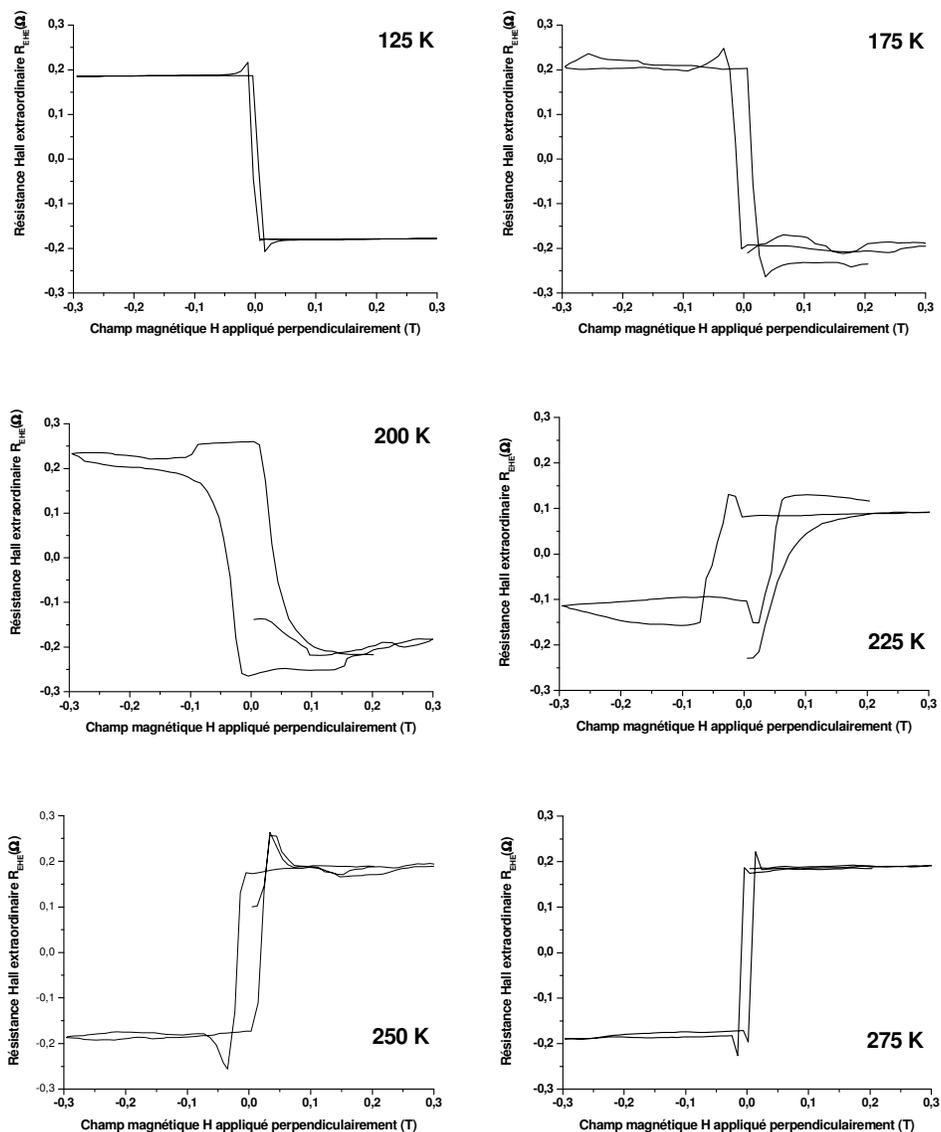
**Figure 3.17.** Courbes d'hystérésis de  $R_{EHE}(H^\perp)$  à plusieurs températures d'une couche mince en pleine tranche de  $(Gd_{23}Co_{77})_{95}Zr_5$  d'une épaisseur de  $30\text{ nm}$ .

On remarque également l'absence des deux hystérésis mineurs que l'on retrouvait sur l'hystérésis principal des courbes  $R_{EHE}(H^\perp)$ , et ce à toute température. Les calculs théoriques [Cap-JAP-71] décrivant l'existence de structures en domaines magnétiques dans les couches minces à anisotropie perpendiculaire ont démontré qu'il existait une épaisseur minimum en dessous de laquelle les domaines magnétiques (qu'ils soient en forme de cylindre ou de bande) n'apparaissent jamais. L'épaisseur minimum critique  $\delta$  d'apparition d'un domaine (nucléation) dans cette configuration est donnée par :

$$\delta = \left( \frac{2A_0}{K_p} \right)^{1/2} \quad (3.2)$$

avec  $A_0$  et  $K_p$  les constantes d'échange et d'anisotropie, respectivement. Cette valeur est de l'ordre de la dimension d'une paroi de domaine. Selon la littérature, on peut prendre approximativement les valeurs  $A_0 \approx 5.10^{-12} \text{ J.m}^{-1}$  et  $K_p \approx 5.10^4 \text{ J.m}^{-3}$ , valeurs correspondantes à des couches de  $(Gd_xCo_{1-x})_{95}Zr_5$  avec  $18 < x < 25$  [Sur-JAP-93]. Avec l'équation 3.2, on

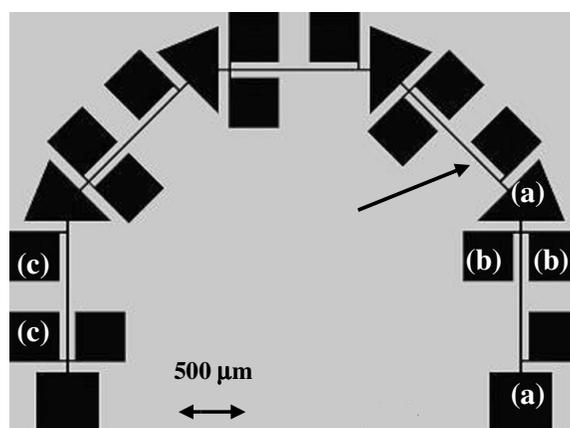
obtient alors une épaisseur minimale critique  $\delta = 10 \text{ nm}$ . On voit bien que l'épaisseur minimale critique est de l'ordre de la dizaine de  $\text{nm}$ , c'est à dire de l'ordre de grandeur de l'épaisseur de nos couches. Il est probable que l'épaisseur  $\delta$  soit supérieure à  $40 \text{ nm}$  dans notre situation (on n'observe pas les cycles mineurs pour l'échantillon de  $40 \text{ nm}$  d'épaisseur) et que les valeurs des constantes d'échange et d'anisotropie soient sensiblement différentes de celles retenues.



**Figure 3.18.** Courbes d'hystérésis de  $R_{EHE}(H^\perp)$  à plusieurs températures d'une couche mince en pleine tranche de  $(Gd_{23}Co_{77})_{95}Zr_5$  d'une épaisseur de  $40 \text{ nm}$ .

### 3.4.3.2 Courbes $R_{EHE}(H^\perp, T)$ à haut champ $H$ d'une couche de $GdCo$ lithographiée

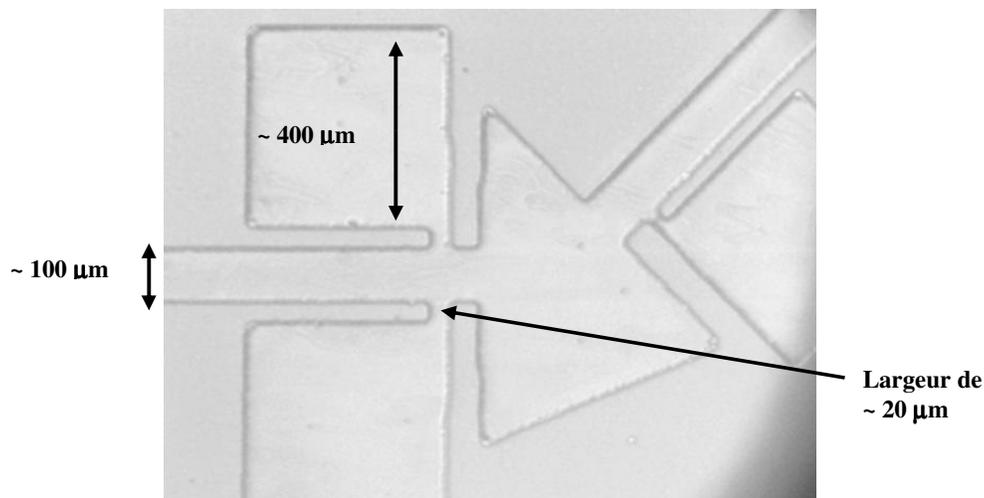
Afin d'affiner les mesures et de s'affranchir d'éventuels problèmes liés aux mesures de transport sur des couches pleines, nous avons lithographié la couche de  $30\text{ nm}$  d'épaisseur de  $(Gd_{23}Co_{77})_{95}Zr_5$  à l'aide d'un masque similaire à celui représenté sur la figure 3.19. Les plots de contact (a) permettent d'injecter le courant tandis que les plots (b) permettent de mesurer la tension. Cette configuration permet d'effectuer des mesures d'EHE ainsi que des mesures de résistance à l'aide des deux plots de contact (c) situés du même côté d'une des grandes lignes.



**Figure 3.19.** Masque de lithographie. Chaque carré a  $0,5\text{ mm}$  de côté, les grandes lignes (flèche) ont une longueur de  $1\text{ mm}$  et une largeur de  $0,1\text{ mm}$ .

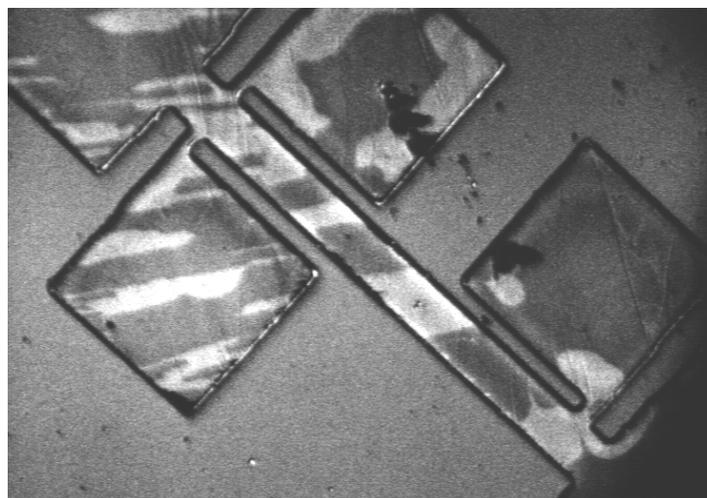
Sur ce masque figurent cinq séries de lignes et de plots permettant des mesures de transport dans le plan selon plusieurs orientations,  $0$ ,  $\pi/4$  ou  $\pi/2$ . La figure 3.20 représente une partie de la couche après insolation et gravure. On peut constater que les lignes et plots de contact présentent quelques irrégularités dues au procédé de lithographie. L'échantillon lithographié a ensuite été observé par microscopie Kerr (à  $300\text{ K}$ ) dans le but de mettre en évidence la formation de domaines magnétiques perpendiculaires. Le procédé mis en oeuvre a été de soumettre l'échantillon à un champ magnétique perpendiculaire à l'aide d'un aimant permanent de façon à induire une aimantation rémanente dans le matériau. La figure 3.21, montre un cliché pris alors que l'échantillon était à champ nul. On voit clairement sur ce cliché que le contraste entre les directions d'aimantation (up et down) est net et que les domaines possèdent une aimantation perpendiculaire très marquée, et ce à champ nul. Ceci montre que le matériau de l'échantillon possède une anisotropie perpendiculaire importante,

déjà révélée par les mesures magnétométriques et de transport. On remarque également qu'une partie des parois des domaines s'orientent préférentiellement parallèlement les unes aux autres, ce qui sous entend la présence d'une anisotropie planaire.



**Figure 3.20.** Détail de la couche lithographiée après insolation. Le masque utilisé pour la lithographie a une configuration identique à celui présenté sur la figure 3.19 à ceci près que les lignes principales ont une largeur de  $100 \mu m$ .

Les plots de contacts ont ensuite été soudés au porte-échantillon de l'appareil de mesure par impulsion d'ultrasons avec des fils d'Al.



**Figure 3.21.** Cliché pris à l'aide d'un microscope à effet Kerr de l'échantillon lithographié à champ nul. On remarque un contraste marqué entre les directions up et down de l'aimantation révélant une forte anisotropie perpendiculaire du matériau.

Afin de mieux connaître les propriétés magnétiques de l'alliage de  $(Gd_{23}Co_{77})_{95}Zr_5$ , nous avons effectué des mesures d'EHE à très haut champ pour plusieurs températures. La figure 3.22 présente les courbes de  $R_{EHE}(H^\perp, T)$  jusqu'à un champ magnétique  $H$  appliqué de 6 T.

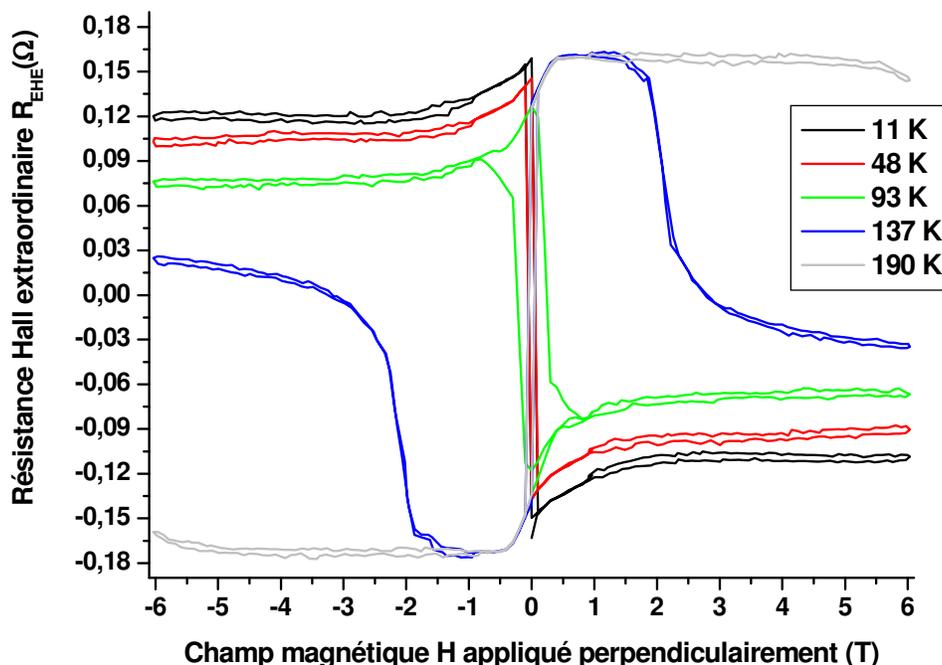


Figure 3.22. Courbes  $R_{EHE}(H^\perp, T)$  à très haut champ magnétique  $H^\perp$  pour diverses températures  $T$ .

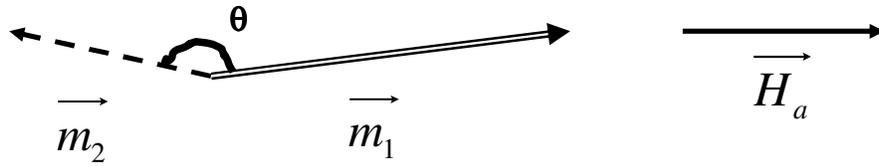
On remarque grâce à ces courbes que les propriétés magnétiques de l'alliage de  $(Gd_{23}Co_{77})_{95}Zr_5$  changent à très haut champ, comparativement aux mesures de  $R_{EHE}(H^\perp, T)$  effectuées précédemment avec un champ maximum de 0,6 T.

On remarque également un changement drastique de la  $T_{comp}$  qui se situe entre 93 et 137 K (a priori proche de 137 K), alors que la  $T_{comp}$  mesurée précédemment sur le même matériau non lithographié était d'environ 160 K. Ceci serait la conséquence de l'inhomogénéité latérale en composition de l'alliage étant donné que la zone lithographiée mesurée n'est pas la même que celle mesurée initialement par les quatre pointes en contact avec la pleine tranche. On remarque également que toutes les courbes sont parfaitement impaires.

On découvre aussi un phénomène de saturation de  $R_{EHE}(H^\perp)$  que l'on n'observe pas à faible champ, particulièrement pour la courbe à  $T = 137 K$ . En effet, la courbe de  $R_{EHE}(H^\perp)$  à 137 K

bascule à environ 2 T, change de signe et se stabilise sur un plateau. On constate que la courbe de  $R_{EHE}(H^\perp)$  à 190 K entame un même processus pour un champ supérieur à 6 T. Pour les températures inférieures, la baisse de  $R_{EHE}(H^\perp)$  est moins prononcée et les courbes se stabilisent également sur des plateaux dont les amplitudes diminuent avec la température.

Un processus de « spin-flip » pourrait expliquer ces phénomènes observés à haut champ. Le spin-flip décrit le fait que les aimantations des deux sous-réseaux initialement antiparallèles deviennent parallèles. Un calcul simple permet d'évaluer le champ magnétique appliqué  $H_{sf}$  nécessaire à l'amorce du spin-flip pour une température de 137 K.



**Figure 3.23.** Représentation simplifiée des deux aimantations  $m_1$  et  $m_2$ , avec  $m_1 > m_2$ , soumises au champ magnétique  $H_a$ .

L'énergie du système Co/Gd représenté sur la figure 3.23 peut être définie de manière simplifiée par :

$$E = -\mu_0(\vec{m}_1 + \vec{m}_2)\vec{H}_a + J\vec{m}_1\vec{m}_2 \quad (3.3)$$

avec le premier terme décrivant l'énergie due au champ magnétique appliqué  $H_a$  sur le système et le second terme l'énergie de couplage entre les deux aimantations.

L'aimantation totale s'écrivant  $\vec{m}_t = \vec{m}_1 + \vec{m}_2$  et ayant  $\vec{m}_t // \vec{H}_a$ , on peut écrire :

$$\vec{H}_a = H_a \cdot \frac{(\vec{m}_1 + \vec{m}_2)}{\|\vec{m}_1 + \vec{m}_2\|} \quad (3.4)$$

et donc

$$\begin{aligned} E &= -\mu_0(\vec{m}_1 + \vec{m}_2)H_a \frac{(\vec{m}_1 + \vec{m}_2)}{\|\vec{m}_1 + \vec{m}_2\|} + Jm_1m_2 \cos \theta \\ &= -\mu_0 H_a \sqrt{m_1^2 + m_2^2 + 2m_1m_2 \cos \theta} + Jm_1m_2 \cos \theta \end{aligned} \quad (3.5)$$

On dérive ensuite l'énergie  $E$  par rapport à  $x = \cos\theta$  pour obtenir :

$$\frac{dE}{dx} = Jm_1m_2 - \mu_0 H_a \frac{m_1m_2}{\sqrt{m_1^2 + m_2^2 + 2m_1m_2x}} \quad (3.6)$$

On détermine le minimum de  $E$  en posant  $dE/dx = 0$  pour obtenir finalement :

$$x = \cos\theta = \frac{\mu_0^2 H_a^2 / J^2 - (m_1^2 + m_2^2)}{2m_1m_2} \quad (3.7)$$

Lorsque le champ appliqué  $H_a$  atteint la valeur critique  $H_{sf}$  pour laquelle le spin-flip s'amorce, l'angle  $\theta$  est encore très proche de  $\pi$ . On pose alors  $\cos\theta = -1$  ce qui revient à écrire :

$$\mu_0 H_{sf} = J(m_1 - m_2) \quad (3.8)$$

Pour la température de 137 K, on peut évaluer la différence d'aimantation  $\Delta M = m_1 - m_2$  grâce à une simulation informatique. Nous avons traité le problème de l'alliage de  $Gd_xCo_{1-x}$  à l'aide du modèle du champ moléculaire de Néel [Née-AIF-49]. Ce modèle est basé sur celui de Weiss pour le ferromagnétisme, selon lequel pour un moment magnétique donné, les interactions des moments environnants sont équivalentes à un champ magnétique effectif agissant sur lui, c'est à dire le champ moléculaire, proportionnel à l'aimantation du matériau.

Pour modéliser un composé ferrimagnétique, on le considère formé de deux types d'atomes magnétiques portant chacun un moment magnétique différent, ces moments étant distribués en deux sous-réseaux : dans le cas présent, le sous-réseau Co possédant  $N_{Co}$  moments couplés ferromagnétique et le sous-réseau Gd possédant  $N_{Gd}$  moments également couplés ferromagnétique. Au niveau quantique, l'aimantation du sous-réseau de Co est donné par l'équation 3.9 suivante :

$$M_{Co} = N_{Co} \cdot g_J \cdot J \cdot \mu_B \cdot B_J(x_{Co}) \quad (3.9)$$

avec la fonction de Brillouin  $B_J$ , le facteur de Landé  $g_J$ , le nombre quantique  $J$  associé au moment cinétique total  $\vec{J}$ , le magnéton de Bohr  $\mu_B$  et avec

$$x_{Co} = \frac{g_J \cdot J \cdot \mu_B \cdot \mu_0 \cdot H_{Co}}{k_B \cdot T} \quad (3.10)$$

où  $H_{Co}$  est le champ moléculaire vu par un moment du sous-réseau de Co. Ce champ moléculaire  $H_{Co}$  est la somme des interactions d'échange avec d'autres atomes du sous-réseau de Co ainsi que les interactions d'échange avec les moments des atomes du sous-réseau de Gd. On écrit alors :

$$H_{Co} = \lambda_{CoCo} M_{Co} + \lambda_{CoGd} M_{Gd} \quad (3.11)$$

où  $\lambda_{CoCo} > 0$  (couplage ferromagnétique), et de même

$$H_{Gd} = \lambda_{GdGd} M_{Gd} + \lambda_{GdCo} M_{Co} \quad (3.12)$$

où  $\lambda_{GdGd} > 0$  et  $\lambda_{CoGd} = \lambda_{GdCo} < 0$  (couplage antiferromagnétique).

A partir de ce modèle théorique, un programme de simulation informatique permettant de prédire la  $T_{comp}$  en fonction de la composition (et réciproquement) a été développé [Rav-UJF-04]. Dans ce programme, il a été supposé qu'un réseau ferromagnétique vérifie la loi de Curie en  $T_c = \lambda C$ , permettant d'obtenir ainsi  $\lambda_{CoCo}$  pour une  $T_c$  de 1388 K [Sma-J3M-98].

Etant donné que la composition qui nous intéresse est comprise entre  $GdCo_{4,71}$  et  $GdCo_{3,76}$ , nous prenons en compte les résultats expérimentaux sur des alliages proches déjà étudiés comme le  $GdCo_5$  (cristallin) ou le  $Gd_{0,22}Co_{0,78}$  (amorphe) [Tay-JAP-82].

Les données utilisées et conditions posées ont été les suivantes [Rav-UJF-04] :  $T_c(GdCo_5)$  comprise entre 1008 et 1030 K [Kat-J3M-81],  $M_{Co}(0 K) = 1,3 \cdot 10^5 A.m^{-1}$ , et  $d(GdCo_5) = 8,374 g.cm^{-3}$  [Kat-J3M-81],  $m_{Gd} = 7 \mu_B$  et  $m_{Co} = 1,7 \mu_B$ . Selon notre représentation, les constantes de couplage  $\lambda$  n'ont pas d'unité.

