

# Commutation précessionelle de mémoire magnétique avec polariseur à anisotropie perpendiculaire

Maria Marins de Castro Souza Marins de Castro Souza

### ▶ To cite this version:

Maria Marins de Castro Souza Marins de Castro Souza. Commutation précessionelle de mémoire magnétique avec polariseur à anisotropie perpendiculaire. Autre. Université de Grenoble, 2011. Français. NNT : 2011GRENT058 . tel-00656763

## HAL Id: tel-00656763 https://theses.hal.science/tel-00656763v1

Submitted on 5 Jan 2012  $\,$ 

**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.

# UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

# THÈSE

Pour obtenir le grade de

# DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : Micro et Nano Electronique

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

## Maria MARINS DE CASTRO SOUZA

Thèse dirigée par **Ursula EBELS** et codirigée par **Ricardo SOUSA** 

préparée au sein du Laboratoire SPINTEC (UMR CEA/CNRS/UJF/Grenoble INP)

dans l'École Doctorale Electronique, Electrotechnique, Automatique et Traitement du Signal

# Commutation précessionelle de mémoire magnétique avec polariseur à anisotropie perpendiculaire

Thèse soutenue publiquement le **27 septembre 2011** devant le jury composé de :

Mme Françoise HIPPERT
Professeur, Grenoble INP, Grenoble (Président)
M. Stéphane ANDRIEU
Professeur, Nancy Université, Vandoeuvre le Nancy (Rapporteur)
M. Vincent CROS
Directeur de Recherche, CNRS, Palaiseau (Rapporteur)
M. Jean-Philippe ANSERMET
Professeur, Ecole Polytechnique de Lausanne, Suisse (Membre)
Mme Ursula EBELS
Ingénieur Chercheur, CEA, Grenoble (Membre)
M. Ricardo SOUSA
Ingénieur, CEA, Grenoble (Membre)



À la mémoire d'Alzira Alvez de Castro, ma plus belle source d'inspiration

# Remerciements

Mes années de thèse au laboratoire Spintec ont été riches scientifiquement mais surtout épanouissantes grâce aux personnes qui font du laboratoire un endroit accueillant et agréable. Cela fait plaisir quand, après un réveil difficile dans une matinée d'hiver grenoblois à -5°C, on se retrouve dans une ambiance de travail chaleureuse.

Tout a commencé quand j'ai assisté une présentation destinée aux étudiants de Master 2 de l'Université Joseph Fourier faite par Alain Schuhl, à l'époque directeur de Spintec et aujourd'hui directeur de l'Institut Néel. Ça a été mon déclic pour venir travailler au laboratoire. C'est Alain qui m'a gentiment accueilli la première fois à Spintec pour une visite du laboratoire pour un stage de fin d'études et une éventuelle thèse. Et ça a bien marché! Merci Alain pour m'avoir donné le goût et l'envie de venir travailler à Spintec.

Je tiens à remercier l'équipe MRAM du laboratoire Spintec pour m'avoir accueilli. Je remercie Ricardo Sousa, mon encadrant, pour la confiance et également pour le suivi attentif de mes travaux de thèse. Toujours là pour répondre à une question ou donner un conseil pertinent, merci pour la disponibilité et pour les discussions qui m'ont toujours été utiles. Merci à Ursula Ebels, ma directrice de thèse. Même si Ursula est dans la coordination du groupe oscillateurs, elle a toujours su garder un œil sur mon travail pendant toute la durée de ma thèse. Nos discussions m'ont encouragée et m'ont beaucoup appris sur le monde magique de la dynamique de l'aimantation. Je remercie aussi Bernard Dieny, directeur scientifique de Spintec, pour les bonnes idées apportées à mes travaux de thèse. Ses explications très claires et élégantes m'ont beaucoup aidée à interpréter mes résultats expérimentaux. Merci aussi à Jean-Pierre Nozières, actuel directeur de Spintec, pour la disponibilité, le sympathie et les barbecues très sympas au Sappey.

Je remercie Bernard Rodcmacq dont l'expertise scientifique m'a aidée à comprendre davantage les différents matériaux magnétiques et la meilleure façon de les empiler. Merci aussi pour la disponibilité et la gentillesse. Pour parler des matériaux, je tiens à remercier Stéphane Auffret pour les centaines de dépôts réalisés pendant ces trois années. J'apprécie le temps que tu as consacré non seulement aux dépôts mais aussi aux riches discussions scientifiques qui m'ont beaucoup fait avancer dans le développement des mes structures. Le dépôt, "c'est de la cuisine", comme tu le dis. Et dans ce cas, tu es un chef étoilé.