Dans un premier temps, on considère que le sous-réseau de Co ne voit pas le sous-réseau de Gd, ce qui revient à poser la constante de couplage  $\lambda_{GdCo} = \lambda_{CoGd} = 0$ . Etant donné que  $T_c(Co) = 1388 K = \lambda_{CoCo}C$ , on obtient  $\lambda_{CoCo}$  de l'ordre de 1000, grâce à la valeur de la constante de Curie calculable selon la formule :

$$C = \frac{\mu_0 \cdot n \cdot \mu_{ef}^2}{3k_B} \quad (3.13)$$

avec  $n$  désignant la densité volumique totale des moments magnétiques et  $\mu_{ef}$  le moment magnétique effectif de la théorie classique décrit par  $\mu_{ef} \equiv g_J \sqrt{j(j+1)}\mu_B$ .

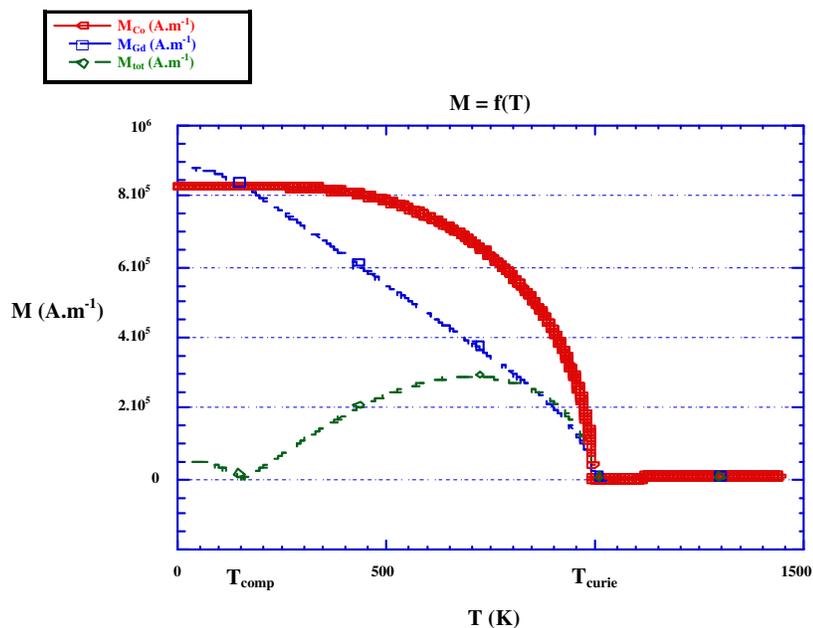
On sait d'après plusieurs travaux [Tay-JAP-82][Man-I3E-86][Hon-PRB-92][Has-MJC-00] que la constante  $\lambda_{GdCo}$  est d'un ordre de grandeur inférieure à  $\lambda_{CoCo}$  mais d'un ordre de grandeur supérieure à  $\lambda_{GdGd}$ . On constate aussi que la valeur de  $\lambda_{CoCo}$  doit être légèrement diminuée lorsqu'on augmente la concentration en Gd, les interactions de couplage entre atomes de Co devenant de plus en plus faible.  $\lambda_{GdGd}$  peut être considéré comme négligeable car trop faible devant les deux autres constantes d'échange, et on n'observe aucun changement significatif lorsqu'on le conserve ou non. Cependant, une valeur non nulle lui est attribuée pour ne pas provoquer de division par 0 dans le programme.

Finalement, les valeurs utilisées sont les suivantes :  $\lambda_{CoCo} = 1080$ ,  $\lambda_{GdCo} = 200$  et  $\lambda_{GdGd} = 0,1$ .

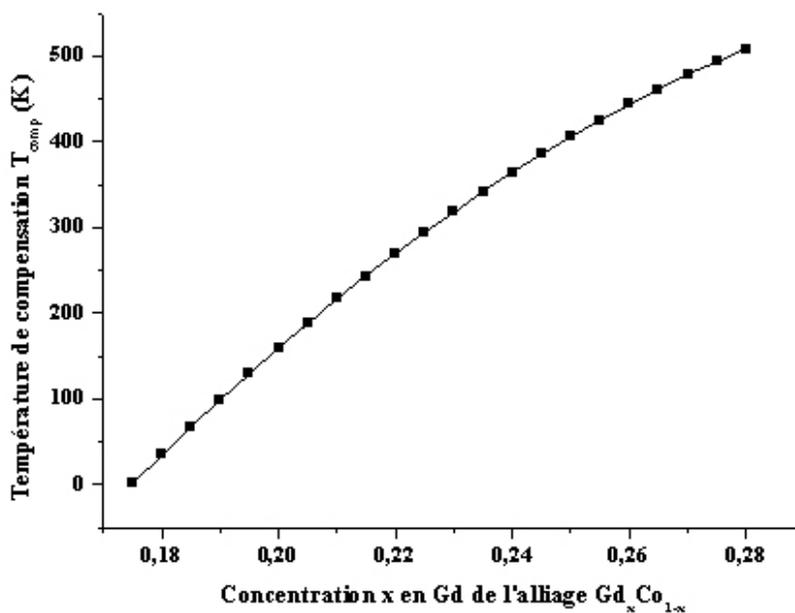
La courbe 3.24 montre les calculs de l'aimantation globale  $M_{tot}$  d'un alliage amorphe de  $GdCo_4$  ( $x = 0,2$ ), ainsi que de l'aimantation  $M_{Co}$  du sous-réseau de Co et de l'aimantation  $M_{Gd}$  du sous-réseau de Gd, en fonction de la température  $T$ .

La figure 3.24 nous montre que l'alliage  $Gd_{0,2}Co_{0,8}$  considéré exhibe théoriquement une  $T_{comp}$  d'environ 160 K. En comparant ce résultat à la courbe expérimentale de la figure 3.7, on voit que le résultat obtenu par simulation est cohérent. Cependant, on peut noter que les paramètres introduits dans la simulation ne sont pertinents que dans le cas d'un cristal de  $GdCo_5$ , et que le modèle du champ moléculaire moyen est appliqué à un amorphe supposé homogène. Les hypothèses prises en compte pour le calcul de champ moléculaire sont à garder à l'esprit pour l'utilisation des résultats de simulations.

A l'aide de cette même simulation et des mêmes paramètres, on peut calculer la  $T_{comp}$  de l'alliage de  $Gd_xCo_{1-x}$  en fonction de la concentration  $x$  en Gd,  $T_{comp}$  dont la courbe est représentée sur la figure 3.25.



**Figure 3.24.** Simulation de l'aimantation totale, de l'aimantation du sous-réseau de Gd et de l'aimantation du sous-réseau de Co d'un alliage amorphe de  $Gd_{0,2}Co_{0,8}$  en fonction de la température [RAV-UJF-04].



**Figure 3.25.** Courbe simulée de la température de compensation de l'alliage  $Gd_xCo_{1-x}$  en fonction de la concentration  $x$  en Gd [RAV-UJF-04].

Etant donné que la  $T_{comp}$  est d'environ  $120\text{ K}$  sur cet échantillon et que nous avons une température de  $137\text{ K}$ , soit un écart minime de  $17\text{ K}$ , nous pouvons poser  $\Delta M \approx 10^4\text{ A.m}^{-1}$ . Etant donné que  $J = \lambda_{GdCo} \approx 200$ , on obtient à l'aide de l'équation 3.8 une valeur du champ de spin-flip  $H_{sf} \approx 2,5\text{ T}$ . Cette valeur indicative, déterminée à partir d'une représentation simple et proche des  $2\text{ T}$  observés, peut laisser à penser que le spin-flip est probablement à l'origine du renversement constaté des courbes de  $R_{EHE}(H^\perp, T)$  à très haut champ. Très logiquement, pour une température plus élevée,  $\Delta M$  est plus important et le spin-flip intervient à des champs encore plus élevés. Le même type de calcul, avec  $\Delta M \approx 4.10^4\text{ A.m}^{-1}$  à  $190\text{ K}$ , permet d'obtenir un champ  $H_{sf} \approx 10\text{ T}$ , valeur qui est de l'ordre de grandeur des phénomènes observés.

## 3.5 Origines de l'anisotropie magnétique dans les couches minces de $Gd_xCo_{1-x}$

### 3.5.1 Résultats expérimentaux

De nombreux travaux [Cha-APL-73][Tay-JAP-76][Tay-JAP-82][Oha-JAP-87][Hon-PRB-92][Sur-JAP-93][Mer-PRB-93][Shi-I3E-01][Shi-J3M-02] ont montré que des couches minces d'alliage amorphe de  $Gd_xCo_{1-x}$  exhibent des anisotropies magnétiques planaires ou perpendiculaires, et ce pour diverses températures et compositions. Il en est de même pour nombre d'alliages terre rare / métal de transition 3d comme le TbFe, le YCo, le GdFe ou le TbCo. La littérature étant très prolixe sur le sujet, et étant donné que la variété des compositions, des conditions de préparation, de mesure, de température etc. est aussi nombreuse que les publications, il est nécessaire dans ce qui suit de ne tenir compte que des cas les plus proches du nôtre. De plus, nous n'avons pas pu mener de mesures de l'anisotropie perpendiculaire de nos échantillons.

Nos échantillons ont été déposés par pulvérisation cathodique et soumis à un champ planaire permanent pendant le dépôt, destiné initialement à créer un axe magnétique facile dans le plan. Shin *et al.* [Shi-I3E-01] ont montré qu'un champ planaire permanent appliqué pendant le dépôt d'un alliage de  $(Gd_xCo_{1-x})_{95}Zr_5$  induisait une anisotropie perpendiculaire  $K_p$  pour une gamme très importante de composition ( $x$  compris entre 0,02 et 0,25), anisotropie dont la valeur dépend essentiellement de la pression  $P_{Ar}$  du gaz (Ar) pendant le dépôt. Le maximum de  $K_p$  est observé pour une composition de Gd comprise entre 0,18 et 0,25 et une pression  $P_{Ar}$  de  $10^{-2}$  mbar avec des valeurs (dépendant très peu de  $x$ ) de près de  $8.10^4 J.m^{-3}$ . Nos dépôts ont été effectués à des pressions moindres d'environ  $4.10^{-3}$  mbar. Il est donc très probable que l'anisotropie perpendiculaire de nos échantillons soit plus faible. Une anisotropie planaire existe également dans cette gamme de composition, avec un ordre de grandeur inférieur ( $K_u = 4.10^3 J.m^{-3}$  environ). Pour des compositions avec  $x > 0,25$ ,  $K_p \approx K_u$  et finalement pour  $x > 0,28$ ,  $K_u > K_p$ .

### 3.5.2 Origines de l'anisotropie magnétique perpendiculaire dans le $(Gd_xCo_{1-x})_{95}Zr_5$

On retrouve dans la littérature un très grand nombre de différentes interprétations quant à l'apparition d'une anisotropie perpendiculaire  $K_p$  prédominante dans les couches minces d'AAF de Co-RE avec RE = Gd, Sm.

#### 3.5.2.1 Anisotropie magnétique perpendiculaire liée à des structures cristallines à petite échelle et aux procédés de dépôt

Il a été clairement établi que la composition  $x$  du  $(Gd_xCo_{1-x})$  joue un rôle important dans l'apparition d'une anisotropie  $K_p$  [Shi-I3E-01][Twa-JAP-79]. La composition relative en Gd et Co de l'alliage est primordiale car elle va conditionner l'agencement des atomes des différentes espèces entre eux.

Mergel *et al.* [Mer-PRB-93] ont développé un modèle pseudo-cristallin proposé pour expliquer l'apparition d'une anisotropie perpendiculaire dans les films minces en alliages amorphes terre rare / métaux de transition. Ce modèle est basé sur l'hypothèse que durant le dépôt de l'alliage par pulvérisation cathodique, de petites mailles se forment, particulièrement si celles-ci forment du  $GdCo_5$  et du  $Gd_2Co_7$ , mailles hexagonales dont la taille est de l'ordre du nanomètre, et tendent à induire en moyenne un axe préférentiel perpendiculaire au plan des couches. Des observations antérieures [Oha-JAP-87] ont d'ailleurs corroboré la présence d'une organisation cristalline à basse échelle dans les alliages amorphes ferromagnétiques. Cependant, les couches conservent leur caractère amorphe car il y a une absence totale d'organisation de ces mailles à grande échelle. Nos échantillons ainsi ont une composition dont les formes cristallines les plus proches sont le  $GdCo_5$  et le  $Gd_2Co_7$ . Ces deux formes ne sont pas uniques, car des sites  $Gd_2Co_{17}$  peuvent également se former [Mer-PRB-93][Shi-I3E-01] pour des compositions  $x$  de Gd plus faibles, ceux-ci exhibant des structures cristallines rhomboédriques et/ou hexagonales, responsables également de l'apparition de l'anisotropie  $K_p$ . Il est logique de penser que l'anisotropie perpendiculaire de nos échantillons est a priori due (du moins en partie) à la présence de formes cristallines à petite échelle, sans pour autant que l'alliage perde son caractère amorphe.

### 3.5.2.2 Anisotropie magnétique perpendiculaire liée aux propriétés magnétostrictives de l'alliage amorphe de GdCo

Les propriétés magnétostrictives et mécaniques du GdCo peuvent aussi expliquer l'apparition de l'anisotropie perpendiculaire. Twarowski *et al.* [Twa-JAP-79] ainsi que Takagi *et al.* [Tak-JAP-79] ont établi la correspondance entre les propriétés magnétostrictives du GdCo et l'anisotropie  $K_p$  en étudiant la variation de ces deux paramètres en fonction de la composition de l'alliage. Le  $Gd_xCo_{1-x}$  amorphe exhibe un taux de magnétostriction maximum à saturation non négligeable de  $50.10^{-6}$  pour une composition  $x$  de Gd de 0,23. Pendant notre procédé de dépôt, la couche de GdCo a peut être été soumise à des contraintes mécaniques qui se traduisent par l'apparition d'une anisotropie perpendiculaire spontanée. De plus, les propriétés magnétostrictives des couches de GdCo s'expriment également sous champ magnétique et peuvent alors induire une anisotropie perpendiculaire durant les mesures magnétométriques ou de transport.

### 3.6 Conclusions du chapitre 3

Ces différents résultats montrent que l'utilisation d'un alliage amorphe tel que le  $Gd_xCo_{1-x}$  en tant que matériau constitutif d'une ou de plusieurs couches magnétiques d'une jonction tunnel magnétique n'est pas aisée. Si les avantages du  $Gd_xCo_{1-x}$  sont séduisants « sur le papier » quant à son emploi pour des MRAM améliorées, la maîtrise des propriétés intrinsèques de cet alliage est compliquée.

Au vu de toutes les mesures effectuées et de toutes les sources bibliographiques disponibles, les propriétés de ce matériau que sont l'aimantation totale, la coercivité ou l'anisotropie magnétique en fonction de la température, la température de compensation, les caractéristiques de transport électrique etc. dépendent de très nombreux paramètres difficiles à définir et à fixer. Nous avons rencontré des problèmes d'homogénéité en composition de l'alliage, ce qui est rédhibitoire dans le cas où nous cherchons à obtenir une  $T_{comp}$  précise et une aimantation totale nulle à la  $T_{comp}$ . Une très faible dispersion de la  $T_{comp}$  est nécessaire, c'est à dire obtenir un matériau dont la stoechiométrie doit être parfaitement homogène en épaisseur et dans le plan. La présence d'une anisotropie perpendiculaire marquée peut poser des problèmes quant à l'orientation de l'aimantation au repos de la couche libre d'une JTM. Cependant nous avons vu qu'il existe des moyens très divers de réduire, voir d'éliminer ce problème : il est donc possible et nécessaire de développer un matériau ayant un axe de facile aimantation orienté préférentiellement dans le plan.

Au-delà de ses applications possibles dans une MRAM, l'alliage amorphe de GdCo est un matériau aux propriétés particulières très intéressantes et encore mal comprises. Il est donc nécessaire de définir des protocoles permettant de mesurer et comprendre le processus du spin-flip dans un ferrimagnétique soumis à un champ fort, les mécanismes intervenant dans le transport et les mesures du signal Hall extraordinaire (contribution de chaque sous-réseau notamment), en particulier les sur-fluctuations observées à proximité de  $H_c$ , les effets dus à la présence de gradients de composition latéraux et/ou dans l'épaisseur. Il semble aussi que le GdCo amorphe présente des caractéristiques spémagnétiques et magnétostrictives, à l'instar d'autres AAF de terre rare et métal 3d, qu'il convient de mieux cerner.

### Références du chapitre 3

- [Cap-JAP-71] J. A. Cape, G. W. Lehman, « Magnetic domain structures in thin uniaxial plates with perpendicular easy axis », *J. Appl. Phys.*, 42, p5732, (1971).
- [Cha-APL-73] P. Chaudhari, J.J. Cuomo, R.J. Gambino, « Amorphous metallic films for magneto-optic applications », *Appl. Phys. Lett.*, 22, p337, (1973).
- [Coe-PRL-76] J. M. D. Coey, J. Chappert, J. P. Rebouillat, T. S. Wang, « Magnetic structure of an amorphous rare-earth transition-metal alloy », *Phys. Rev. Lett.*, 36, p1061, (1976).
- [Has-MJC-00] A. Hassini, A. Bouhdada, « Magnetization studies in amorphous  $Co_{80-x}Gd_xB_{20}$  », *Moroccan Journal of Condensed Matter*, 3, p41, (2000).
- [Hon-PRB-92] Hong Fu, M. Mansuripur, « Boltzmann distribution of bond orientations and perpendicular anisotropy in amorphous rare-earth – transition-metal films », *Phys. Rev. B*, 45, p7188, (1992).
- [Jul-PL-75] M. Jullière, « Tunneling between ferromagnetic films », *Phys. Lett.*, 54A, p225, (1975).
- [Kat-J3M-81] T. Katayama, T. Shibata, « Magnetic properties of some gadolinium – cobalt intermetallic compounds », *J. Magn. Magn. Mater.*, 23, p173, (1981).
- [Kau-PRB-86] S. N. Kaul, W. Kettler, M. Rosenberg, « Evidence for a magnetic contribution to the electrical resistivity in amorphous  $Fe_{80}B_{20-x}C_x$  alloys », *Phys. Rev. B*, 33, p4987, (1986).
- [Maj-J3M-90] W. Maj, « Anomalous magnetoresistivity of amorphous  $GdCo_3$  thin films », *J. Magn. Magn. Mater.*, 89, p189, (1990).
- [Man-I3E-86] M. Mansuripur, M.F. Ruane, *IEEE Trans. Magn.*, 22, p33, (1986).
- [McG-JAP-77] T. R. McGuire, R. J. Gambino, R. C. Taylor, « Hall effect in amorphous thin-film alloys », *J. Appl. Phys.*, 48, p2965, (1977).
- [Mer-PRB-93] D. Mergel, H. Heitmann, P. Hansen, « Pseudocrystalline model of the magnetic anisotropy in amorphous rare-earth – transition-metal thin films », *Phys. Rev. B*, 47, p882, (1993).
- [Moo-PRL-95] J.S. Moodera, L.R. Kinder, T.M. Wong, R. Meservey, « Large magnetoresistance at room temperature in ferromagnetic thin film tunnel junctions », *Phys. Rev. Lett.*, 74, p3273, (1995).

- [Née-AIF-49] Louis Néel, « Preuves expérimentales du ferromagnétisme et de l'antiferromagnétisme », Annales de l'institut Fourier, Tome 1, p163, (1949)
- [Noz-BIE-02] J.P. Nozières, L. Ranno, Y. Conraux, « Mémoires magnétiques à accès aléatoire (MRAM) à sélection à l'écriture par inhibition » et « Mémoires magnétiques à accès aléatoire (MRAM) à sélection à l'écriture par un courant polarisé utilisant des alliages amorphes ferrimagnétiques », Brevets d'Invention Européens (2002).
- [Oga-JJAP-76] A. Ogawa, T. Katayama, M. Hirano, T. Tsushiwa, Jpn. J. Appl. Phys. Suppl., 15, 87, (1976).
- [Oha-JAP-87] R.C. O'Handley, « Physics of ferromagnetic amorphous alloys », J. Appl. Phys., 62, pR15, (1987).
- [Oka-I3E-74] K. Okamoto, T. Shirahawa, S. Matsushata, Y. Sakurai, IEEE Trans. Magn., MAG-10, p799 (1974).
- [Ran-CP-05] L. Ranno, G. Suran, communication personnelle, (2005).
- [Rav-UJF-04] X. Ravel, « Elaboration de films magnétiques de GdCo, optimisation de leur température de compensation à 200/250 K et étude des propriétés magnétiques et de transport », Rapport de stage de Master 1 Sciences, Technologies et Santé, Université Joseph Fourier, (2004).
- [Rhy-PRB-74] J. J. Rhyne, J. H. Schelleng, N. C. Koon, « Anomalous magnetization of amorphous TbFe<sub>2</sub>, GdFe<sub>2</sub>, and YFe<sub>2</sub> », Phys. Rev. B, 10, p4672, (1974).
- [Sak-J3M-83] Y. Sakurai, K. Onishi, « Preparation and properties of RE-TM amorphous films », J. Magn. Magn. Mater., 35, p183, (1983).
- [Shi-I3E-01] D. H. Shin, H. Niedoba, G. Suran, « Perpendicular anisotropy in a-CoGdZr films, induced by H<sub>dc</sub> applied during deposition », IEEE, Trans. Magn., 37, p1422, (2001).
- [Shi-J3M-02] D. H. Shin, L. Ranno, G. Suran, « Correlation between magnetic properties and Hall effect in CoZrGd films », J. Magn. Magn. Mater., 242-245, p1178, (2002).
- [Slo-J3M-96] J.C. Slonczewski, « Current-driven excitation of magnetic multilayers », J. Magn. Magn. Mater., 159, pL1, (1996).
- [Sma-J3M-98] J. Šmakov, S. Lapinskas, E.E. Tornau, A. Rosengren, « Magnetization and compensation temperature of transition-metal – rare-earth multilayers in a model with long-range interactions », J. Magn. Magn. Mater., 190, p157, (1998).

- [Sur-JAP-93] G. Suran, H. Ouahmane, M. Rivoire, J. Sztern, « Static and dynamic magnetic properties of  $(CoZr)_{100-x}(RE)_x$  amorphous thin films », J. Appl. Phys., 73, p5721, (1993).
- [Tak-JAP-79] H. Takagi, S. Tsunashima, S. Uchiama, T. Fuji, « Stress induced anisotropy in amorphous Gd-Fe and Tb-Fe sputtered films », J. Appl. Phys., 50, p1642, (1979).
- [Tan-JJAP-82] H. Tanaka, T. Katoh, S. Yoshino, M. Masuda, « Effect of substrate state on homogeneity of compensation temperature through film thickness in GdCo films », Jap. J. Appl. Phys., 21, pL248, (1982).
- [Tay-JAP-76] R.C. Taylor, A. Gangulee, « Magnetization and magnetic anisotropy in evaporated GdCo amorphous films », J. Appl. Phys., 47, p4666, (1976).
- [Tay-JAP-82] R.C. Taylor, A. Gangulee, « Magnetic properties of amorphous GdFeB and GdCoB alloys », J. Appl. Phys., 53, p2341, (1982).
- [Twa-JAP-79] K. Twarowski, H. K. Lachowicz, « Magnetostriction and anisotropy of amorphous Gd-Co r.f. sputtered films », J. Appl. Phys., 50, p7722 (1979).
- [Weg-PRB-00] J. E. Wegrowe, A. Comment, Y. Jaccard, J.-Ph. Ansermet, N. M. Dempsey, J. P. Nozières, « Spin-dependent scattering of a domain wall of controlled size », Phys. Rev. B, 61, p12216, (2000).

## **Chapitre 4**

# **Résistance des jonctions tunnel magnétiques aux rayonnements ionisants**

### **4.1 Introduction et travaux préliminaires**

#### **4.1.1 Contexte des travaux**

Un des avantages avancés concernant les MRAM par rapport à tous les autres types de mémoires à accès aléatoire (FRAM, SDRAM, DDRAM, Flash...) est la robustesse des jonctions tunnel magnétiques vis-à-vis des rayonnements ionisants. On entend généralement par rayonnements ionisants le bombardement par des particules accélérées, chargées ou non, ou les rayonnements électromagnétiques très énergétiques tels les rayons X ou gamma. C'est la mise en place des premières constellations de satellites pour les télécommunications qui a posé le problème de la vulnérabilité et de la durée de vie des dispositifs électroniques [Sai-Th-98] puisque c'est dans l'espace que l'on retrouve les rayonnements ionisants les plus diversifiés et les plus énergétiques. Les composants MOS (Métal-Oxyde Semi-conducteurs) même durcis ou blindés sont les premiers touchés par cet effet.

#### **4.1.2 Effets des rayonnements ionisants sur la matière et l'électronique**

En règle générale, les rayonnements ionisants interagissent avec la matière pour créer des paires électron-trou dans les matériaux, avec plus ou moins d'efficacité selon le type de rayonnement et la nature du matériau. Lors de l'irradiation d'un matériau, l'énergie de la particule ou du photon incident est transférée pour l'essentiel aux électrons lors d'une succession de collisions. La densité de paires électron-trou, générée par seconde, par un rayonnement ionisant peut être considérée comme proportionnelle à l'énergie déposée [Sai-Th-98]. Après cette étape de création de paires suit une phase de recombinaison initiale entre une partie des trous et des électrons créés par l'irradiation. Il reste cependant de nombreuses charges positives et négatives piégées dans le matériau. Généralement le problème est complexe lorsqu'il s'agit d'un dispositif électronique comprenant des matériaux conducteurs, semi-conducteurs et isolants avec de nombreuses interfaces. Après irradiation, ce phénomène

de recombinaison de l'ensemble des charges peut prendre plusieurs secondes jusqu'à plusieurs milliers d'heures.

Dans les mémoires à accès aléatoire actuellement utilisées, le bit d'information est stocké sous la forme de charges électriques. Il devient clair que les rayonnements ionisants ont un effet hautement pervers en créant des charges électriques parasites dans les matériaux et aux interfaces. L'apport de charges par irradiation perturbe ou élimine purement et simplement l'information contenue dans la cellule mémoire. L'effet de dose est important dans le sens où l'information sera détruite lorsque la quantité de charges créées par irradiation dépassera un certain seuil lequel est de plus en plus faible lorsque les dispositifs sont miniaturisés et la quantité de charges stockées diminuée. Ce problème est perçu comme un obstacle majeur à l'intégration de mémoires MOS dans les applications spatiales, militaire, et même à terme pour des utilisations terrestres.

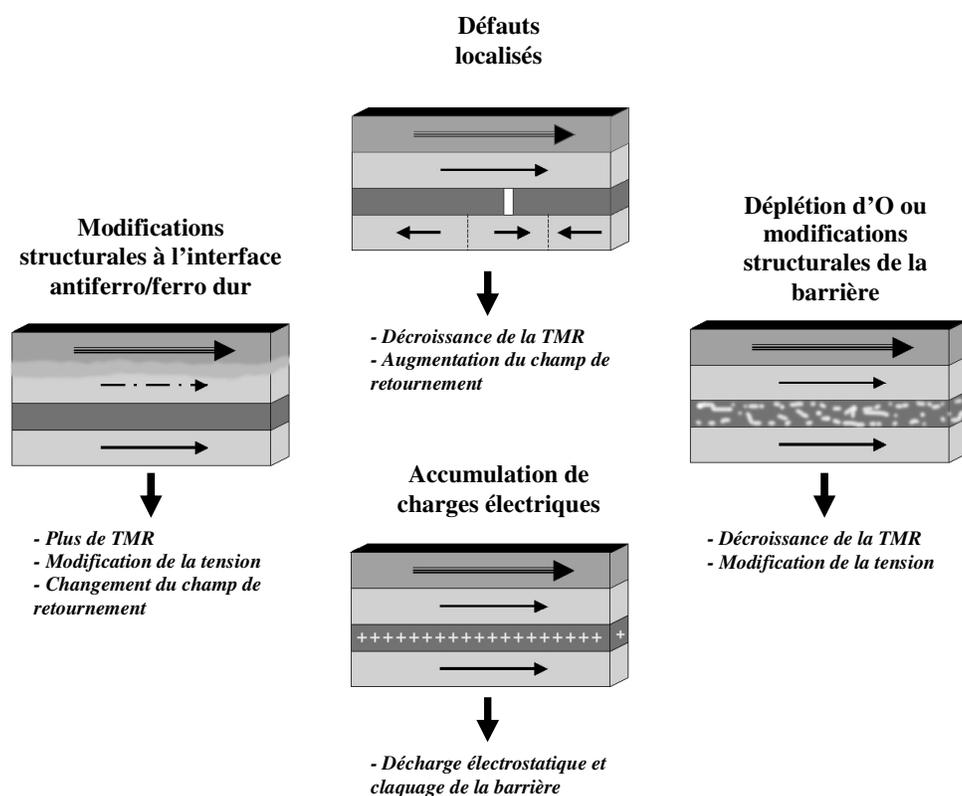
#### 4.1.3 Cas des jonctions tunnel magnétiques

Dans le cas des jonctions tunnel magnétiques, l'information est codée sous une forme magnétique et non électrique. C'est pourquoi on suppose *a priori* que les mémoires magnétiques à base de JTM seraient à même de résister à de très fortes doses de rayonnements sans pour autant qu'il y ait une quelconque perte d'information.

Il convient cependant de vérifier *a posteriori* que les jonctions tunnel magnétiques sont effectivement résistantes aux rayonnements ionisants [Con-JAP-03]. Au-delà du fait que ces rayonnements ionisants provoquent l'apparition de charges électriques dans la structure, il est nécessaire de vérifier l'impact physique d'une irradiation à très haute dose sur les couches minces constituant une JTM. En effet, on peut craindre que le passage d'une particule ou d'un photon hautement énergétique provoque des déplacements atomiques au sein des couches et aux interfaces ainsi que des déformations de la structure cristalline des diverses couches. Plusieurs effets possibles des irradiations sur une JTM sont envisageables (Fig. 4.1) :

- Apparitions de défauts localisés dans la barrière isolante ;
- Accumulation de charges électriques conduisant à un claquage électrostatique (ESD) de la barrière isolante ;
- Modifications structurales à l'interface antiferromagnétique/ferromagnétique et ferromagnétique/isolant ;
- Déplétion des atomes d'O et/ou modifications structurales de la barrière.

L'ensemble de ces effets peut conduire à une décroissance de la TMR et/ou une modification de la caractéristique courant/tension.



**Figure 4.1.** Divers effets possibles des irradiations sur une jonction tunnel magnétique ainsi que leurs conséquences sur ses propriétés fonctionnelles.

La littérature scientifique est très peu prolifique concernant les effets des irradiations (particules ou rayonnements) sur les jonctions tunnel magnétiques, et même de manière générale sur les empilements de couches minces. La principale difficulté pour interpréter les éventuels effets des irradiations sur les JTM vient du fait que les empilements sont complexes et constitués de matériaux très divers.

Vis-à-vis des effets envisageables, les rayonnements électromagnétiques comme les rayons X, Gamma, les UV ainsi que les faisceaux d'électrons ne sont pas à même d'endommager les jonctions tunnel, hormis le fait que ces rayonnements pourraient engendrer un nombre conséquent de charges électriques propre à claquer la barrière. Nous allons donc nous focaliser sur les effets des bombardements par des ions lourds et pénétrants (donc rapides),

particules plus à même de provoquer des effets tels que les changements structuraux et stœchiométriques au sein d'une JTM.

Cependant, il est intéressant de s'attarder sur les résultats expérimentaux obtenus à partir d'irradiations de matériaux comme les alliages amorphes magnétiques ou l' $\text{Al}_2\text{O}_3$ , et bien sûr tous les travaux sur la tenue aux irradiations des composants de type MOS.

#### 4.1.4 Quelques résultats expérimentaux

Il a été démontré qu'une exposition d'alliages magnétiques amorphes ou cristallins à un flux intense de neutrons rapides dégrade les propriétés magnétiques de ces alliages, comme par exemple le Permalloy sous forme amorphe [Bro-JAP-84], matériau que nous retrouvons très souvent en tant qu'électrode ferromagnétique des JTM. Les irradiations dégradent particulièrement la perméabilité des matériaux magnétiques, leur rémanence ainsi que leur coercivité. Plus intéressant encore, il a été démontré que l'irradiation par des ions d'Ag à 200 MeV d'empilements métalliques Ti/Si et Fe/Si induisait un mélange à l'interface entre les deux couches [Ava-NSC-96]. Le processus se déroulerait sans qu'il y ait pour autant de déplacements directs d'atomes par collisions élastiques [Ava-NSC-96]. L'irradiation de JTM par des ions rapides va sans doute créer un certain désordre aux interfaces, particulièrement les interfaces entre la barrière isolante et les électrodes magnétiques.

Concernant les oxydes, le cas le plus caractéristique est celui du  $\text{SiO}_2$  car il est employé massivement dans tous les secteurs de l'électronique et entre dans la fabrication de la plupart des composants utilisés à l'heure actuelle. Dans le  $\text{SiO}_2$ , le passage d'un ion rapide tel un ion d'oxygène à 95 MeV créé tout au long de son trajet une zone de dégâts de forme cylindrique appelé trace latente. Ces observations ayant été également faites dans des matériaux métalliques cristallins [Ava-NSC-96], il est tout à fait probable qu'avec le même type d'ion, on retrouve ce type de dégâts dans les matériaux constituant les JTM. La trace latente étant amorphe, les effets obtenus dans la fine couche d' $\text{Al}_2\text{O}_3$ , également amorphe, seraient plutôt des effets de déplacements atomiques locaux et de déplétion des atomes d'O ainsi que des phénomènes de mélanges aux interfaces. Plusieurs hypothèses tentent d'expliquer la formation de cette trace latente. Dans le modèle de la pointe thermique [Mef-PRB-93], l'énergie de l'ion est transférée très localement pendant un laps de temps très court ce qui conduit à une élévation très brutale de la température le long du trajet de l'ion pouvant

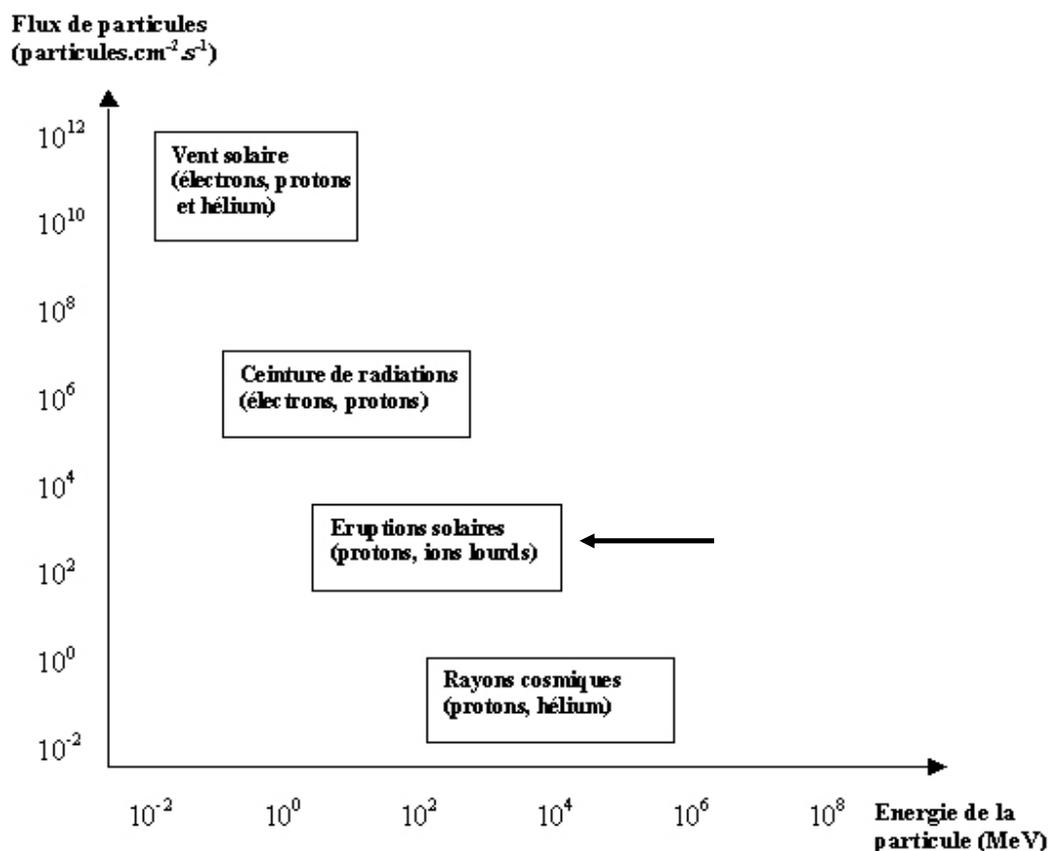
conduire à une fusion localisée du matériau. Dans le modèle de la pointe ionique (ou explosion Coulombienne) l'ion incident perd ses électrons dans un laps de temps suffisamment court pour engendrer une répulsion Coulombienne entre les atomes voisins dans la trace. Mais un des effets majeurs de l'irradiation par des ions rapides sur le SiO<sub>2</sub> (et par extension sur les isolants comme l'Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) reste finalement la déplétion des atomes d'oxygène dans l'isolant, formant des zones ionisées (Si<sup>3+</sup> > Si<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Si<sup>2+</sup> > SiO, Si<sup>+</sup> > Si<sub>2</sub>O) assimilables à des défauts structuraux.

A la vue de ces quelques résultats expérimentaux il est clair que l'irradiation de jonctions tunnel magnétiques, en particulier par des ions rapides et lourds peut provoquer des modifications structurales importantes à même de modifier le comportement des JTM. Il reste à vérifier si ces éventuels modifications par des ions lourds rapides entraîneront des problèmes de fiabilité des JTM sous ce type de rayonnement et d'en comprendre la nature.

#### 4.1.5 Préparation des travaux d'irradiation

Afin de vérifier la résistance des JTM aux rayonnements ionisants de manière adéquate, il convient de choisir un certain type d'irradiation (particule, énergie, charge éventuelle...) effectuée pendant un certain temps représentant le vieillissement d'un dispositif en conditions de fonctionnement réelles. Dans le cas d'une électronique embarquée dans l'espace, celle-ci est soumise aux divers rayonnements ionisants décrits sur la figure 4.2. On voit clairement sur cette figure que le flux moyen d'ions lourds dans l'espace (d'une énergie comprise entre 1 et 10<sup>4</sup> MeV) est de l'ordre de 100 particules cm<sup>-2</sup>s<sup>-1</sup> dans le cas critique d'une éruption solaire. Pour des raisons évidentes, les irradiations simulant un vieillissement de plusieurs années doivent se faire dans des temps relativement courts, quelques journées tout au plus. Les flux instantanés nécessaires doivent donc être considérablement plus importants que ceux que l'on retrouve naturellement. Typiquement, la fluence (nombre de particules reçues par unité de surface) d'un dispositif dans l'espace pendant sa durée de vie (de l'ordre d'une dizaine d'année) est de l'ordre de 10<sup>11</sup> particules lourdes par cm<sup>2</sup>. Statistiquement, toute la surface d'un dispositif donné est atteinte par les particules (en incidence perpendiculaire) si la fluence est de l'ordre de 10<sup>13</sup> particules par cm<sup>2</sup>. Il est donc nécessaire d'atteindre des flux de l'ordre de 10<sup>7</sup> particules par cm<sup>2</sup> et par seconde pour atteindre la fluence voulue en un temps expérimental raisonnable avec des gammes de fluence allant de 10<sup>10</sup> à 10<sup>13</sup> particules

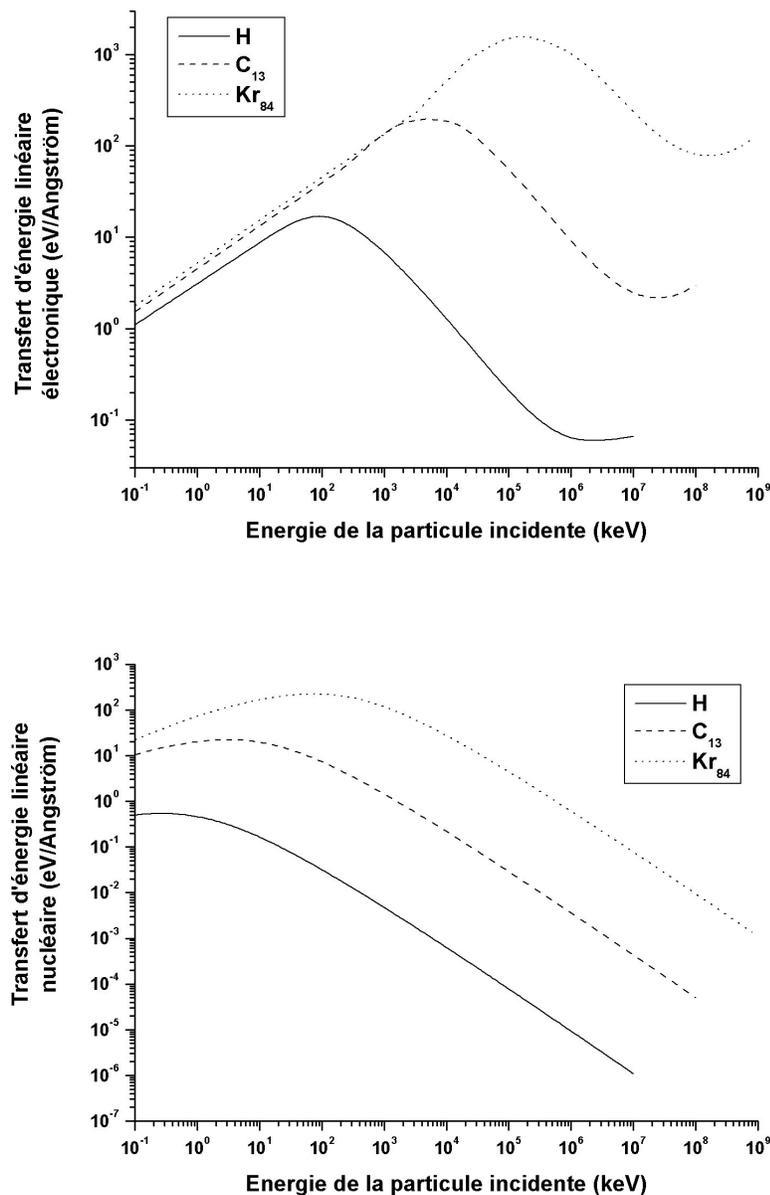
par  $\text{cm}^2$ . A noter que l'on retrouve des niveaux de fluence équivalents et même largement supérieurs dans l'industrie nucléaire ou dans les accélérateurs de particules.



**Figure 4.2.** Description des différentes composantes de l'environnement radiatif spatial. Variations des flux de particules en fonction de leur énergie [Sai-Th-98].

Pour déterminer l'énergie des particules incidentes, il est ici nécessaire d'introduire la notion de transfert d'énergie linéaire (TEL). Il s'agit de la quantité d'énergie déposée par unité de longueur de parcours par une particule rapide dans un matériau. Deux types de transferts d'énergie linéaires sont considérés : le TEL électronique ( $dE/dx$  elec.) qui est la quantité d'énergie dissipée au niveau du cortège électronique des atomes cibles, et le TEL nucléaire ( $dE/dx$  nucl.) qui est la quantité d'énergie dissipée au niveau du noyau atomique des atomes cibles. Ces valeurs donnent un aperçu qualitatif de l'impact provoqué (ionisation, phonons, déformations...) par une particule dans le matériau considéré. Les figures 4.3 (a) et (b) réalisées à l'aide du logiciel de calcul TRIM [Zie-TRIM] montrent qu'en fonction de l'énergie et de la nature de la particule incidente, les TEL électronique et nucléaire sont différents. Pour

une particule légère (proton et  $C_{13}$ ), le TEL nucléaire est négligeable vis à vis du TEL électronique, surtout pour une particule ayant une énergie cinétique au-delà de  $1\text{ MeV}$ . Pour une particule lourde ( $Kr_{84}$  ici), le TEL nucléaire est plus important que précédemment étant donné la taille et la masse du noyau de la particule, mais le TEL électronique reste prépondérant pour des énergies au-delà de  $10\text{ MeV}$ . En règle générale, le TEL électronique, à l'origine des traces latentes, est prépondérant aux hautes énergies tandis que le TEL nucléaire, à l'origine des déplacements atomiques, est prépondérant aux basses énergies.



**Figure 4.3.** (a) Transfert d'énergie linéaire électronique ( $dE/dx$  elec.) dans l' $Al_2O_3$  pour trois particules incidentes (proton,  $C_{13}$  et  $Kr_{84}$ ) avec une énergie comprise entre  $10^{-4}$  et  $10^6\text{ MeV}$ . (b) Transfert d'énergie linéaire nucléaire ( $dE/dx$  nucl.) dans l' $Al_2O_3$  pour trois particules incidentes (proton,  $C_{13}$  et  $Kr_{84}$ ) avec une énergie comprise entre  $10^{-4}$  et  $10^6\text{ MeV}$  [Zie-TRIM].