Côté salle blanche, je voudrais d'abord remercier Marie-Thérèse Delaye, notre nanoartiste, pour m'avoir appris les étapes de fabrication des nanopiliers. Merci de m'avoir montré les tout petits et les grands détails qui font toute la différence sur la qualité finale de la plaque. J'ai apprécié ton grand savoir-faire mais aussi ta générosité et ta patience à nous le faire partager. Je remercie Laurent Vila pour la lithographie électronique de mes piliers et Eric Gautier pour les coupes TEM. Merci Yasmina Dahmane et Julien Vidal pour les coups de main très pratiques lorsqu'une des étapes ne marchaient pas comme on voulait. Merci aussi à Karin Garcia et Mario Aurino pour leur agréable compagnie en salle. Je tiens à remercier également toute l'équipe technique de la PTA pour nous mettre à disposition tous les outils qui permettent de faire des dispositifs fonctionnels de A à Z.

Côté Crocus Technology, je remercie Lucian Prejbeanu pour le suivi de mes travaux de thèse, les interprétations physiques et le soutien pendant ces trois années. Merci à Clarisse Ducruet pour les mesures CAPRES, pour m'avoir aidé à comprendre les cycles d'hystérésis les plus tordus et l'intérêt porté à mes travaux depuis ma première année à Spintec. Merci également à Céline Portemont pour les substrats de CuN et les dépôts lors des transferts entre machines de dépôt, ce qui demandait une coordination remarquable! Je remercie aussi tout le personnel de Crocus qui a toujours pensé à moi pour une invitation pour aller manger au resto, une raclette ou pour m'inviter au concours de crêpes les plus fines, de gâteaux, etc...

Un merci spécial à mes collègues Lavinia Nistor et Sébastien Bandiera qui ont commencé la thèse en même temps que moi. Vos recherches sur les systèmes à aimantation perpendiculaires m'ont permis de franchir un grand pas dans l'élaboration de mes dispositifs. Je vous remercie aussi pour votre amitié et les moments agréables passés ensemble. Merci Lavinia pour avoir partagé le bureau avec moi et les encouragements lorsque plus rien ne marchait! Merci aux thésards avant moi, en particulier ceux qui était dans le groupe MRAM qui m'ont toujours encouragé et écouté : Jérémy Alvarez-Hérault, Erwan Gapihan et Lucien Lombard. Vous êtes tellement gentils et sympas que je vous adore tout simplement. Merci pour les conseils et les pauses café. Vous allez me manquer ! Je souhaite bonne chance aux thésards et post-docs qui sont encore à Spintec : Elmer Monteblanco (merci pour ta gentillesse et les bons moments passés ensemble), Sylvain Martin, Michael Quinsat, Emilie Jué, Juan Sierra, Giovanni Vinai, Emeline Hassem, Gor Lebedev, Lara San Emeterio et tous les autres. Bonne chance aux thésards du groupe MRAM : Quentin Stainer, Selma Amara et, en particulier, Bertrand Lacoste qui prend le relais d'une partie de mes travaux de thèse.

Et à 11h45, l'heure la plus attendue de la journée, merci à tous ceux qui étaient là et ceux qui étaient en retard. Et à la pause café également : Daria Gusakova, Vincent Baltz, Hélène Bea, Stéphane Auffret, Olivier Boulle, Mihai Miron, Gilles Gaudin, Clarisse Ducruet, Jérôme Moritz, Mario Aurino et tous le autres. Daria et Vincent : très sympa la sortie ballet à Moscou avec dégustation caviar et champagne! Je tiens à remercier Antoine Chavent pour la mise en route du code permettant l'estimation de la probabilité de retournement de façon très rapide. Merci à Liliana Prejbeanu-Buda pour les simulations sur le système intégrant un polariseur perpendiculaire dans une jonction tunnel magnétique planaire et à Mair Chshiev pour les discussions scientifiques. Je remercie Francine Papillon, responsable Recherche et Education de la Maison MINATEC, et toute

l'équipe d'organisation de la journée des thésards 2011 pour les bons moments passés ensemble lors des réunions et préparations pour l'événement. Merci Rachel Mauduit et Catherine Broisin pour s'occuper des démarches administratives mais aussi la sympathie et l'attention envers moi pour savoir si tout allait bien. Enfin, je remercie aussi Thibaut Devolder pour l'intérêt porté à mes travaux de thèse et l'opportunité de faire des mesures du retournement précessionnel en temps réel.