## 4.2 Détails expérimentaux

### 4.2.1 Introduction

Les travaux d'expositions de JTM aux rayonnements ionisants par des ions lourds rapides ont été menés en plusieurs campagnes au GANIL (Grand Accélérateur National d'Ions Lourds) de Caen en collaboration avec le CIRIL (Centre Interdisciplinaire de Recherche Ions Lasers). Les particules utilisées ont été des ions lourds fortement chargés, d'une énergie typique de  $10 \text{ MeV}$  par nucléon, de charge positive allant de  $+4$  à  $+31$  pour des espèces allant du  $\text{C}_{13}$  au  $\text{Kr}_{84}$  respectivement. Les flux vont de  $10^6$  à  $10^9 \text{ ions.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  et les fluences de  $10^9$  à  $10^{13} \text{ ions.cm}^{-2}$ . Des faisceaux de  $\text{C}_{13}$  et  $\text{Kr}_{84}$  présenteront alors des particules ayant une énergie cinétique de l'ordre de  $130 \text{ MeV}$  et  $840 \text{ MeV}$  respectivement. Les simulations effectuées à l'aide du logiciel libre TRIM [Zie-TRIM] ont montré que les particules que nous utiliserons ne s'implanteront pas dans une JTM car leur énergie est bien trop grande pour qu'elles puissent être stoppées au sein de la JTM. Ces particules parcourront plusieurs microns dans la structure avant d'être stoppées dans le substrat silicium de nos JTM. Les résultats des expériences ne mettront à jour que les dégâts sur une JTM provoqués par le passage d'une particule et non par son implantation directe dans la structure magnétorésistive. En première approximation, compte tenu de la faible épaisseur de la structure, on considérera que l'énergie des particules est constante dans la JTM. Au regard des faisceaux de particules que nous sommes amenés à utiliser et des figures 4.3 (a) et (b), on peut considérer que l'énergie dissipée dans l' $\text{Al}_2\text{O}_3$  est globalement due au TEL électronique, ce qui est également le cas pour la majorité des matériaux (Co, CoFe, IrMn, FeMn, NiFe...) que nous serions appelés à irradier.

D'une manière générale, l'irradiation peut se mener de deux façons, la première étant l'irradiation en aveugle et la seconde l'irradiation avec tests *in situ*. L'irradiation en aveugle consiste à placer sous faisceau un échantillon, que l'on a préalablement testé, de le soumettre à une fluence donnée de particules (ou de rayonnement) et de le tester à nouveau avec le même protocole expérimental afin d'observer les effets éventuels provoqués par l'irradiation sur cet échantillon. C'est l'irradiation en aveugle qui sera utilisée pour étudier des échantillons en pleine tranche (non lithographiés) par exemple. L'irradiation en aveugle a pour avantages sa simplicité et la possibilité d'irradier simultanément un grand nombre

d'échantillons, mais le gros inconvénient de cette méthode est qu'elle ne fournit qu'un point de mesure pour un échantillon à une fluence donnée et ne prend pas en compte les effets dynamiques. Le moyen de pallier ce problème est de faire toute une série de tests *in situ* sur un échantillon donné au fur et à mesure que l'on augmente la fluence. Pour ce faire, nous avons réalisé un banc expérimental compatible avec le bâti où seront placés les échantillons à irradier, banc qui doit également nous permettre de faire des tests électriques sur des JTM pendant l'irradiation.

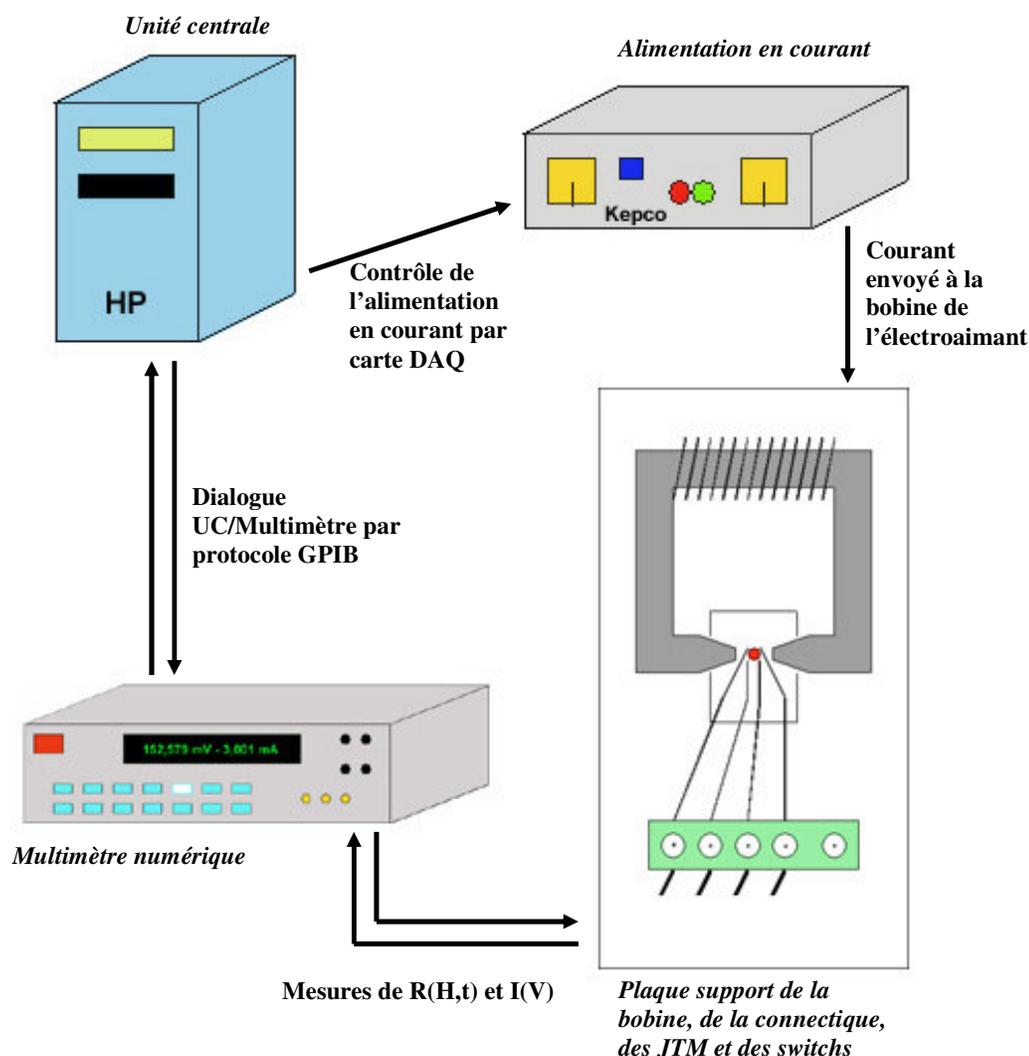
#### 4.2.2 Banc de mesures expérimentales

L'objectif est de mesurer la magnétorésistance des JTM et de caractériser la réponse courant/tension en fonction de la fluence et du flux. Pour ce faire, il doit être possible en temps réel d'appliquer un champ magnétique à l'échantillon et de mesurer sa réponse électrique. Le banc de mesure réalisé est constitué de deux parties distinctes. La première partie est dans le bâti d'irradiation, et inclut le support des échantillons avec la connectique associée et l'électroaimant nous permettant d'appliquer le champ magnétique. La seconde partie est à l'extérieur dans une pièce connexe et comporte l'électronique associée à savoir une alimentation en courant pour l'électroaimant, un multimètre numérique de précision et une unité centrale entièrement équipée pour contrôler les différents éléments tout en stockant en temps réels les données collectées. La figure 4.4 donne un aperçu schématique du banc de mesures.

Dans le détail :

L'unité centrale fonctionne sous *Windows* et l'application associée aux mesures tourne sur le logiciel *LabView*. Le logiciel contrôle une carte d'acquisition *National Instruments (NI)* qui pilote analogiquement via une tension appliquée l'alimentation en courant de la bobine. Une carte *GPIB (NI)* également contrôlée via *LabView* pilote un multimètre *Keithley Sourcemeter 2400* chargé d'effectuer ses mesures électriques sur les JTM et de renvoyer celles-ci à l'unité centrale. Le logiciel synchronise les opérations. L'alimentation est une *Kepeco* bipolaire 200 W (20 V – 10 A) ; elle envoie un courant très stable dans la bobine de l'électroaimant. Le multimètre, entièrement pilotable par protocole *GPIB*, permet de mesurer sous quatre pointes et en temps réel la résistance, le courant et la tension aux bornes des JTM. Il est entièrement paramétrable depuis l'unité centrale et le logiciel ou manuellement en façade. Il permet

également d'avoir des valeurs seuil paramétrables de courant et de tension afin d'éviter tout claquage éventuel des JTM pendant les mesures. La vitesse d'intégration pendant les mesures est aussi paramétrable et permet de réduire le bruit éventuel. Enfin, ce multimètre de précision permet d'envoyer et de mesurer des courants et des tensions très faibles de manière rigoureuse, de l'ordre du  $nA$  et du  $\mu V$  respectivement, et de mesurer des JTM ayant une résistance importante sans appliquer de tensions trop fortes.



**Figure 4.4.** Schéma représentant succinctement le banc de mesures *in situ* de la magnétorésistance et de la caractéristique  $I(V)$  de jonctions tunnel magnétiques sous irradiations. Quatre éléments composent le banc : une unité centrale coordonne le champ appliqué aux échantillons grâce à une alimentation en courant pour la bobine de l'électroaimant avec un multimètre connecté aux JTM et chargé de mesurer  $R(H,t)$  ou  $I(V)$ . Le multimètre effectue ses mesures en temps réel par rapport au champ appliqué et renvoie les données mesurées à l'unité centrale également chargée de les stocker.

La plaque support réunit l'électroaimant, la connectique permettant de « brancher » les JTM via des câbles coaxiaux (ainsi que la bobine) et une série de switches chargés d'ouvrir ou de court-circuiter les JTM. L'électroaimant est composé d'un fer très perméable ( $\mu_R \sim 1000$ ) et d'une rémanence quasi nulle et d'une bobine en fil de cuivre isolé (0,85 mm de diamètre) d'une résistance totale de 1  $\Omega$ . Ce dispositif permet d'obtenir dans l'entrefer un champ homogène dans le plan de 1600 Oe pour 10 A. Une plaque en aluminium de forte épaisseur (> 3 mm) est fixée sur l'électroaimant afin de le protéger des rayonnements ionisants. L'entrefer et les échantillons qui y sont disposés sont quant à eux exposés aux rayonnements. La connectique relie les échantillons microsoudés à une série de switches permettant de court-circuiter les JTM ou alors d'ouvrir leurs circuits sur le multimètre. L'utilisation de switches est ici impérative car les JTM sont extrêmement sensibles aux décharges électrostatiques (ESD) tout transitoire électrique pouvant endommager irrémédiablement les jonctions. Il est donc nécessaire de court-circuiter absolument tout le dispositif avant de manipuler les JTM (en particulier lorsqu'on les connecte électriquement) et lorsqu'on modifie les paramètres électriques de la mesure à mener ( $J$ ,  $V...$ ). Ces switches sont au nombre de quatre (chaque échantillon comporte quatre JTM mesurables) et en position ouverte, ils relient les bornes des JTM au multimètre.

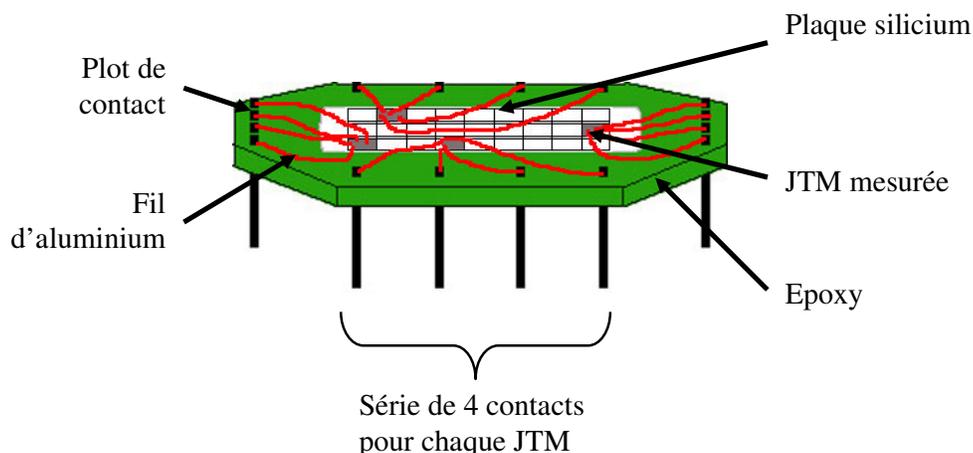
### 4.2.3 Nature des échantillons

#### 4.2.3.1 Jonctions tunnel magnétiques lithographiées

Les JTM lithographiées amenées à être irradiées et mesurées *in situ* sont disposées sur un support spécifique. Chaque support permet de mesurer en quatre points quatre jonctions dont deux dans le même temps. Le support est schématisé sur la figure 4.5 .

La plaque silicium est une découpe de wafer d'environ 5 x 5 mm<sup>2</sup> et comporte plusieurs dizaines de JTM. Le support, qui se place dans l'entrefer de l'électroaimant, permet d'avoir un champ appliqué sur les JTM parfaitement dans le plan. Les JTM connectées sont microsoudées par « soudure à étai » (wedge-bonding) à l'aide de fils d'aluminium. La microsoudure par wedge-bonding, contrairement à la « soudure par bille » (ball-bonding), procure très peu de dissipation de chaleur ou de dissipation de charges électriques qui pourraient endommager dramatiquement les JTM.

Deux types de JTM lithographiées ont été utilisés durant les expériences d'irradiation. Toutes les JTM testées quel que soit le type ont des dimensions de  $10 \times 10$  ou  $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ .



**Figure 4.5.** Support spécifique de mesures *in situ* en quatre pointes des JTM sous irradiation.

Le premier type de JTM, que nous labelliserons JTM-1, est fourni par l'Institut de Physique et de Chimie des Matériaux (IPCMS) de Strasbourg et soudé par Siemens à Erlangen (Allemagne), et possède la structure suivante : **Si / Cr(20) / Fe(30) / Cu(300) / CoFe(15) / Ru(7) / CoFe(25) / Al(12)O<sub>x</sub>(35s) / CoFe(10) / Fe(60) / Cu(50) / Cr(30)** avec les épaisseurs annotées en Å. Ce premier type de JTM possède une couche de référence formée d'un antiferromagnétique artificiel (AAF) sans l'adjonction d'un antiferromagnétique naturel. La barrière d'Al<sub>2</sub>O<sub>x</sub> a une épaisseur de 12 Å et a été oxydée par oxydation plasma. Ces jonctions ont un  $R \times A$  (résistance par la surface) d'environ  $6 \text{ k}\Omega \cdot \mu\text{m}^2$ , et leur TMR à température ambiante se situe entre 20 et 22 %.

Le second type de JTM, labellisé JTM-2, est fourni par la société Veeco et possède la structure suivante : **Si / SiO<sub>x</sub> / Ta(100) / TaN (100) / PtMn(275) / CoFe(12) / Ru (18) / CoFe(18) / Al(10)O<sub>x</sub> / CoFe(10) / NiFe(50) / Ta(100)** avec les épaisseurs annotées en Å. Ce type de JTM possède un AAF lui-même piégé par l'adjonction d'une couche antiferromagnétique de PtMn. Ces jonctions JTM-2, malgré une épaisseur de barrière plus fine, exhibent un  $R \times A$  de quelques  $\text{M}\Omega \cdot \mu\text{m}^2$  et une TMR moyenne d'environ 30 % à température ambiante.

Ces jonctions JTM-1 et JTM-2 présentent une tension de claquage (à partir de laquelle la barrière est irrémédiablement détruite) relativement basse, de l'ordre de 600 mV. C'est

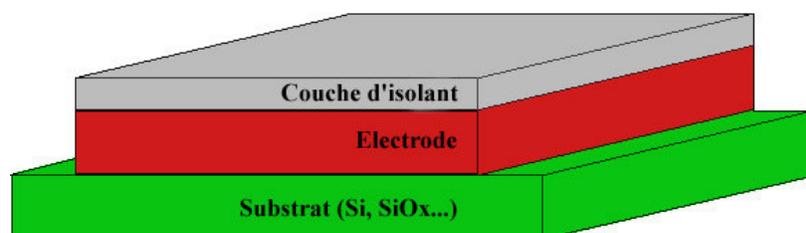
pourquoi la tension appliquée aux bornes des JTM pendant les mesures ne dépassera pas 200 mV par précaution. De plus, durant les mesures de  $R(H)$ , le champ magnétique appliqué ne dépassera pas 150 Oe pour éviter tout retournement, même partiel, de la couche piégée des jonctions JTM-1. Nous nous limitons lors des mesures de TMR aux conditions de fonctionnement nominales qui ne nécessitent que le retournement de la couche libre, le champ de retournement associé se trouvant vers 60 Oe et 15 Oe respectivement pour les jonctions JTM-1 et JTM-2.

#### 4.2.3.2 Miroirs de spin

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 2, les miroirs de spin [DaC-J3M-02] nous permettent de connaître d'une façon indirecte l'état d'oxydation et la qualité d'une couche d' $\text{AlO}_x$  et de l'interface. La barrière tunnel est le point critique d'une JTM et l'irradiation en aveugle de structures telles que les miroirs de spin est donc particulièrement intéressante. Plusieurs miroirs de spin dont la structure est **Ta(30) / CoFe(25) / Ru(8) / CoFe(15) / Cu(24) / CoFe(10) /  $\text{AlO}_x$  (oxydation plasma de 150 sec.)** ont donc été irradiés avec des ions  $\text{Kr}_{84}^{31+}$  d'une énergie de 756 MeV.

#### 4.2.3.3 Demi-jonctions tunnel en pleine tranche

Une demi-jonction tunnel se présente comme une structure où la barrière tunnel déposée sur la première électrode est à nu, c'est à dire non recouverte par la deuxième électrode magnétique (Figure 4.6).



**Figure 4.6.** Structure d'une demi-jonction consistant en un empilement d'une barrière isolante sur une électrode simple ou complexe.

Ces demi-jonctions peuvent être caractérisées par cartographie de courant tunnel à l'aide de la microscopie à champ proche, technique de mesure présentée dans le chapitre 2. Elles

permettent de qualifier l'état de surface de la zone de travail, en particulier la conductance électrique de la barrière tunnel. Deux demi-jonctions avec la structure **Si / Co(50) / Al(10)O<sub>x</sub>** (oxydation naturelle à 100 mbar d'O<sub>2</sub> pendant 90 sec.) ont été étudiées.

## 4.3 Résultats expérimentaux

### 4.3.1 Jonctions lithographiées

Les deux types de jonctions lithographiées décrites précédemment ont été irradiées par deux types d'ions : légers ( $C_{13}^{5+}$ ), et lourds ( $Ni_{58}^{24+}$ ). Ces ions  $C_{13}^{5+}$  et  $Ni_{58}^{24+}$  possèdent une énergie cinétique de  $118 MeV$  et  $522 MeV$  respectivement. Les mesures brutes de la résistance  $R(H,f)$  des JTM en fonction du champ magnétique appliqué pour diverses fluences sont résumées sur les figures 4.7 et 4.8. La nature des ions utilisés ainsi que la nature des jonctions mesurées sont spécifiées sur les figures.

Sur la figure 4.7 ne sont reportées que les courbes  $R(H,f)$  obtenues avec le faisceau de  $C_{13}^{5+}$ , c'est à dire l'ion le plus léger dont nous disposons. On s'aperçoit qu'il y a de légères modifications de l'hystérésis  $R(H)$  pour diverses fluences de  $C_{13}^{5+}$ , quel que soit le type de jonction. Sur la figure 4.8 sont reportés les courbes  $R(H,f)$  obtenus avec des faisceaux de  $Ni_{58}^{24+}$ .

En regardant rapidement toutes les courbes obtenues, nous constatons que les JTM conservent après irradiation complète (fluence  $\geq 10^{13} ions.cm^{-2}$ ) la plupart de leurs propriétés magnétorésistives (renversement de l'aimantation de la couche douce sous champ, TMR, résistance intrinsèque...) malgré les quelques modifications de celles-ci que nous allons détailler.

#### 4.3.1.1 Magnétorésistance tunnel des jonctions irradiées

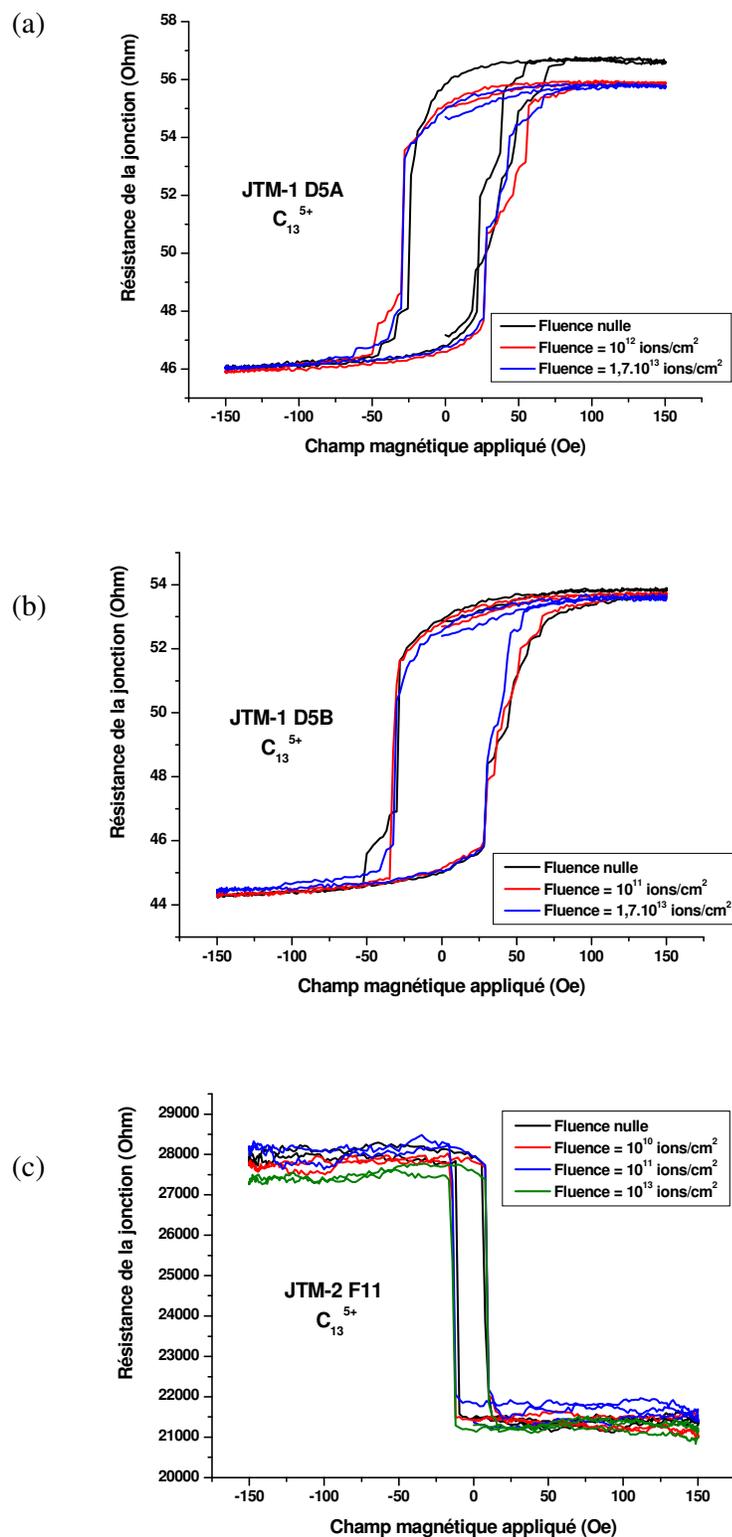
Toutes les jonctions irradiées montrent une décroissance irréversible de la TMR avec l'augmentation de la fluence. Le taux de décroissance de la TMR dépend de plus de la nature de l'ion utilisé ainsi que du type de JTM. Le tableau 4.1 résume les principales caractéristiques des JTM irradiées.

Il convient de noter que les fluences atteintes sont très importantes et, alors qu'à de tels niveaux d'irradiation les mémoires classiques auraient été irrémédiablement détruites, l'effet global sur la fonctionnalité des JTM est relativement faible. Il nous est donc possible de dire

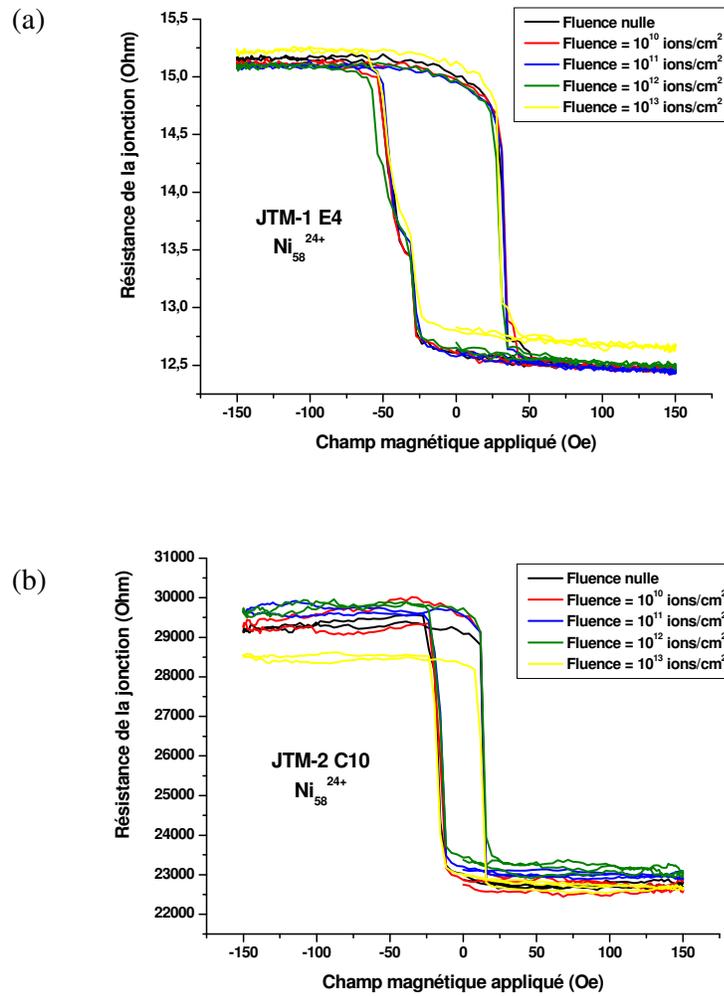
que les jonctions tunnel magnétiques sont résistantes aux rayonnements ionisants dans des conditions réelles d'utilisation.

JTM	Taille A ( $\mu\text{m}^2$ )	Ions	Se dans l' $\text{Al}_2\text{O}_3$ ( $\text{keV}/\mu\text{m}$ )	Max. fluence (ions/ $\text{cm}^2$ )	TMR initiale (%)	TMR finale (%)	Variation de TMR (%)
JTM-1 D5A	100	$\text{C}_{13}^{5+}$	$4,819.10^2$	$1,70.10^{13}$	22,4	21	-6,7
JTM-1 D5B	400	$\text{C}_{13}^{5+}$	$4,819.10^2$	$1,70.10^{13}$	21,6	20,3	-6
JTM-1 E4	400	$\text{Ni}_{58}^{24+}$	$7,708.10^2$	$1,00.10^{13}$	21,6	20,2	-6,5
JTM-2 F11	100	$\text{C}_{13}^{5+}$	$4,819.10^2$	$1,00.10^{13}$	31,1	28,6	-8
JTM-2 C10	100	$\text{Ni}_{58}^{24+}$	$7,708.10^2$	$1,00.10^{13}$	29,6	25,4	-14,2

**Tableau 4.1.** Principales caractéristiques des jonctions tunnel magnétiques irradiées, avec la dimension surfacique  $A$ , la nature des ions utilisés, l'énergie de transfert linéaire électronique  $Se$  des ions dans l' $\text{Al}_2\text{O}_3$ , la valeur de fluence totale atteinte, la TMR avant et après irradiation totale ainsi que le taux de variation de la TMR.



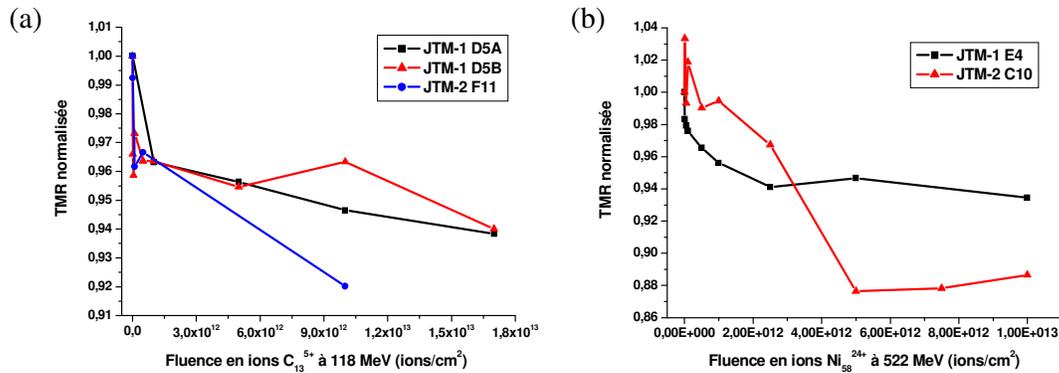
**Figure 4.7.** Courbes  $R(H,f)$  des jonctions JTM-1 D5A (a), JTM-1 D5B (b) et JTM-2 F11 (c) irradiées sous faisceaux de  $C_{13}^{5+}$ . Le sens du champ magnétique appliqué par rapport à la couche piégée est arbitraire.



**Figure 4.8.** Courbes  $R(H,f)$  des jonctions JTM-1 E4 (a) et JTM-2 C10 (b) irradiées sous faisceaux de  $\text{Ni}_{58}^{24+}$ . Le sens du champ magnétique appliqué par rapport à la couche piégée est arbitraire.

Le comportement des JTM de type 1 et 2 est sensiblement différent. Si l'on compare les mesures de magnétorésistance en fonction de la fluence pour les JTM irradiés avec les mêmes ions (figure 4.9), on constate que la TMR des jonctions de type 1 est dégradée de manière quasi identique pour les ions légers et lourds, alors que la TMR des jonctions de type 2 est vraisemblablement plus sensible aux ions lourds. L'information intéressante de la figure 4.9, que ce soit pour les courbes de (a) et (b), est que la TMR des JTM chute rapidement au début des irradiations jusqu'à une fluence de l'ordre de  $10^{12}$  ions.cm<sup>-2</sup>. Pour des fluences supérieures, la chute se poursuit mais avec une pente beaucoup plus douce. Cette observation est surtout très nette pour les JTM de type 1. Ce phénomène peut s'expliquer par un processus de recouvrement des traces. Des expériences d'irradiation par des ions lourds rapides sur des

échantillons massifs métalliques et cristallins ont démontré que la fraction de matériau amorphisé par le passage des ions en fonction de la fluence sature bien avant l'amorphisation totale de l'échantillon [Ghi-Th-92]. En supposant que les régions amorphes sont associées aux trajectoires des ions, cela s'explique par l'existence d'un volume d'exclusion autour de chaque trace qui définit une distance minimale entre traces premières voisines et empêche le recouvrement entre deux traces différentes.



**Figure 4.9.** (a) TMR normalisée des JTM irradiées au  $C_{13}^{5+}$  en fonction de la fluence. (b) TMR normalisée des JTM irradiées au  $Ni_{58}^{24+}$  en fonction de la fluence. Les barres d'erreur ne sont pas apparentes car négligeables.

Dans sa thèse, Massimo Ghidini [Ghi-Th-02] traduit physiquement cette hypothèse en supposant qu'un ion incident a deux effets sur la matrice cristalline du matériau : la création d'une trace amorphe et la recristallisation de toute trace préexistante dans le volume d'exclusion. Dans notre cas, le problème est sensiblement différent car les matériaux composant nos JTM en particulier la barrière d' $Al_2O_3$  sont déjà des amorphes. Le problème peut alors se réduire à ceci : lorsque la fluence devient importante, une grande quantité d'ions incidents recouvrent totalement ou partiellement des traces déjà existantes et leurs effets sur les propriétés structurales des JTM se trouvent atténués. Il est donc nécessaire d'introduire ici la notion de fluence effective  $F_{eff}$  qui est le nombre réel de traces par unité de surface.

Le nombre de traces va suivre une distribution de Poisson, et la cinétique de création des traces correspond à l'équation différentielle suivante :

$$\frac{dP_a(\Phi)}{d\Phi} = \sigma_a [1 - P_a(\Phi)] \quad (4.1)$$

avec  $\Phi$  étant la fluence en ions incidents,  $P_a(\Phi)$  étant la fraction de surface correspondant aux traces et  $\sigma_a$  la surface de la trace (section efficace de l'ion incident). Cette équation admet la solution suivante :

$$P_a(\Phi) = 1 - e^{-\sigma_a \Phi} \quad (4.2)$$

Etant donné que  $P_a(\Phi)$  n'a pas de dimension et que  $\Phi$  est la quantité d'ions incidents par  $cm^2$ , pour connaître le nombre de traces formées par  $cm^2$  en fonction de  $\Phi$  c'est à dire  $F_{eff}(\Phi)$ , il suffit de diviser la fraction de surface par la section efficace :

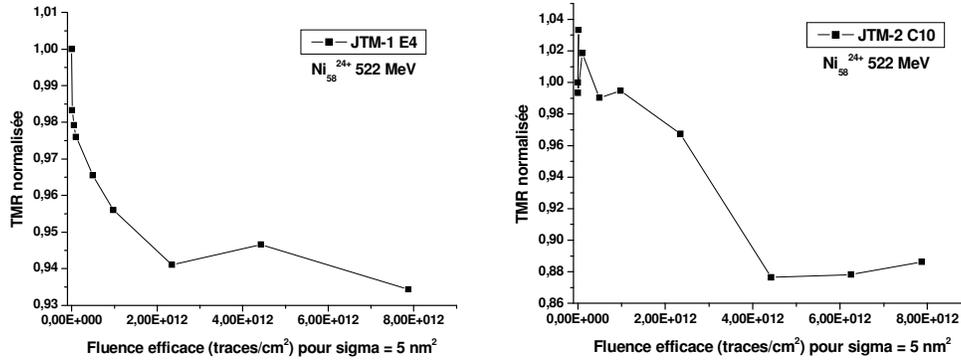
$$F_{eff}(\Phi) = \frac{P_a(\Phi)}{\sigma_a} = \frac{1 - e^{-\sigma_a \Phi}}{\sigma_a} \quad (4.3)$$

La section efficace  $\sigma_a$ , c'est à dire la section de la trace, est le seul paramètre indéfini dans cette équation. Dans sa thèse, Marc Boccanfuso [Boc-Th-01] détermine un grand nombre de valeurs de sections efficaces obtenues sur des échantillons divers dont des oxydes métalliques ( $SiO_2$ ,  $ZnO_2$ ,  $Al_2O_3$ ...) irradiés avec des faisceaux d'ions lourds rapides. Les faisceaux utilisés sont similaires aux nôtres car ils ont été produit au GANIL sur la même ligne SME avec des énergies de l'ordre de  $10 \text{ MeV/A}$  et les expériences ont été menées avec des fluences de l'ordre de  $10^{13} \text{ ions.cm}^{-2}$ . Les résultats obtenus ont montré que la section de la trace dans l' $Al_2O_3$  d'un ion tel que le Ni à  $550 \text{ MeV}$  (d'un TEL de  $4 \text{ keV/nm}$ ) est comprise entre 2 et  $5 \text{ nm}^2$  [Boc-Th-01][Tou-CP-04].

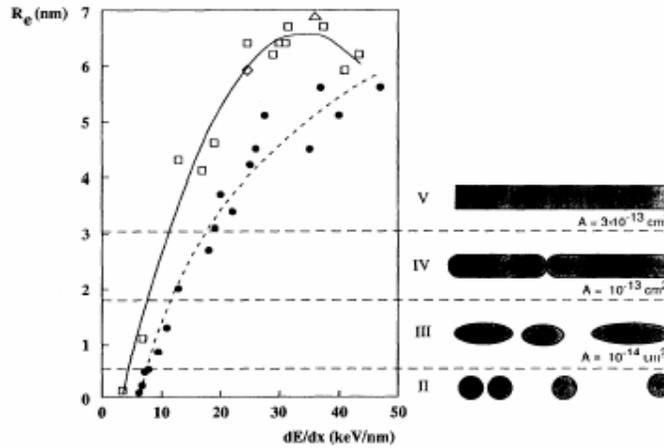
Nous allons donc intégrer une valeur maximale correspondante pour  $\sigma_a$  de  $5 \text{ nm}^2$  pour l'ion  $Ni_{58}^{24+}$  à  $522 \text{ MeV}$  dans l' $Al_2O_3$  dans la représentation graphique de la TMR en fonction de la fluence efficace  $F_{eff}(\Phi)$  pour les jonctions JTM-1 E4 et JTM-2 C10 (figure 4.10).

On voit que le comportement de la TMR en fonction de la fluence efficace, dans le cas où l'on prend la valeur de  $\sigma_a$  maximale pour cet ion dans l' $Al_2O_3$ , n'est pas linéaire et ce pour les

deux JTM. Ce résultat est surprenant étant donné que le comportement de la TMR en fonction de  $F_{eff}(\Phi)$  devrait être intrinsèquement linéaire.



**Figure 4.10.** (a) TMR normalisée de la JTM-1 E4 irradiée au  $Ni_{58}^{24+}$  à 522 MeV en fonction de la fluence efficace  $F_{eff}(\Phi)$  pour une section efficace d'endommagement dans l' $Al_2O_3$  de  $5\text{ nm}^2$ . (b) TMR normalisée de la JTM-1 C10 irradiée au  $Ni_{58}^{24+}$  à 522 MeV en fonction de la fluence efficace  $F_{eff}(\Phi)$  pour une section efficace d'endommagement dans l' $Al_2O_3$  de  $5\text{ nm}^2$ .



**Figure 4.11.** Rayon effectif  $R_e$  en fonction de  $dE/dx$  et la morphologie des endommagements correspondante. Les points noirs représentent les mesures pour des ions dans le régime des hautes vitesses, les autres points représentant les mesures pour des ions dans le régime des basses vitesses. Gamme notée II : pour  $R_e < 0,56\text{ nm}$ ,  $A(\sigma_a) < 10^{-14}\text{ cm}^2$ , les dommages dus aux interactions électroniques dominent largement les dommages dus aux interactions nucléaires. Les défauts correspondants sont sphériques et on un diamètre d'environ  $3\text{ nm}$ . Gamme notée III : pour  $0,56 < R_e < 1,8\text{ nm}$ ,  $10^{-14} < A < 10^{-13}\text{ cm}^2$ , il apparaît des endommagements de forme cylindriques et de  $3\text{ nm}$  de diamètre. Gamme notée IV : pour  $1,8 < R_e < 3,1\text{ nm}$ ,  $10^{-13} < A < 3 \cdot 10^{-13}\text{ cm}^2$ , les endommagements sont cylindriques et la gravure chimique tout au long de la trace latente devient efficace. Gamme notée V : pour  $R_e > 3,1\text{ nm}$ ,  $A > 3 \cdot 10^{-13}\text{ cm}^2$ , les endommagements sont de longs cylindres de matériau amorphe et ils sont homogènes tout au long de ce cylindre [Mef-PRB-93].

De plus, des études portées sur l'endommagement d'oxydes par des ions lourds rapides [Mef-PRB-93][Boc-Th-01] ont montré que les traces résultantes ont une morphologie particulière selon le pouvoir d'arrêt électronique (TEL)  $dE/dx$  de l'ion incident dans la matière incriminée. La figure 4.11 montre différentes morphologies des « endommagements » induits dans un oxyde (YIG, SiO<sub>2</sub>...) par un ion, et ce en fonction du rayon effectif d'endommagement

$$R_{eff} = \sqrt{\frac{\sigma_a}{\pi}} \text{ et du TEL } dE/dx.$$

Les ions que nous avons utilisés, lesquels sont rapides et se rapportent à la courbe correspondant aux points noirs, se situent dans les gammes II et III. Il est clair à la vue des résultats présentés sur la figure 4.11 que l'endommagement tout au long de la trace des ions traversant les JTM n'est pas homogène : pour un ion incident donné, certaines zones dans l'épaisseur des couches seront affectées sur le trajet de l'ion tandis que d'autres zones sur ce même trajet ne le seront pas. Il est alors très difficile de considérer que chacune des traces affectera la barrière tunnel des JTM. En conséquence, la section efficace moyenne des ions incidents doit être inférieure aux valeurs que nous avons précédemment prises en compte. La section efficace moyenne a une valeur d'environ  $10^{-14} \text{ cm}^2$ . Il en découle que la baisse de TMR des JTM irradiées est un phénomène qui n'est pas linéaire.

Les effets du bombardement par des ions lourds rapides sur la TMR des JTM ne sont visiblement pas reliés directement au nombre de traces créées par les ions. Les phénomènes mis en jeu lors des irradiations ne sont donc pas entièrement levés par une simple étude de la TMR des JTM en fonction de la fluence et doivent être plus complexes qu'un simple endommagement de la barrière tunnel et des couches adjacentes le long du parcours des ions.

#### 4.3.1.2 Propriétés magnétiques des jonctions irradiées

Il est bien connu que les rotations partielles de la couche dure au sein de structures GMR entraînent une décroissance faible mais irréversible de la magnétorésistance [Soe-JAP-94][Lai-JAP-97], phénomène que l'on peut étendre a priori au cas des JTM. Les valeurs des champs de retournement des JTM en fonction de la fluence, estimées à partir des hystérésis des figures 4.7 et 4.8, ne nous montrent aucune évolution observable. En effet, les valeurs des champs de retournement fluctuent intrinsèquement de manière stochastique avec des variations comparables à celles du bruit des mesures. La coercivité de la couche douce, le

couplage de type peau d'orange des électrodes ou encore le champ d'échange de la couche dure ne semblent donc pas affectés par les irradiations. Il est vrai que les matériaux métalliques amorphes et cristallins sont connus pour être relativement insensibles aux irradiations par des ions lourds et rapides [Dun-REDS-93][Leg-MSF-92].

#### 4.3.1.3 Résistance électrique tunnel des jonctions irradiées

En plus des valeurs de TMR, il est intéressant d'étudier la résistance intrinsèque des jonctions en fonction de la fluence des différents ions. On entend par résistance intrinsèque la résistance minimale  $R_{min}$  de la jonction lorsque les aimantations de ses électrodes sont parallèles et réciproquement la résistance maximale  $R_{max}$  lorsque celles ci sont antiparallèles. Le tableau 4.2 résume les caractéristiques principales des résistances intrinsèques des jonctions irradiées.

On constate tout d'abord que le comportement des résistances minimales et maximales est différent pour chacune des jonctions irradiées. Malgré l'aspect bruité des résultats (les erreurs commises sur les valeurs numériques sont considérablement réduites par le nombre important de points de mesure, d'où de très petites barres d'erreur), on s'aperçoit que deux tendances ressortent de ces mesures : la résistance  $R_{min}$  a tendance à augmenter tandis que la résistance  $R_{max}$  diminue. Plus encore, on voit clairement que la différence  $R_{max} - R_{min}$  diminue pour toutes les JTM, ce qui est cohérent avec la baisse générale de la TMR remarquée précédemment. Les figures 4.12 (a), (b), et (c) ainsi que 4.13 (a) et (b) représentent les résistances minimales et maximales normalisées de chaque jonction en fonction de la fluence des ions  $C_{13}^{5+}$  et  $Ni_{58}^{24+}$  respectivement.

A partir du tableau 4.2 on peut noter que les jonctions de type 2, quel que soit le type d'ion utilisé ( $C_{13}^{5+}$  et  $Ni_{58}^{24+}$  en l'occurrence), sont plus sensibles aux irradiations.

La JTM-1 D5A (figure 4.12 (a)) irradiée avec des ions  $C_{13}^{5+}$  à 118 MeV présente une tendance très nette :  $R_{min}$  augmente régulièrement avec la fluence, tandis que  $R_{max}$  diminue dans le même temps. La différence  $R_{max} - R_{min}$  diminue d'autant, ce qui entraîne la diminution de TMR observée. L'augmentation et la diminution de  $R_{min}$  et  $R_{max}$  respectivement ne sont pas linéaires en fonction de la fluence efficace. Ce phénomène ne peut s'expliquer par une simple modification de la barrière tunnel uniquement. En effet, si la barrière tunnel et seulement elle

avait été affectée (pinholes, modifications topologiques etc.), les résistances  $R_{min}$  et  $R_{max}$  devraient suivre la même tendance, et ce n'est pas le cas. Sans pour autant écarter le fait d'avoir des modifications au sein de la barrière, il convient de proposer d'autres hypothèses.

L'altération des électrodes ferromagnétiques peut provoquer l'apparition de domaines magnétiques ou de zones de nucléation assimilables à des défauts qui entraînent des modifications des directions et des valeurs des aimantations. Les aimantations ne se trouvent plus entièrement parallèles ou antiparallèles dans la gamme de champ magnétique que nous utilisons (donc une augmentation en quelque sorte des champs de saturation) ce qui entraîne une augmentation de  $R_{min}$  et une diminution de  $R_{max}$  respectivement. Ceci correspond à certains travaux expérimentaux démontrant que les irradiations très poussées de matériaux magnétiques dégradent certaines caractéristiques comme la rémanence et la coercivité [Bro-JAP-84].

Il peut y avoir aussi un phénomène de mélange des espèces aux interfaces barrière/électrodes magnétiques, comme la migration des atomes d'oxygène dans les premières couches atomiques des électrodes adjacentes à la barrière. Ceci aurait pour effet de modifier la résistance intrinsèque de la barrière et des électrodes adjacentes ainsi que de dégrader la polarisation en spin des électrons.

Les effets de TMR qui conduisent aux valeurs de  $R_{min}$  et  $R_{max}$  sont très subtils et liés à la structure de bande aux interfaces : une modification de l'interface peut très bien changer la structure de bande différemment pour les électrons up et down, et donc affecter différemment  $R_{min}$  et  $R_{max}$ .

La JTM-1 D5B (figure 4.12 (b)) également irradiée avec des ions  $C_{13}^{5+}$  à  $118 MeV$  présente des caractéristiques générales de  $R_{min}$  et  $R_{max}$  en fonction de la fluence assez similaires avec toutefois quelques différences sensibles. Les valeurs normalisées de  $R_{min}$  et  $R_{max}$  de la jonction JTM-1 D5B atteintes pour des fluences importantes ( $1,6.10^{13} traces.cm^{-2}$ ) sont similaires à celles atteintes par la jonction JTM-1 D5A, qui est du même type et irradiée avec le même ion.