Je tiens à remercier les personnes qui ont contribué à la correction et aux commentaires de mon manuscrit et à la préparation de la soutenance de thèse : Ricardo Sousa, Ursula Ebels, Jérémy Alvarez-Hérault, Bernard Rodmacq, Bernard Dieny, Sébastien Bandiera, Mair Chshiev, Mihai Miron et Jean-Pierre Nozières. Vos conseils et suggestions m'ont été sans aucun doute précieux. Et merci Guillaume Prenat pour les coups de main avec  $IaT_EX$ . Lolo, Caro, Daph, Nicolle, Roger, Helga, Lavinia : un grand merci pour l'organisation du pot! J'aimerais également remercier mon jury de thèse pour avoir accepté l'invitation : Françoise Hippert, la présidente du jury, Vincent Cros et Stéphane Andrieu, les rapporteurs et enfin Jean-Philippe Ansermet, examinateur.

Je tiens à remercier tous mes amis pour leur soutien. A tous ceux de la capoeira : Daph, Mel, Elo, Romain, Polo, Cyril, Marc, David, Nat, Etienne. Et également à petit grand Stéph, Stéphanie, Lauriane, Helga, Mimi, Tania, Julie, Dani, Kari, Marcia. Je n'oublie pas mes amis qui sont loin de l'autre côté de l'océan : Ina, Mi, Anna, Teca, Gica, Marcela et tous les autres. Malgré la distance, ils sont dans mon cœr. Merci à ma famille qui m'a toujours soutenue.

Mon plus grand merci va à mes parents Fernanda et Paulo pour toute la confiance, l'amour et la tendresse que vous me donnez toujours.

# Table des matières

### Introduction

1	Cor	ntexte		13
	1.1	Magne	étisme à l'échelle atomique	13
		1.1.1	Origine du moment magnétique	13
		1.1.2	Ordre magnétique	15
		1.1.3	Anisotropie magnétique	16
		1.1.4	Bilan énergétique	18
		1.1.5	Renversement de l'aimantation	19
	1.2	Electr	onique de spin	22
		1.2.1	Quelques briques de base	22
		1.2.2	Débuts de la spintronique : magnétorésistance géante	23
		1.2.3	Magnétorésistance tunnel	25
		1.2.4	Transfert de spin	27
		1.2.5	Dynamique de l'aimantation	28
		1.2.6	Renversement de l'aimantation par transfert de spin	30
	1.3	Coupl	ages dans les couches minces magnétiques	32
		1.3.1	Couplage dipolaire	32
		1.3.2	Interaction RKKY	33
		1.3.3	Couplage d'échange	35
		1.3.4	Pinholes ou trous d'épingle	36
		1.3.5	Couplage de Néel ou peau d'orange	37
	1.4	MRA	M, la mémoire magnétique	37
		1.4.1	Principe de fonctionnement	38
		1.4.2	Différentes technologies de MRAM	39
		1.4.3	Situation des MRAM sur le marché	42
	1.5	Objec	tif de la thèse : MRAM à écriture précessionnelle	45

11

<b>2</b>	Opt	timisat	ion de la barrière tunnel	<b>47</b>
	2.1	Etat d	le l'art des barrières tunnel magnétiques	48
	2.2	Techn	iques de caractérisation	51
		2.2.1	Caractérisation électrique : méthode CIPT $\ldots$	51
		2.2.2	Caractérisation magnétique : VSM $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	54
	2.3	Techn	ique de dépôt : pulvérisation cathodique	56
	2.4	Empil	$ement standard \dots \dots$	57
	2.5	Barriè	res MgO RF	59
		2.5.1	Effet de l'épaisseur de MgO	60
		2.5.2	Effet des insertions de Mg	63
		2.5.3	Effet de la température de recuit	65
		2.5.4	Résumé : barrières MgO RF	68
	2.6	Barriè	res MgO par oxydation naturelle	70
		2.6.1	Effet des insertions de Mg et MgO	70
		2.6.2	Effet de l'épaisseur de la barrière tunnel	71
		2.6.3	Effet du temps et de la pression d'oxydation $\ldots \ldots \ldots \ldots$	73
		2.6.4	Résumé : barrières MgO oxydation naturelle	75
	2.7	Conclu	usion	77
3	Inté gné	égratio	n du polariseur perpendiculaire dans une jonction tunnel ma	- 79
	3.1	Dévelo	oppement du polariseur perpendiculaire	80
	0.1	311	Techniques de caractérisation	80
		312	Polariseur perpendiculaire à base de multicouche de $Co/Pt$	83
		313	Polariseur perpendiculaire synthétique	86
	3.2	D.1.0 Premi	ers essais d'intégration · systèmes à double barrière	88
	0.2	2 9 1	Double barrière · $Al_2\Omega_2$ - $Al_2\Omega_2$	01
		322	Double barrière : $Al_2O_3$ - MgO ovvdation naturelle	94
		323	Double barrière : $MgO BE - MgO BE$	96
		3.2.0	Double barrière : MgO ovvdation naturelle - MgO ovvdation naturell	o 97
		325	Conclusions : système double barrière	00
	23	Sépare	ateur en cuivre	100
	0.0	3 3 1	Ionction tunnel à hase de MgO RF	100
		0.0.1 3 3 9	Jonction tunnel à base de Al <sub>2</sub> $O_2$	100
		J.J.⊿ 3 2 2 2	Ionction tunnel à base de MgO ovudation naturalle	101
		ປ.ປ.ປ ຊ.ຊ./	Conclusions : séparatour cuivre	104
		0.0.4		100