La jonction JTM-2 F11 (figure 4.12 (c)), irradiée avec des ions  $C_{13}^{5+}$  à  $118 MeV$ , présente des courbes de  $R_{min}$  et  $R_{max}$  en fonction de la fluence radicalement différentes par rapport aux courbes des deux jonctions JTM-1. Après une légère baisse au début des irradiations (faibles fluences),  $R_{min}$  remonte et semble se stabiliser autour de sa valeur de départ. La résistance

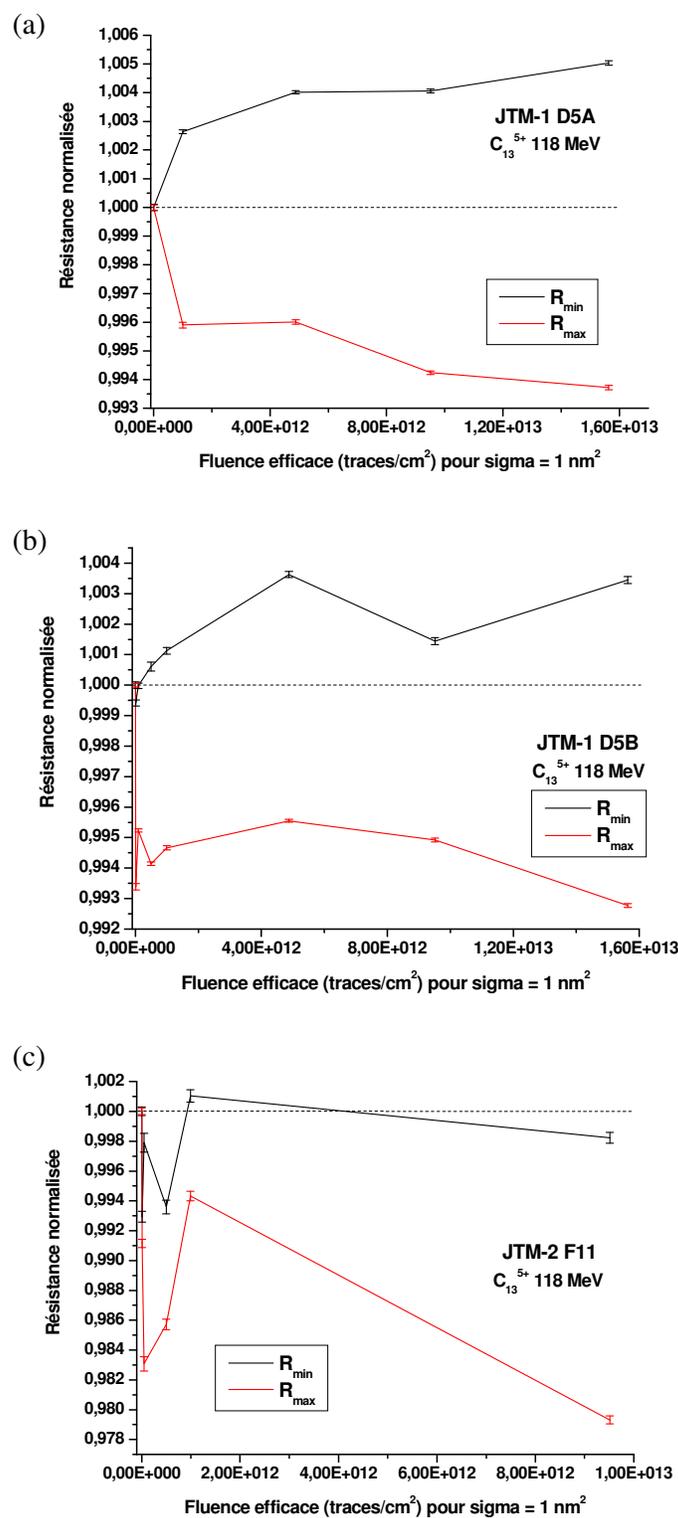
maximale  $R_{max}$  quant à elle décroît rapidement en fonction de la fluence, remonte par la suite (entre  $5.10^{11}$  et  $1.10^{12}$   $traces.cm^{-2}$ ) pour ensuite décroître aux fluences importantes.

JTM	$R_{min} \times A$ initiale ( $\Omega.\mu m^2$ )	$R_{min} \times A$ finale ( $\Omega.\mu m^2$ )	Variation $R_{min} \times A$ (%)	$R_{max} \times A$ initiale ( $\Omega.\mu m^2$ )	$R_{max} \times A$ finale ( $\Omega.\mu m^2$ )	Variation $R_{max} \times A$ (%)
JTM-1 D5A	4613	4585	0,5	5612	5576	-0,6
JTM-1 D5B	4435	4454	0,4	5394	5356	-0,7
JTM-1 E4	4984	5064	1,6	6060	6088	0,4
JTM-2 F11	$2,136.10^6$	$2,132.10^6$	-0,1	$2,800.10^6$	$2,745.10^6$	-2
JTM-2 C10	$2,265.10^6$	$2,270.10^6$	0,2	$2,925.10^6$	$2,842.10^6$	-3

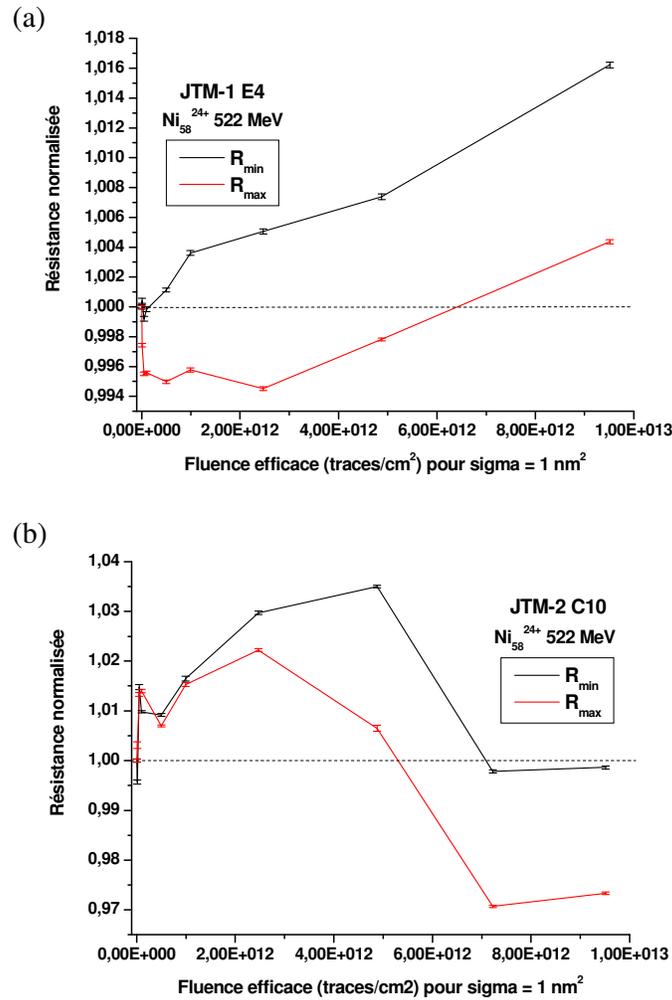
**Tableau 4.2.** Principales caractéristiques des rapports  $R \times A$  des résistances minimales  $R_{min}$  et maximales  $R_{max}$  (parallèles, antiparallèles) des JTM irradiées, avec la dimension surfacique  $A$  et la mesure des variations de  $R \times A$ .

La jonction JTM-2 F11 est du deuxième type, avec une barrière tunnel plus fine que celle du premier type ( $0,7$  nm pour le second type par rapport à  $1,2$  nm pour le premier). On peut supposer que la barrière tunnel présente sera plus vite affectée du fait de sa faible épaisseur. Les deux résistances  $R_{min}$  et  $R_{max}$  devraient alors présenter un profil similaire, ce qui n'est pas exactement le cas. Cependant, cette hypothèse n'est pas à écarter compte tenu du fait que plusieurs effets peuvent se cumuler. Les ions ont également pu provoquer une altération des électrodes (décrite précédemment) provoquant soit la chute de  $R_{max}$ , soit l'augmentation de  $R_{min}$  ou les deux effets cumulés. Ces deux phénomènes n'ayant pas les mêmes effets sur  $R_{min}$  et  $R_{max}$ , les courbes peuvent s'interpréter comme étant la résultante d'une compétition entre ces deux phénomènes.

La jonction JTM-1 E4 (figure 4.13 (a)) irradiée avec des ions  $Ni_{58}^{24+}$  à  $522$  MeV présente des courbes de  $R_{min}$  et  $R_{max}$  en fonction de la fluence similaires à celles obtenues pour les jonctions de type 1 irradiées à l'aide d'ions  $C_{13}^{5+}$  à  $118$  MeV, et ce pour des fluences en ions  $Ni_{58}^{24+}$  allant jusqu'à environ  $3.10^{12}$   $traces.cm^{-2}$ . Les taux de modifications des valeurs des résistances sont de plus équivalents. Pour des fluences au-delà, le comportement de  $R_{min}$  et  $R_{max}$  est différent. La valeur de  $R_{min}$  continue de croître, tandis que  $R_{max}$ , après une baisse significative aux faibles fluences, augmente à son tour et suit la pente  $dR/df$  de  $R_{min}$ .



**Figure 4.12.** Résistances minimale  $R_{min}$  et maximale  $R_{max}$  normalisées en fonction de la fluence efficace en ions  $C_{13}^{5+}$  pour les jonctions JTM-1 D5A (a), JTM-1 D5B (b) et JTM-2 F11 (c). La ligne horizontale en pointillés représente la valeur normalisée des résistances  $R_{min}$  et  $R_{max}$  à fluence nulle.



**Figure 4.13.** Résistances minimale  $R_{min}$  et maximale  $R_{max}$  normalisées en fonction de la fluence d'ions  $\text{Ni}_{58}^{24+}$  pour les jonctions JTM-1 E4 (a) et JTM-2 C10 (b). La ligne horizontale en pointillés représente la valeur normalisée des résistances  $R_{min}$  et  $R_{max}$  à fluence nulle.

A faibles fluences, les modifications sont très subtiles, ce qui conduit à des effets de TMR, alors qu'à fluence élevée, les effets sont plus importants et la dégradation de la barrière tunnel est suffisante pour « couvrir » tous les autres effets. Ce comportement peut être aussi lié aux interfaces.

La jonction JTM-2 C10 (figure 4.13 (b)) irradiée avec des ions  $\text{Ni}_{58}^{24+}$  à 522 MeV présente des courbes de  $R_{min}$  et  $R_{max}$  ayant un comportement quasi identique pour des fluences comprises entre 0 et  $2.10^{12}$  traces.cm<sup>-2</sup> : on observe alors une augmentation très nette de  $R_{min}$  et  $R_{max}$  aux faibles fluences ( $< 1.10^{11}$  traces.cm<sup>-2</sup>), suivit d'une décroissance commune et d'une augmentation. Pour des fluences supérieures à  $2.10^{12}$  traces.cm<sup>-2</sup>,  $R_{min}$  et  $R_{max}$  décroissent :

$R_{min}$  atteint quasiment sa valeur de départ tandis que  $R_{max}$  accuse une baisse significative. On peut noter que le résultat final est similaire à celui obtenu avec la jonction JTM-2 F11 qui est du même type. Ces résultats sont intéressants car il s'agit d'une jonction de type 2 avec une barrière tunnel fine donc a priori plus fragile que celle des jonctions de type 1, et que les ions utilisés ici sont plus lourds et énergétiques que ceux utilisés pour la jonction JTM-2 F11. Il semblerait, à la vue de ce résultat, qu'une barrière fine serait beaucoup plus sensible aux ions lourds et rapides qu'une barrière plus épaisse.

Ces résultats permettent de tirer quelques informations :

- les jonctions de type 2 sont plus fragiles que les jonctions de type 1, correspondant de ce fait à la différence d'épaisseur notable de la barrière entre les deux types de jonctions ;
- les ions lourds ( $Ni_{58}^{24+}$ ) ont un effet plus important sur les résistances (et sur la barrière tunnel) que les ions légers ( $C_{13}^{5+}$ ) ;
- deux effets entrent en compétition selon la fluence : une modification du transport polarisé en spin ( $R_{min}$  augmente alors que  $R_{max}$  diminue) et une modification de la barrière tunnel ( $R_{min}$  et  $R_{max}$  peuvent aussi bien augmenter que diminuer indépendamment).

#### 4.3.1.4 Caractéristique $I(V)$ d'une jonction irradiée

Afin de mieux cerner ce qui se passe au niveau de la barrière tunnel d'une JTM irradiée, il est intéressant d'étudier la caractéristique  $I(V)$  en fonction de la fluence. Nous avons vu dans le premier chapitre que la densité du courant tunnel à travers une fine couche d'isolant est décrite par la théorie de Simmons [Sim-JAP-63]. Pour les tensions intermédiaires (c'est à dire  $V < \varphi_0/e$ ), nous utilisons la formulation suivante (équation 1.6) :

$$J = \frac{e}{2\pi\hbar d^2} \left\{ \left( \varphi_0 - \frac{eV}{2} \right) \cdot \exp \left[ \frac{-4\pi d}{h} \sqrt{2m} \cdot \sqrt{\left( \varphi_0 - \frac{eV}{2} \right)} \right] - \left( \varphi_0 + \frac{eV}{2} \right) \cdot \exp \left[ \frac{-4\pi d}{h} \sqrt{2m} \cdot \sqrt{\left( \varphi_0 + \frac{eV}{2} \right)} \right] \right\} \quad (4.4)$$

avec  $V$  la tension appliquée,  $d$  l'épaisseur de la barrière tunnel,  $\varphi_0$  la valeur moyenne de la hauteur de potentiel de la barrière,  $e$  et  $m$  respectivement la charge et la masse d'un électron et  $h$  la constante de Planck.

La mesure de la caractéristique  $I(V)$  d'une jonction en fonction de la fluence (efficace) va nous permettre d'évaluer les éventuelles évolutions des grandeurs physiques que sont l'épaisseur  $d$  et la hauteur moyenne de potentiel de la barrière  $\varphi_0$ . Pour cela, il suffit d'ajuster les données expérimentales avec cette équation 4.4 en prenant pour paramètres libres  $d$  et  $\varphi_0$ .

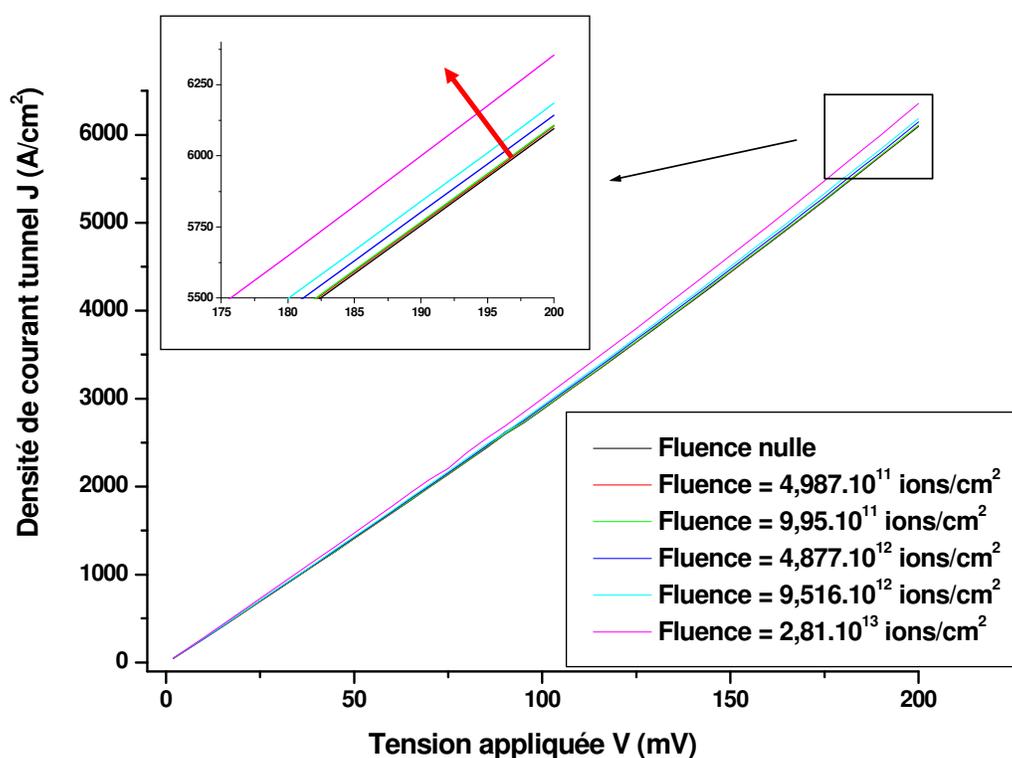
Etant donné que nous n'avons que cette jonction de disponible pour les mesures de  $I(V)$  (une jonction de type 2 aurait été plus indiquée car plus sensible aux rayonnements), nous avons irradié une JTM lithographiée de type 1 avec des ions  $\text{Kr}_{84}^{31+}$  d'une énergie cinétique de  $756 \text{ MeV}$ . Ces ions possèdent un TEL électronique dans l' $\text{Al}_2\text{O}_3$  relativement important, avec une valeur de  $Se$  estimée [Zie-TRIM] à  $1,21.10^4 \text{ keV}.\mu\text{m}^{-1}$ . A titre de comparaison, la valeur du TEL nucléaire du même ion dans l' $\text{Al}_2\text{O}_3$  n'est que de  $7,8 \text{ keV}/\mu\text{m}$ . Compte tenu des résultats présentés dans le paragraphe 4.3.1.2 concernant les résistances électriques des jonctions tunnel magnétiques irradiées, le choix d'un ion lourd tel que  $\text{Kr}_{84}^{31+}$  est indiqué pour étudier la caractéristique  $I(V)$  d'une barrière tunnel, laquelle est susceptible d'être plus endommagée par un ion lourd que par un ion léger. Nous sommes toujours dans le cas où la section efficace  $\sigma_a$  d'un ion tel que  $\text{Kr}_{84}^{31+}$  est considérée égale à  $10^{-14} \text{ cm}^2$ .

Les mesures de  $I(V)$  ont été effectuées à fluence nulle et pour des fluences de  $5.10^{11}$ ,  $10^{12}$ ,  $5.10^{12}$ ,  $10^{13}$  et  $3,3.10^{13} \text{ ions.cm}^{-2}$ . La tension appliquée pendant chaque mesure est comprise entre  $0$  et  $200 \text{ mV}$ . Nous nous sommes limités à cette dernière valeur pour ne pas risquer de claquer la jonction durant les mesures. Pendant celles-ci, la jonction est restée dans son état magnétique antiparallèle et le produit  $R_{\text{max}}.A$  mesuré à fluence nulle et avec une tension de  $10 \text{ mV}$  est de  $3300 \Omega.\mu\text{m}^2$  (malheureusement, les contraintes expérimentales ne nous ont pas permis d'effectuer la même série de mesure pour une jonction dans son état magnétique parallèle). En prenant la valeur de  $1,2.10^{-9} \text{ m}$  pour l'épaisseur de la barrière tunnel  $d$ , on détermine à l'aide de l'équation 4.4 une valeur de la hauteur de potentiel  $\Phi_0$  d'environ  $0,75 \text{ eV}$ . Nous prendrons ces valeurs de départ ( $d = 1,2.10^{-9} \text{ m}$  et  $\Phi_0 = 0,75 \text{ eV}$ ) pour initialiser l'ajustement des courbes d'après l'équation 4.4.

Les courbes  $I(V)$  obtenues aux fluences efficaces atteintes sont représentées sur la figure 4.14.

A l'aide de la figure 4.14 nous constatons que la densité de courant  $J(V)$  augmente très sensiblement en fonction de la fluence pour une tension donnée.

En faisant se correspondre les résultats expérimentaux de la figure 4.14 et l'équation 4.4 avec deux paramètres libres, à savoir l'épaisseur moyenne  $d$  et la hauteur de potentiel de la barrière  $\varphi_0$ , on s'aperçoit, en fonction de la fluence, que la variable  $\varphi_0$  varie de manière stochastique entre  $0,7399$  et  $0,7505$  eV, et que de la même manière, la variable  $d$  oscille entre  $1,2453$  et  $1,2588$  nm. Le tableau 4.3 résume les valeurs de  $\varphi_0$  et de  $d$  déduites des courbes à toutes les fluences. Nous constatons tout de même que l'épaisseur  $d$  d'une barrière tunnel d'une JTM de type 1 (valeur donnée par le laboratoire) est a priori de  $1,2$  nm et que les valeurs de  $d$  déduites des mesures  $J(V)$  sont très proches et l'écart se limite à la dimension d'un plan atomique.



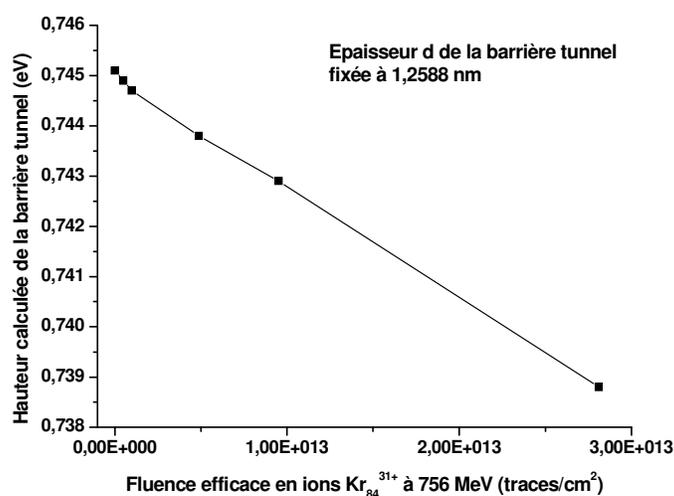
**Figure 4.14.** Densité de courant tunnel  $J(V)$  (courant  $I$  rapporté à la surface de la JTM) en fonction de la fluence efficace en ions  $\text{Kr}_{84}^{31+}$ . Le zoom représente les courbes  $J(V)$  à toutes les fluences efficaces atteintes pour les densités de courant tunnel  $J$  élevées : on y voit la courbe  $J(V)$  s'élever progressivement en fonction de la fluence, comme indiqué par la flèche rouge.

Fluence eff. (ions.cm <sup>-2</sup> )	Épaisseur $d$ (nm)	Hauteur $\varphi_0$ (eV)
0	1,259	0,745
4,987.10 <sup>11</sup>	1,25	0,745
9,95.10 <sup>11</sup>	1,253	0,74
4,877.10 <sup>12</sup>	1,245	0,751
9,516.10 <sup>12</sup>	1,251	0,742
2,81.10 <sup>13</sup>	1,248	0,741

**Tableau 4.3.** Valeurs de l'épaisseur  $d$  et de la hauteur de potentiel  $\varphi_0$  de la barrière tunnel d'une jonction de type JTM-1, déduites des mesures  $J(V)$  ajustées par rapport à l'équation de Simmons pour les tensions intermédiaires et ce avec les deux paramètres libres.

Les résultats du tableau 4.3 ne permettent pas de conclure quoi que ce soit quant aux effets des irradiations sur les paramètres physiques de la barrière tunnel. En prenant les valeurs de  $d$  et  $\varphi_0$  déduites des mesures  $J(V)$  à fluence nulle comme valeurs de référence, nous pouvons effectuer un ajustement des mesures à toutes les fluences en fixant à ces valeurs un des deux paramètres, l'autre étant libre.

En fixant l'épaisseur  $d$  de la barrière à sa valeur initiale de 1,2588 nm, on détermine alors par un ajustement avec la même équation 4.4 les valeurs de  $\varphi_0$  pour toutes les fluences. Ces résultats sont présentés sur la courbe 4.15 suivante.

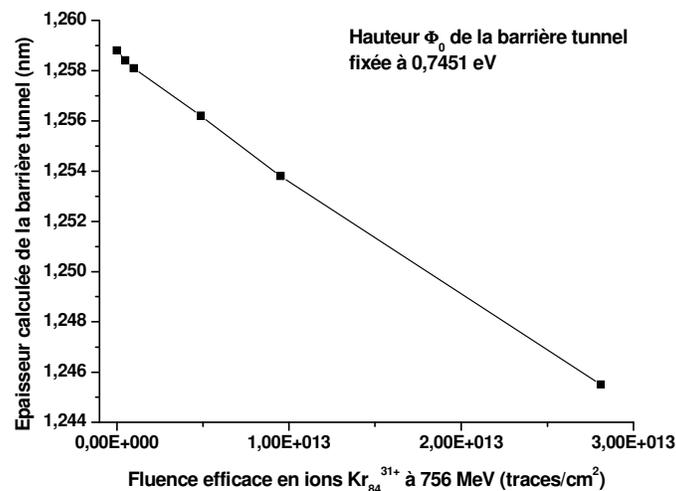


**Figure 4.15.** Hauteur de la barrière tunnel  $\varphi_0$  déduite de l'ajustement des mesures  $J(V)$  à toutes les fluences par rapport à l'équation de Simmons pour les tensions intermédiaires et ce avec un paramètre libre, l'épaisseur  $d$  de la barrière tunnel étant fixée à 1,2588 nm.

La figure 4.15 nous montre que  $\varphi_0$  décroît en fonction de la fluence dès lors qu'on fixe la valeur de l'épaisseur de la barrière tunnel. La décroissance, quasi-linéaire, n'est que de 0,845 % entre la valeur initiale et la valeur à la fluence maximale. Ceci étant, cette décroissance de  $\varphi_0$  pour une épaisseur  $d$  fixée correspond à la légère augmentation de la densité de courant constatée sur la figure 4.14.

En fixant la hauteur  $\varphi_0$  de la barrière tunnel à sa valeur initiale de 0,7451 eV, on détermine alors par un ajustement avec la même équation 4.4 les valeurs de  $d$  pour toutes les fluences. Ces résultats sont présentés sur la courbe 4.16 suivante.

La figure 4.16 nous montre que  $d$  décroît en fonction de la fluence dès lors qu'on fixe la valeur de la hauteur de la barrière tunnel. La décroissance, quasi-linéaire, n'est que de 1,059 % entre la valeur initiale et la valeur à la fluence maximale. De même que pour les valeurs de la hauteur calculées précédemment, cette décroissance de  $d$  pour une épaisseur  $\varphi_0$  fixée correspond à la légère augmentation de la densité de courant constatée sur la figure 4.14.



**Figure 4.16.** Épaisseur de la barrière tunnel  $d$  déduite de l'ajustement des mesures  $J(V)$  à toutes les fluences par rapport à l'équation de Simmons pour les tensions intermédiaires et ce avec un paramètre libre, la hauteur  $\varphi_0$  de la barrière tunnel étant fixée à 0,7451 eV.

Ces résultats suggèrent que les modifications éventuelles de la barrière tunnel, telles le mixing aux interfaces électrodes/ $Al_2O_3$  et la déplétion des atomes d'oxygène au sein de la barrière

sont très localisées et/ou très limitées. Les effets sont probablement non homogènes et doivent se limiter principalement autour des traces latentes. Dans la description de Simmons du courant tunnel (voir chapitre 1), une distribution non homogène du courant tunnel n'est pas décrite par la théorie qui ne prend en compte que le cas d'une barrière « moyenne » quasi idéale. C'est pourquoi les mesures  $J(V)$  comparées au modèle de Simmons ne sont pas à même de lever à elles seules les modifications très subtiles de la barrière provoquées par les irradiations.

Contrairement au modèle de Simmons, le modèle d'Ohm dans le régime stationnaire peut tenir compte de l'inhomogénéité de la barrière tunnel. Dans notre cas, assimilable à des résistances en parallèle, le modèle d'Ohm représente la conductance totale de la jonction tunnel comme étant la somme de la conductance des petits éléments de surface  $dS$  de la JTM.

En considérant le cas le plus simple de deux résistances en parallèle et dans un régime stationnaire, on peut assimiler la conductance totale de la jonction comme étant la somme de la conductance associée à la barrière homogène « intacte » d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  et la conductance associée aux éventuels défauts locaux, que l'on peut assimiler aux traces :

$$G_{\text{totale}} = G_{\text{intacte}} + G_{\text{défauts}} = \frac{\gamma_{\text{intacte}} \cdot S_{\text{intacte}}}{e} + \frac{\gamma_{\text{défauts}} \cdot S_{\text{défauts}}}{e} \quad 4.5$$

avec la conductance totale  $G_{\text{totale}}$ , la conductance de la barrière tunnel intacte  $G_{\text{intacte}}$ , la conductance globale des défauts  $G_{\text{défauts}}$ , l'épaisseur de la barrière tunnel  $e$ , la conductivité de la barrière tunnel intacte  $\gamma_{\text{intacte}}$ , la conductivité globale des défauts  $\gamma_{\text{défauts}}$ , la surface (section) intacte de la jonction  $S_{\text{intacte}}$  et la surface (section) des défauts  $S_{\text{défauts}}$ . On peut poser également :

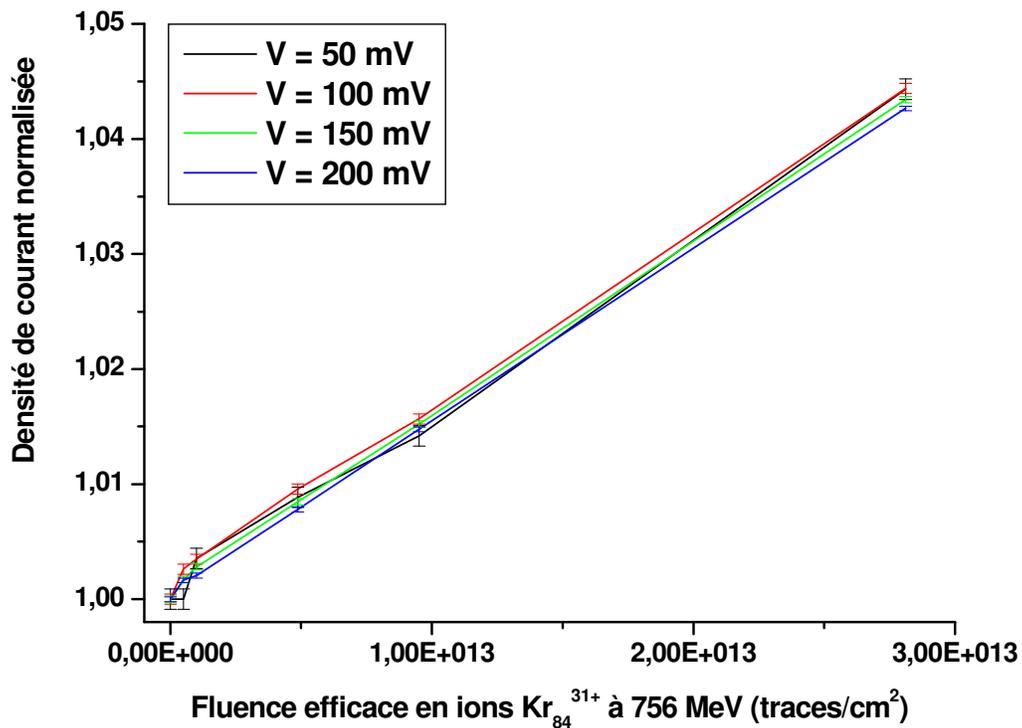
$$S_{\text{intacte}} = S_0 - S_{\text{défauts}} \quad 4.6$$

avec la surface (section) de la jonction tunnel  $S_0$  (qui est de  $400 \mu\text{m}^2$  dans notre cas). On peut alors réécrire l'équation 4.5 comme suit :

$$G_{\text{totale}} = \frac{S_0 \cdot \gamma_{\text{intacte}} + S_{\text{défauts}} (\gamma_{\text{défauts}} - \gamma_{\text{intacte}})}{e} \quad 4.7$$

A l'aide de l'équation 4.7, ayant  $S_0 \cdot \gamma_{intacte}$  et  $e$  constants et en supposant que  $\gamma_{défauts}$  est invariant, on s'aperçoit que la conductance totale de la JTM est une fonction linéaire dépendant uniquement de la surface  $S_{défauts}$  qui est directement reliée au nombre de traces, donc à la fluence efficace  $F_{eff}$ . La densité de courant dans la JTM est proportionnellement reliée à cette conductance totale.

La figure 4.17 représente la densité de courant normalisée traversant la JTM ( $I$  étant la valeur initiale de la densité de courant à fluence nulle pour une tension donnée) pour plusieurs tensions fixées en fonction de la fluence efficace (les barres d'erreurs correspondent à la résolution de l'appareil de mesure).



**Figure 4.17.** Densité de courant normalisée ( $I$  étant la valeur initiale de la densité à fluence nulle pour une tension donnée) en fonction de la fluence efficace en ions  $\text{Kr}_{84}^{31+}$  pour les tensions  $V$  de 50, 100, 150 et 200 mV.

La figure 4.17 nous montre qu'à une tension donnée la densité de courant  $J$  traversant la JTM augmente linéairement avec la fluence efficace, donc avec le nombre de traces et avec la surface de défauts  $S_{défauts}$ .

L'augmentation de la densité de courant en fonction de la fluence observée sur la JTM irradiée peut être expliquée par une interprétation relativement simple du modèle d'Ohm prenant en compte la formation d'inhomogénéités (défauts) dans la barrière tunnel.

Cependant, on s'aperçoit (figure 4.17) que l'augmentation de densité de courant est relativement réduite, et ce pour des fluences atteintes relativement élevées, avec par exemple une valeur inférieure à 5 % pour une fluence efficace de  $2,81.10^{13}$  traces.cm<sup>-2</sup> et ce quelle que soit la tension appliquée.

### **Conclusion**

L'absence de modifications notables des propriétés magnétiques des électrodes des jonctions irradiées ainsi que les modifications notables des résistances électriques et de la TMR laissent entendre que l'hypothèse des deux effets électriques en compétition est plausible. Ces effets se manifestent principalement au niveau de la barrière tunnel et de ses interfaces avec les premières couches adjacentes des électrodes magnétiques.

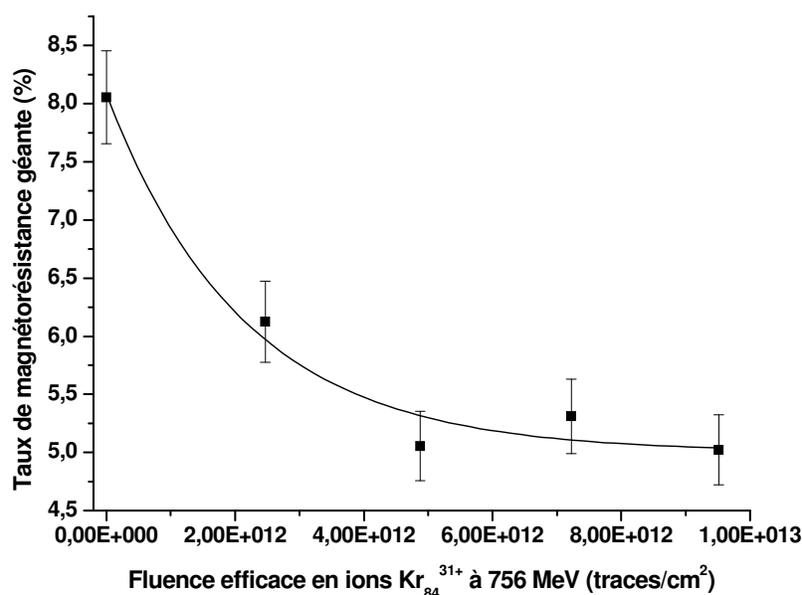
Les résultats des mesures  $I(V)$  confrontés aux modèles de Simmons et d'Ohm suggèrent que les effets des irradiations au niveau de la barrière sont très subtils et localisés avec la formation de « points chauds » ponctuels par lesquels le courant électrique passe plus facilement et contribue à l'augmentation de la densité de courant. Ces « points chauds » pourraient être des zones de déplétion en atomes d'O et/ou des zones de mélange aux interfaces barrière/électrodes, zones très localisées et de la dimension d'une trace.

### **4.3.2 Miroirs de spin**

Pour mieux comprendre les effets éventuels des irradiations sur la barrière tunnel d'une jonction tunnel magnétique, nous allons comparer les effets des irradiations aux propriétés liées à la qualité d'une barrière tunnel. En effet, la GMR (magnétorésistance géante) d'un miroir de spin est liée à la qualité de la barrière tunnel donc à son homogénéité. Nous avons donc irradié cinq miroirs de spin de structure identique (voir paragraphe « nature des échantillons ») à l'aide d'ions  $Kr_{84}^{31+}$  à 756 MeV. Un des miroirs de spin n'a pas été irradié et constitue l'échantillon de référence. Les quatre autres échantillons ont été soumis à des fluences de  $2,5.10^{12}$ ,  $5.10^{12}$ ,  $7,5.10^{12}$  et  $1.10^{13}$  ions.cm<sup>-2</sup>. Comme pour le paragraphe précédent, le TEL électronique de l'ion  $Kr_{84}^{31+}$  à 756 MeV étant de  $1,21.10^4$  keV.μm<sup>-1</sup> et en

comparant cette valeur aux résultats présentés sur la figure 4.11, on peut déduire que la section efficace de la trace est proche de  $10^{-14} \text{ cm}^2$ . Nous prenons en compte le phénomène de recouvrement des traces par la suite. La GMR des échantillons après irradiation a été mesurée à l'aide d'un testeur sous pointes Phase Metrics. Les résultats sont présentés sur la figure 4.18.

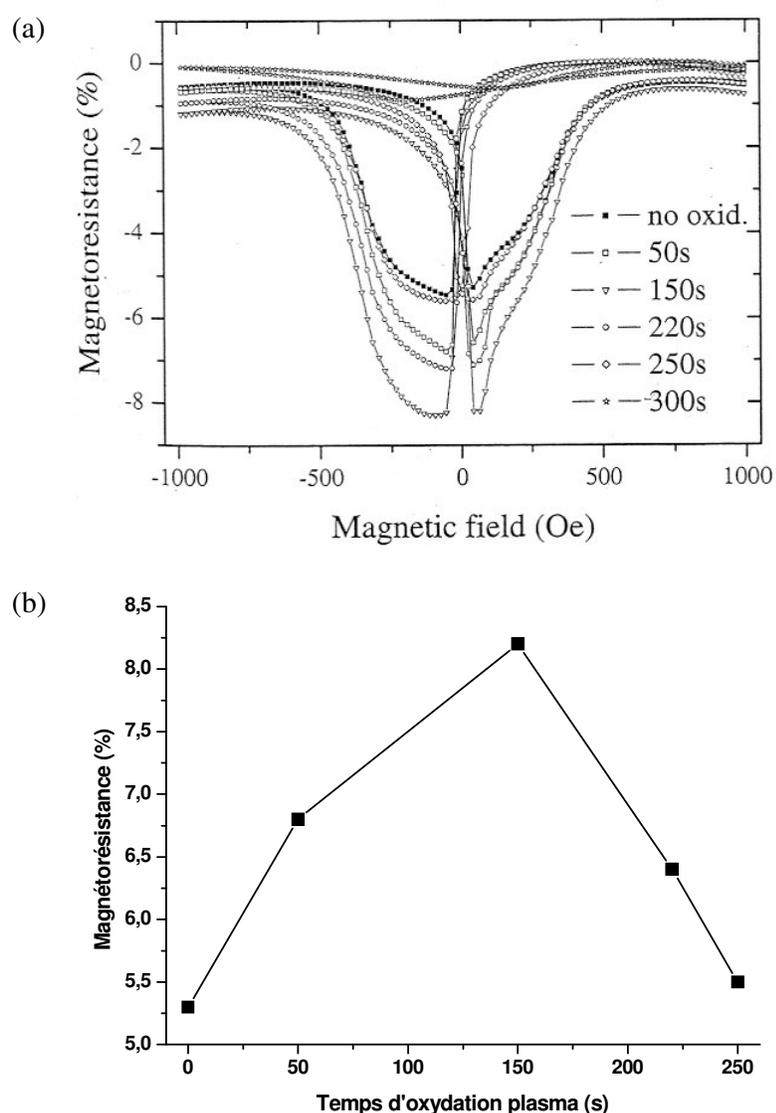
Nous observons des effets très significatifs. Nous constatons que la GMR des miroirs de spin décroît très nettement en fonction de la fluence. Cette GMR diminue de près de 38 % en valeur relative entre un miroir de spin non irradié (taux de GMR  $\sim 8,1 \%$ ) et un miroir de spin soumis à une fluence efficace de  $5.10^{12} \text{ ions.cm}^{-2}$  (taux de GMR  $\sim 5,05 \%$ ). Pour des fluences plus importantes, le taux de GMR semble se stabiliser à environ 5 % quelle que soit la valeur de la fluence. Ce résultat est semblable à celui obtenu grâce aux mesures de TMR des jonctions lithographiées et irradiées. En effet, la TMR des jonctions lithographiées exhibait un comportement similaire après irradiation en fonction de la fluence, à savoir une chute de la TMR dès le début des irradiations, et une stabilisation de celle-ci pour des fluences plus importantes.



**Figure 4.18.** Taux de magnétorésistance géante de miroirs de spin identiques en fonction de la fluence efficace en ions  $Kr_{84}^{31+}$  à 756 MeV. Les symboles carrés représentent les valeurs réelles mesurées avec leurs barres d'erreur respectives, la ligne représente un ajustement estimé à partir de l'équation de l'exponentielle décroissante au premier degré.

Les résultats peuvent être comparés aux mesures effectuées par Da Costa *et al.* [DaC-J3M-02] sur des miroirs de spin à la structure tout à fait identique, pour lesquels c'est le temps

d'oxydation plasma de la couche d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  recouvrant la vanne de spin que l'on a fait varier. Sur la figure 4.19 (b), on observe une augmentation de la GMR d'un miroir de spin d'une valeur initiale de 5,3 % jusqu'à une valeur de 8,4 % pour un temps d'oxydation plasma de la couche supérieure d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  de 150 secondes. Il convient de noter que les miroirs de spin que nous avons irradiés avaient tous une couche supérieure d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  oxydée par plasma pendant 150 secondes : les résultats présentés par Da Costa *et al.* (8,4 % de GMR pour une oxydation plasma de la couche de 150 secondes) sont en parfaite concordance avec la valeur de GMR mesurée sur l'échantillon non irradié. Pour des temps d'oxydation plus long (suroxydation), la GMR décroît fortement à mesure que la couche magnétique sous jacente de CoFe s'oxyde, et devient même nulle lorsque cette couche est totalement oxydée.



**Figure 4.19.** (a) hystérésis  $GMR(H)$  et (b) courbe de la GMR de miroirs de spin identiques en fonction du degré d'oxydation plasma (temps affiché en secondes) de la couche supérieure d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  [DaC-J3M-02].

Nos échantillons avant irradiation possèdent une couche supérieure d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  parfaitement oxydée et se trouvent dans un cas de figure où la GMR est maximale. Au fur et à mesure que la fluence devient importante, la GMR des miroirs de spin irradiés diminue jusqu'à atteindre la valeur initiale de GMR de la vanne de spin recouverte d'une couche d'Al non oxydée. D'après les résultats présentés par Da Costa *et al.*, deux phénomènes peuvent expliquer cette baisse de la GMR :

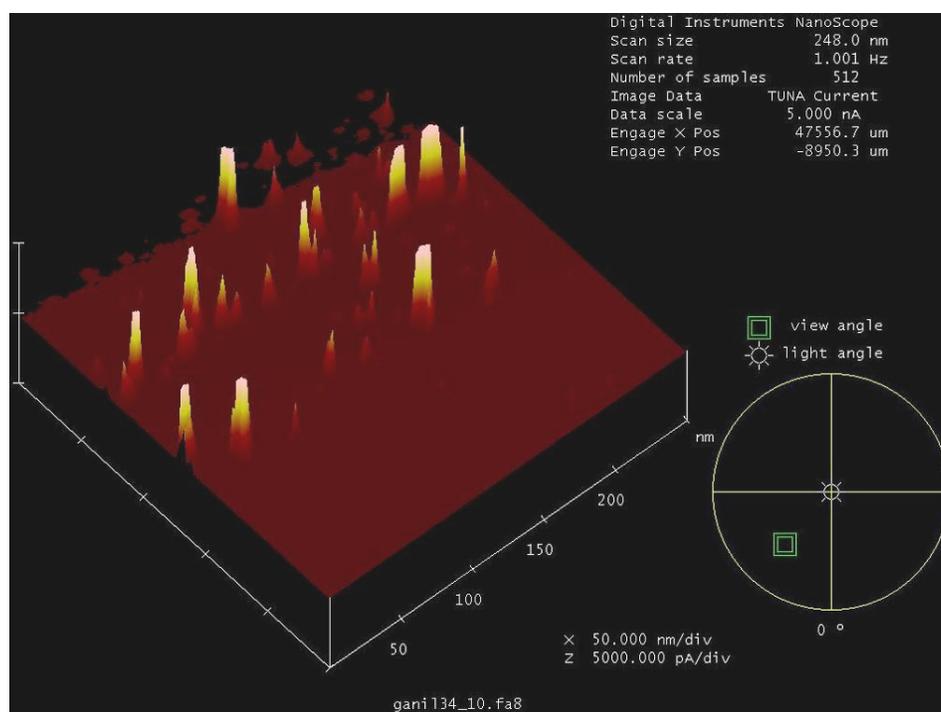
- une oxydation imparfaite de la couche supérieure d' $\text{AlO}_x$ , donc une déplétion en oxygène de la dite couche initialement dans un état d'oxydation complète ;
- ou
- une oxydation partielle de la couche magnétique sous jacente.

On remarque que de la même manière que pour la TMR des jonctions irradiées, la GMR des miroirs de spin décroît assez rapidement pour des fluences efficace allant jusqu'à  $5.10^{12}$   $\text{traces.cm}^{-2}$ , et que cette décroissance devient douce voir quasi nulle pour des fluences supérieures. Les irradiations par ions rapides déclencheraient alors des modifications structurales et chimiques assez rapidement, modifications entraînant la formation d'un état quasi stable à l'interface  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{CoFe}$ , état qui n'est pas expliqué par le recouvrement relativement faible des traces.