4	Ecr	riture précessionnelle : validation du concept 10					
	4.1	Retou	rnement précessionnel de l'aimantation	110			
	4.2 Fabrication des nanopiliers			112			
	4.3 Méthode d'estimation de la probabilité de retournement			113			
	4.4 Montage expérimental			116			
	4.5 Polariseur perpendiculaire et jonction à base d'alumine			117			
		4.5.1	Caractéristiques des nanopiliers	117			
		4.5.2	Résultats électriques	120			
	4.6 Polariseur perpendiculaire dans une jonction à base de MgO $\ldots$ .		125				
		4.6.1	Electrons de la couche libre vers le polariseur	127			
		4.6.2	Electrons du polariseur vers la couche libre	130			
		4.6.3	Comportement général	132			
		4.6.4	Discussions	136			
	4.7	Conclu	usions	140			
Co	onclu	usions (	et perspectives	143			
$\mathbf{A}$	A Procédé de nanofabrication des piliers magnétiques 14						

# Introduction

L'électronique de spin, ou spintronique, est la science qui utilise le spin des électrons comme degré de liberté supplémentaire en électronique. Ce domaine de la physique est en plein essor depuis une vingtaine d'années. Le fait marquant qui a contribué considérablement au développement de la spintronique est la découverte de la magnétorésistance géante (GMR) en 1988 récompensée par un double prix Nobel en 2007. Les avancées scientifiques de la spintronique ont été très souvent accompagnées d'innovations technologiques. Par exemple, actuellement, la GMR est largement utilisée dans la tête de lecture de disques durs des ordinateurs. La compréhension des phénomènes physiques et les progrès technologiques dans l'élaboration des couches minces et des composants de taille nanométrique permettent le développement de dispositifs innovants tels que les mémoires magnétiques non-volatiles, les oscillateurs hyperfréquences, les composants hybrides CMOS magnétiques ou les dispositifs appliqués aux biotechnologies.

Cette thèse est consacrée à l'étude de mémoires magnétiques non-volatiles appelées MRAM pour *Magnetic Random Access Memory*. La nouveauté apportée par ces travaux est l'intégration d'un polariseur à anisotropie perpendiculaire dans une jonction tunnel classique aux aimantations planaires. Grâce au transfert de spin provenant du polariseur perpendiculaire, il est possible d'induire des oscillations de l'aimantation de la couche libre de la cellule mémoire. L'idée est d'utiliser ces précessions comme mode d'écriture de la cellule mémoire, dit écriture précessionnelle. L'avantage d'un tel dispositif est que ces oscillations sont ultra-rapides, inférieures à la nanoseconde. Cela permet de gagner un ordre de grandeur sur le temps d'écriture utilisée actuellement dans les dispositifs classiques sans polariseur perpendiculaire. La vitesse d'écriture dans le mode précessionnel pourrait permettre à la MRAM d'adresser des catégories de mémoires ultra-rapides, traditionnellement réservées à la SRAM. Ceci pourrait permettre de réaliser des circuits logiques intrinsèquement non-volatiles et de très basse consommation électrique.

Il y a quelques années, des dispositifs entièrement métalliques intégrant un polariseur perpendiculaire ont été élaborés. Depuis, des efforts se sont consacrés à l'intégration dans une jonction tunnel magnétique ce qui permet d'augmenter considérablement le signal de sortie. Par contre, cette intégration n'est pas évidente à mettre en place. Des difficultés liées à la rugosité des couches et aux interactions magnétiques apparaissent dans les structures intégrées. Dans ce manuscrit, nous allons montrer comment nous avons fait face à ces problèmes en proposant des alternatives originales pour finalement élaborer une structure fonctionnelle et ainsi valider le concept d'écriture précessionnelle.

Ce manuscrit est organisé en quatre chapitres.

Le Chapitre 1 a pour objectif l'introduction des phénomènes physiques qui sont à l'origine du magnétisme dans les matériaux. Les phénomènes physiques tels que la magnétorésistance tunnel, le transfert de spin et la dynamique de l'aimantation seront présentés. Les différents concepts de MRAM seront détaillés. Finalement, nous allons situer la mémoire MRAM dans le contexte des principales mémoires du marché actuel.

Le Chapitre 2 est consacré à l'optimisation de la barrière tunnel à base de MgO. Nous détaillerons l'étude des différents paramètres de dépôt dans le but d'élaborer des jonctions tunnels magnétiques fonctionnelles avec des bonnes qualités électriques et magnétiques.

Le Chapitre 3 présente les différentes étapes qui ont permis d'intégrer le polariseur perpendiculaire dans une jonction tunnel magnétique. Nous montrerons les études concernant le développement d'un polariseur avec une forte anisotropie perpendiculaire. Ensuite, nous présenterons les essais d'intégration dans les jonctions tunnel magnétiques.

Le Chapitre 4 présente les résultats électriques sur les nanopiliers intégrant une jonction tunnel magnétique et un polariseur perpendiculaire. Nous montrerons la validité de l'écriture précessionnelle dans les structures développées dans les chapitres précédents.

# Chapitre 1

# Contexte

L'objectif de ce chapitre est de donner au lecteur des concepts théoriques et de situer historiquement les progrès de la spintronique afin de mesurer l'intérêt des études présentées dans les chapitres suivants. D'abord nous présenterons les éléments physiques qui contribuent au moment magnétique d'un matériau. Nous allons introduire également des notions importantes de l'électronique de spin : la magnétorésistance tunnel, le transfert de spin, la dynamique de l'aimantation. Ensuite, nous verrons comment la combinaison de ces différents phénomènes permet la conception de cellules mémoire magnétiques innovantes. Enfin, nous allons situer les mémoires magnétiques dans le marché actuel des mémoires pour bien comprendre quels sont les défis technologiques qui restent à franchir.

### 1.1 Magnétisme à l'échelle atomique

#### 1.1.1 Origine du moment magnétique

Depuis des millénaires avant notre ère, les phénomènes magnétiques étaient connus et intriguaient les hommes en raison de leur capacité d'attraction à distance. Les "pierres d'aimant" désignaient les matériaux qui avaient cette "mystérieuse" capacité d'attirer le fer ou toute autre substance magnétique. Le matériau le plus connu était la magnétite qui se trouve dans la nature et qui resta longtemps un objet de fascination. Des objets en matière magnétique, notamment à base de fer, ont été découverts dans plusieurs tombes de l'époque égyptienne prédynastique du quatrième millénaire avant J.C. Il est fort possible que ce choix ne soit pas un hasard et que ces peuples connaissaient déjà les vertus magnétiques des ces "métaux vivants", mot utilisé par les anciens égyptiens [1].

Un des principaux progrès dans le domaine du magnétisme est l'apparition de la boussole en Chine au XI<sup>e</sup> siècle. Cette grande invention a été un pas décisif pour la navigation à l'époque. Malgré cela, jusqu'à la fin du XVIII<sup>e</sup> siècle, les explications physiques des phénomènes magnétiques étaient encore restreintes. On constate sur l'encyclopédie de Denis Diderot et Jean Lerond d'Alembert de 1779 que les connaissances physiques du magnétisme se résumaient aux notions de pôle magnétique, aux lois d'attraction et

aux méthodes d'aimantation. Il faudra attendre le XIX<sup>e</sup> siècle pour que les phénomènes magnétiques soient reliés à l'électricité grâce à des physiciens comme Hans OErsted, André-Marie Ampère, Michäel Faraday ou Pierre-Simon de Laplace. Ce sont les équations de l'électromagnétisme établies par le physicien James Clark Maxwell en 1864 qui synthétisent de manière très élégante les lois empiriques établies par ses prédécesseurs et qui unifient l'électricité et le magnétisme.