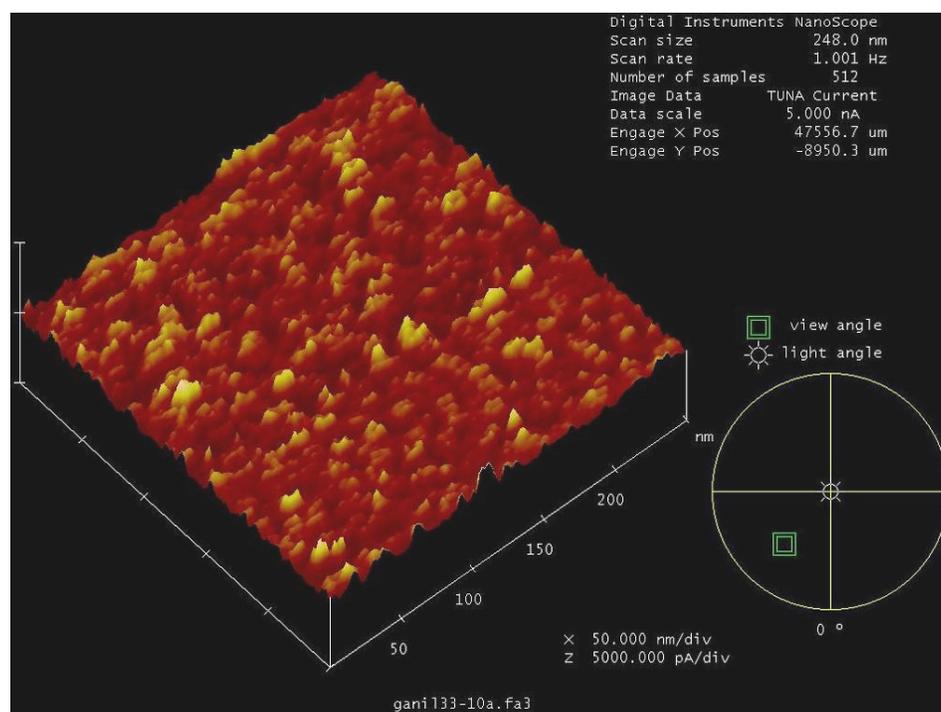
### 4.3.3 Demi-jonctions tunnel en pleine tranche

Afin de valider au mieux les résultats et conclusions apportées précédemment, il est judicieux de cartographier le courant tunnel d'une demi-jonction (présentée dans le paragraphe 4.2.3.3) avant et après irradiation. Cette cartographie pourrait qualitativement valider l'hypothèse de la formation de « points chauds » sur la trace des ions incidents.

Pour ce faire, nous utilisons la cartographie des courants tunnel grâce à l'AFM en mode TUNA, technique décrite dans le chapitre 2. Cette technique permet de mesurer et de cartographier dans le même temps la rugosité de la surface et l'intensité du courant transmis à travers la barrière tunnel. Deux échantillons identiques de **Si / Co(50) / Al(10)Ox**, avec une oxydation naturelle de 90 secondes à 100 mbar, ont été préparés simultanément dans le bâti Plassys. Un échantillon a été irradié à l'aide d'ions  $\text{Kr}_{78}^{31+}$  à 499 MeV (fluence atteinte de  $10^{13}$   $\text{ions.cm}^{-2}$ ) tandis que l'autre a servi d'échantillon de référence.



**Figure 4.20.** Cartographie par AFM-TUNA du courant tunnel de la barrière de référence. La surface étudiée fait  $0,25 \times 0,25 \mu\text{m}^2$  et l'échelle verticale est de  $5 \text{ nA}$  par division.



**Figure 4.21.** Cartographie par AFM-TUNA du courant tunnel de la barrière irradiée. La surface étudiée fait  $0,25 \times 0,25 \mu\text{m}^2$  et l'échelle verticale est de  $5 \text{ nA}$  par division.

La cartographie des deux échantillons a montré que les deux échantillons (après irradiation ) avaient une rugosité moyenne similaire d'environ  $0,25 \text{ nm RMS}$ . Les irradiations n'ont pas introduit de changements structuraux visibles par une simple mesure de rugosité de surface.

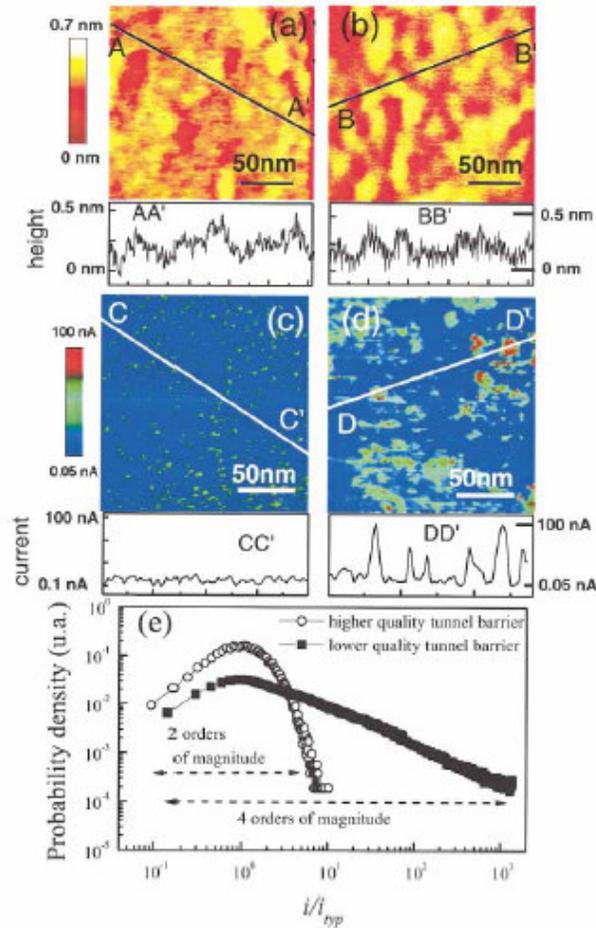
Les mesures des courants tunnel nous présentent des résultats très différents entre l'échantillon de référence et les échantillons irradiés. La figure 4.20 représente la cartographie des courants tunnel de l'échantillon de référence sur une surface de  $0,25 \times 0,25 \mu\text{m}^2$ . De même, la figure 4.21 représente la cartographie des courants tunnel de l'échantillon irradié. Dans les deux cas, l'échelle verticale, représentant la valeur du courant tunnel, est de  $5 \text{ nA}$  par division, et la mesure du courant tunnel s'est faite avec une tension fixe d'environ  $1 \text{ V}$ .

La carte des courants tunnel de la figure 4.20 présente des zones très locales (représentées par des pics clairs) où le courant tunnel est beaucoup plus intense, zones assimilables à des « points chauds », mais en très petite quantité. Au contraire, la figure 4.21 nous présente une carte des courants tunnel qui exhibe des points beaucoup moins « chauds », mais en plus grande quantité sur l'ensemble de la surface étudiée.

Les déplacements des atomes d'oxygène pourraient vraisemblablement éliminer les points très chauds (phénomène de « résorption » des trous) mais aussi créer une barrière très inhomogène. Ces phénomènes de réarrangement structuraux de la barrière et de déplacement des atomes d'oxygène (oxydation, déplétion...) seraient cohérents avec les observations et explications exposées précédemment.

Da Costa *et al.* [DaC-PRL-00] ont montré que les cartes du courant tunnel d'une barrière de bonne qualité sont très différentes de celles d'une barrière de moindre qualité, c'est à dire une barrière dont les paramètres utilisés pour sa fabrication n'ont pas été optimisés, contrairement à celle de bonne qualité. La figure 4.22 montre leurs résultats.

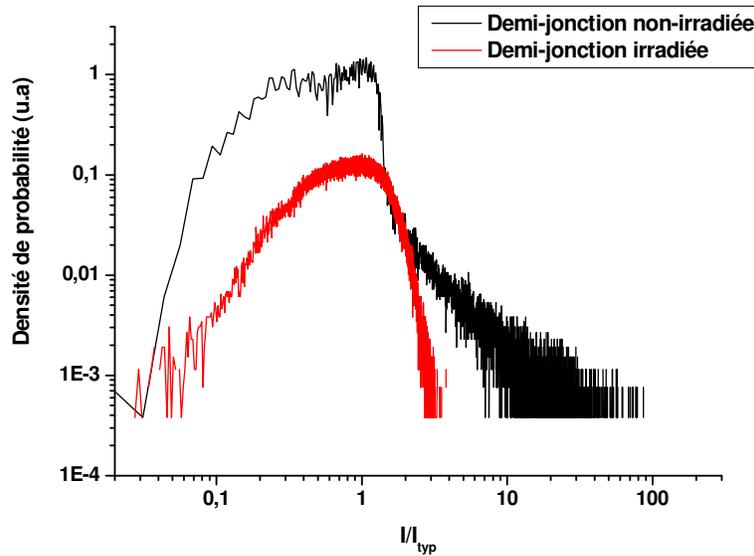
Dans la suite de leurs travaux, *Da Costa et al.* calculent alors les distributions des courants locaux dans les deux cas (barrières I et II) afin de quantifier la qualité de la barrière isolante. De précédents travaux [DaC-EPJB-00] ont démontré que la distribution de l'intensité du courant avec une longue « traîne » caractérise les variations des propriétés spatiales de l'oxyde (variation d'épaisseur évaluée à  $0,1$  ou  $0,2 \text{ nm}$ ). Inversement, une distribution peu dispersée caractérise une très faible variation des propriétés spatiales de la barrière tunnel (moins de  $0,01 \text{ nm}$ ).



**Figure 4.22.** Cartographies (d'une surface de  $0,2 \times 0,2 \mu\text{m}$ ) de la topographie (a), (b) et du courant tunnel (c), (d) de deux barrières d' $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Les images (a) et (c) ainsi que (b) et (d) ont été enregistrées en simultanée, sur une barrière de bonne qualité (I) et de moindre qualité (II), respectivement. Sous les images sont représentés les profils de hauteur du courant le long des lignes représentées sur les images. (e) représente les distributions de l'intensité du courant pour les barrières de bonne (ronds blancs) et de moindre (carrés noirs) qualité [DaC-PRL-00].

Les résultats des calculs de Da Costa *et al.* sont présentés sur la figure 4.22 (e). Pour ce faire, ils ont représenté la probabilité de densité (en unités arbitraires) en fonction de l'intensité relative  $i/i_{\text{typ}}$  avec  $i$  étant l'intensité locale mesurée et  $i_{\text{typ}}$  l'intensité pour laquelle la distribution de courant est maximale). Nous pouvons constater que la barrière de bonne qualité présente une distribution peu dispersée sur deux ordres de grandeur alors que la barrière de qualité moindre présente la traîne caractéristique s'étendant sur quatre ordres de grandeur.

A la suite de ces différents résultats, nous avons calculé les distributions de courant tunnel pour nos deux demi-jonctions, lesquelles sont présentées sur la figure 4.23 suivante.



**Figure 4.23.** Distributions de l'intensité du courant tunnel mesurée pour les deux demi-jonctions non-irradiée (noire) et irradiée (rouge). L'unité utilisée pour l'ordonnée est arbitraire.

Nous voyons sur la figure 4.23 que la valeur de l'intensité du courant tunnel de la demi-jonction non-irradiée s'étend sur près de 4 décades (de 0,02 à presque 100), tandis que la valeur de l'intensité du courant tunnel de la demi-jonction irradiée s'étend sur 2 décades (de 0,3 à 3). De plus, la courbe de la jonction non-irradiée présente une traîne caractéristique.

Les cartographies présentées sur les figures 4.20 et 4.21 ainsi que les résultats présentés sur la figure 4.23 sont similaires aux résultats obtenus par Da Costa *et al.* (figure 4.22). En reliant les deux études, nous pouvons supposer que la demi-jonction non-irradiée présente des variations d'épaisseur de la barrière isolante significative, alors que la demi-jonction irradiée présente des variations d'épaisseur de la barrière isolante beaucoup plus réduite. Ceci voudrait dire que les irradiations effectuées avec des ions lourds rapides ( $\text{Kr}_{78}^{31+}$  à 499 MeV dans notre cas) ont restructuré physiquement la barrière isolante, restructuration qui n'est pas levée par une simple mesure topographique. Ces restructurations peuvent être :

- une homogénéisation de la qualité de l'oxyde  $\text{AlO}_x$  sur toute la surface de la demi-jonction, ce qui sous-entend des déplacements d'atomes d'O au sein de la barrière ou encore au sein de la couche adjacente qui cède alors ses éventuels atomes d'O à l'Al non oxydé ;
- une homogénéisation de l'épaisseur de la barrière isolante ce qui sous-entend des déplacements d'atomes d'Al et d'O.

Les mesures confirment que des modifications générales de la stœchiométrie (en particulier de la barrière tunnel) sont induites par les irradiations.

## 4.4 Conclusions du chapitre 4

Ces résultats prouvent que les irradiations par des ions rapides interviennent de façon subtile principalement au niveau de la barrière tunnel et de ses interfaces avec les couches ferromagnétiques.

Ces irradiations induisent des « migrations » atomiques, telles que décrites par le modèle de la pointe ionique (ou explosion coulombienne), particulièrement pour les atomes d'oxygène, dans la barrière et/ou aux interfaces avec les électrodes ferromagnétiques. Ces « migrations » ont pour effet d'appauvrir en oxygène la couche d' $\text{AlO}_x$  qui devient de plus en plus métallique aux interfaces, provoquant ainsi une fluctuation de la densité du courant tunnel à travers la barrière isolante, et d'enrichir en oxygène les couches ferromagnétiques adjacentes qui perdent progressivement leurs propriétés magnétiques aux interfaces (en particulier la polarisation des électrons aux interfaces, polarisation intervenant directement dans le phénomène de TMR). Ces résultats sont cohérents avec les mesures de la caractéristique  $I(V)$  d'une jonction irradiée : la métallisation progressive de la barrière tunnel provoquerait une augmentation de la densité surfacique de courant, augmentation très subtile mais cependant mesurée expérimentalement. La nature exacte des modifications induites par irradiation n'a cependant pas pu être déterminée clairement.

Les mesures par la cartographie de la densité du courant tunnel à travers la barrière isolante d'une demi-jonction ont démontré que les irradiations n'ont pas un effet assimilable à un recuit décrit par le modèle de la pointe thermique au niveau de la trace latente laissée par le passage d'un ion lourd de haute énergie.

D'un point de vue pratique, l'utilisation de jonctions tunnel magnétiques optimisées dans les composants électroniques tels que les MRAM est avantageuse lorsque ceux-ci sont soumis à des rayonnements ionisants, puisque même si les propriétés physiques globales des JTM s'en trouvent affectées, les modifications observées sont mineures et les JTM conservent leurs pleines fonctionnalités opérationnelles pour une durée de vie standard.

## Références du chapitre 4

- [Ava-NSC-96] D. K. Avasthi, D. Kanjilal, G. K. Mehta, « Materials modification with swifts heavy ions », Nuclear Science Center, India, (1996).
- [Boc-Th-01] M. Boccanfuso, « Relation entre le gonflement et la création de défauts dans les cristaux ioniques irradiés par des ions lourds rapides », Thèse de Doctorat, Université de Caen, (2001).
- [Bro-JAP-84] R. D. Brown, J. R. Cost, J. T. Stanley, « Effects of neutron irradiation on magnetic permeability of amorphous and crystalline alloys », *J. Appl. Phys.*, 55, p1754, (1984).
- [Con-JAP-03] Y. Conraux, J. P. Nozières, V. DaCosta, M. Toulemonde, K. Ounadjela, « Effects of swift heavy ion bombardment on magnetic tunnel junction functional properties », *J. Appl. Phys.*, 93, p7301, (2003).
- [Dac-EPJB-00] V. Da Costa, Y. Henry, F. Bardou, M. Romeo, K. Ounadjela, *Eur. Phys. J.*, B, 13, p297, (2000).
- [DaC-PRL-00] V Da Costa, C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela « Tunneling phenomena as a probe to investigate atomic scale fluctuations in metal/oxide/metal magnetic tunnel junctions », *Phys. Rev. Lett.*, 85, p876, (2000).
- [DaC-J3M-02] V. Da Costa, A. Iovan, K. Ounadjela, W. Allen, J. F. Gregg, B. Dieny, « Spin-polarized electronic reflections at metal-oxide interfaces », *JMMM*, 240, 1-3, p140, (2002).
- [Ghi-Th-92] M. Ghidini, « Etude de systèmes magnétiques nanostructurés préparés par irradiation d'ions lourds de haute énergie », Thèse de Doctorat, Université Joseph Fourier de Grenoble, (1992).
- [Mef-PRB-93] A. Meftha, F. Brisard, J. M. Costantini, M. Hage-Ali, J. P. Stoquert, F. Studer, M. Toulemonde, « Swift heavy ions in magnetic insulators : a damage-cross-section velocity effect », *Phys. Rev. B*, 48, p920, (1993).
- [Sai-Th-98] F. Saigne, « Une nouvelle approche de la sélection des composants de type MOS pour l'environnement radiatif spatial », Thèse de Doctorat, Université de Montpellier II, (1998).
- [Zie-TRIM] J. F. Ziegler, J. Biersack, U. Littmark, « The stopping and range of ions in solids », Pergamon Press., New York, (1995), S-TRIM Software ([www.srim.org](http://www.srim.org)).

## Conclusions

Les différents résultats expérimentaux obtenus lors de ces travaux démontrent que le domaine des jonctions tunnel magnétiques, et par extension celui des MRAM, est un champ très vaste qu'il reste encore à explorer.

Les travaux préliminaires sur les propriétés physiques spécifiques du GdCo ont pointé du doigt les différents problèmes que peuvent éventuellement rencontrer les développeurs et fabricants de ces MRAM à architecture alternative utilisant des jonctions tunnel magnétiques à base d'alliages amorphes ferrimagnétiques : les problèmes de l'homogénéité en composition des alliages et de la présence éventuelle d'une anisotropie perpendiculaire dans les couches minces. Ce travail de thèse a montré que le concept d'une architecture alternative de MRAM basée sur l'utilisation de ce type de matériau peut être validé à condition de développer des technologies et des procédés permettant d'obtenir des couches minces de ce matériau avec des propriétés de transport électrique, magnétiques et chimiques très bien définies et reproductibles.

Les mesures de résistance des jonctions tunnel magnétiques aux rayonnements ionisants ont été très fructueuses. Elles ont démontré que les jonctions tunnel magnétiques conservaient leurs pleines capacités fonctionnelles pour une durée de vie standard, malgré une dégradation progressive de leurs propriétés physiques sous un faisceau d'ions lourds rapides. Il semblerait que nous puissions conclure que les MRAM à base de jonctions tunnel magnétiques sont résistantes aux rayonnements ionisants dans la mesure où elles restent fonctionnelles. De plus, ces mesures ont permis d'appréhender et de mieux comprendre les mécanismes sous-jacents liés aux effets des irradiations sur des matériaux aussi divers que les couches minces métalliques et les isolants ainsi que le rôle primordial des interfaces dans des structures en multicouches.

## Lexique des abréviations employées

AAF	Alliage Amorphe Ferrimagnétique
AF	AntiFerromagnétique
AFM	Microscopie à Force Atomique ( <i>Atomic Force Microscopy</i> )
AMR	Magnétorésistance Anisotrope ( <i>Anisotropy MagnetoResistance</i> )
CIP	Courant Dans le Plan ( <i>Current In Plane</i> )
MOS	Semi-conducteur sur Métal-Oxyde ( <i>Metal-Oxide Semiconductor</i> )
CPP	Courant Perpendiculaire au Plan ( <i>Current Perpendicular to Plan</i> )
EHE	Effet Hall Extraordinaire
ESD	Décharge ElectroStatique ( <i>ElectroStatic Discharge</i> )
FM	FerroMagnétique
GMR	Magnétorésistance Géante ( <i>Giant MagnetoResistance</i> )
JTM	Jonction Tunnel Magnétique
MR	Magnétorésistance
MRAM	Mémoire Magnétique à Accès Aléatoire ( <i>Magnetic Random Access Memory</i> )
NM	Non Magnétique
SAF	Antiferromagnétique Synthétique ou Artificiel ( <i>Synthetic AntiFerromagnetic</i> )
TEL	Transfert d'Energie Linéaire
TMR	Magnétorésistance Tunnel ( <i>Tunnel MagnetoResistance</i> )
VSM	Magnétomètre à Echantillon Vibrant ( <i>Vibrating Sample Magnetometer</i> )

## ***RESUME***

Les mémoires magnétiques à accès aléatoire (MRAM) sont en passe de supplanter les autres formes de mémoires à accès aléatoire utilisant des états de charge électrique, et ce grâce à leurs nombreux avantages techniques : non-volatilité, rapidité, faible consommation énergétique, robustesse. Egalement, les MRAM sont prétendues insensibles aux rayonnements ionisants, ce qui n'a pas été vérifié expérimentalement jusqu'à présent. L'architecture actuelle des MRAM est basée sur l'utilisation de jonctions tunnel magnétiques (JTM). Ces MRAM peuvent présenter un inconvénient de taille, car elles sont susceptibles d'exhiber des erreurs d'adressage, en particulier lorsque l'intégration (la densité de points mémoire) est de plus en plus poussée. Le travail mené pendant cette thèse concerne ces deux points : - vérifier la fiabilité fonctionnelle des MRAM à base de JTM exposées aux rayonnements ionisants de haute énergie ; - étudier un alliage amorphe ferrimagnétique, le GdCo, susceptible d'entrer dans la composition de JTM et permettant de s'affranchir des éventuelles erreurs d'adressage par un processus d'inhibition thermique des points mémoire. Ces travaux de thèse ont démontré que les MRAM à base de JTM conservent pleinement leurs propriétés fonctionnelles lorsqu'elles sont soumises à un rayonnement ionisant intense, et que le GdCo est un matériau très intéressant du point de vue de la physique du solide et du magnétisme, que ses propriétés physiques sont très prometteuses quant à ses applications, et que son intégration dans une JTM réclame encore des évolutions technologiques.

---

## ***ABSTRACT***

The magnetic random access memories (MRAM) are on the way to supplant the other forms of random access memories using the states of electric charge, and this thanks to their many technical advantages: not-volatility, speed, low consumption power, robustness. Also, the MRAM are alleged insensitive with the ionizing radiations, which was not checked in experiments until now. The current architecture of the MRAM is based on the use of magnetic tunnel junctions (MTJ). These MRAM can present an important disadvantage, because they are likely of present errors of addressing, in particular when integration (density of memory cells) is increasingly thorough. The work undertaken during this thesis relates to these two points: - to check the functional reliability of the MRAM containing JTM exposed to high energy ionizing radiations ; - to study a ferrimagnetic amorphous alloy, GdCo, likely to enter the composition of JTM and allowing to free from the possible errors of addressing by a process of thermal inhibition of the memory cells. This work of thesis showed that the MRAM containing JTM preserve their functional properties fully when they are subjected to intense ionizing radiations, and that GdCo is a very interesting material from the point of view of the solid state physics and magnetism, that its physical properties are very promising as for its applications, and that its integration in a JTM still claims technological developments.