Les équations de Maxwell décrivent l'électromagnétisme mais n'expliquent pas l'origine du magnétisme des matériaux. Pour la comprendre, nous devons faire une étude au niveau atomique. C'est au début du  $XX^e$  siècle que la mécanique quantique apporte sa contribution fondamentale pour expliquer les phénomènes magnétiques. L'expérience de Stern et Gerlach de 1922 [2] montre que l'électron d'un atome est caractérisé non seulement par sa charge électrique mais aussi par un moment magnétique intrinsèque appelé spin. Ce moment ne peut prendre que deux états distincts appelés spin up et spin down. Le mouvement de révolution de l'électron autour du noyau induit un moment magnétique dit orbital. Le moment magnétique de spin est plus difficile à répresenter puisque cette quantité n'a pas d'analogue classique. Une vue de l'esprit consiste à dire que l'électron, particule ponctuelle, "tourne" sur lui-même, et que cette "rotation" est purement quantique. De façon générale, on nomme spin d'une particule son moment cinétique propre ou intrinsèque par opposition à son moment cinétique orbital. Le moment magnétique total est la combinaison vectorielle des moments orbital et de spin. C'est le moment orbital et le moment de spin des électrons qui sont à l'origine du magnétisme des atomes<sup>1</sup>. L'ordre de grandeur du moment de spin est le magnéton de Bohr  $\mu_B$  défini par :

$$\mu_B = \frac{eh}{4\pi m} \tag{1.1}$$

avec e la charge de l'électron (1,6.10<sup>9</sup> C), h la constante de Planck (6,63.10<sup>-34</sup> J.s) et m la masse de l'électron (9,11.10<sup>-31</sup> kg).

Le nuage électronique d'un atome est réparti en couches et sous-couches qui correspondent à des niveaux d'énergie différents. Le remplissage de ces couches est régi par le principe de Pauli et les règles de Hund [1]. Si une sous-couche est pleine, les moments magnétiques des électrons se compensent et par conséquent la couche n'induit pas de magnétisme. A l'inverse, si une couche n'est pas complètement remplie, l'atome porte un moment magnétique. C'est donc l'asymétrie de spin, c'est-à-dire la différence du nombre de spin *up* et de spin *down*, qui donne lieu à l'apparition d'un moment magnétique macroscopique non nul. Dans la matière condensée, deux séries d'éléments jouent un rôle fondamental en magnétisme. Il s'agit des éléments du groupe 3d comme le fer, le manganèse, le cobalt, le nickel, ainsi que la série des terres rares caractérisées par le remplissage de la couche 4f. L'importance de ces deux séries vient du fait que leur couches électroniques partiellement remplies contiennent un nombre relativement élevé d'électrons et

<sup>1.</sup> Toute particule a un moment magnétique et un moment cinétique intrinsèque. La masse des particules du noyau (protons et neutrons) est 2000 fois plus grande que celle des électrons. Par conséquent leur moment magnétique est trois ordres de grandeur plus faible que le moment magnétique atomique. On peut donc en première approximation négliger les effets magnétiques du noyau atomique.

sont assez profondes pour demeurer "intactes", c'est-à-dire qu'elles ne sont pas beaucoup perturbées par le réseau d'atomes voisins. Ces atomes sont donc porteurs d'un moment magnétique permanent.

#### 1.1.2 Ordre magnétique

Le moment magnétique stable des matériaux macroscopiques provient des interactions électrostatiques entre électrons appelées interactions d'échange d'Heisenberg. Ces interactions couplent très fortement les spins des électrons appartenant à des atomes différents. L'interaction  $w_{ij}$  entre un spin  $\vec{S}_i$  et  $\vec{S}_j$  s'écrit :

$$w_{ij} = -A_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \tag{1.2}$$

où  $A_{ij}$  est l'intégrale d'échange qui représente le recouvrement des orbitales atomiques et qui décroît très rapidement avec la distance entre les atomes. En effet, les interactions d'échange sont de courte portée et généralement seuls les premiers voisins sont mis en jeu. Selon le signe de  $A_{ij}$ , différents types d'ordre magnétique sont observés (Figure 1.1). Si  $A_{ij}$  est positive, la minimisation de l'énergie totale implique que tous les spins seront orientés dans la même direction. On parle alors d'un ordre ferromagnétique caractérisé par l'existence d'un moment macroscopique non nul appelé aimantation spontanée. Inversement, si  $A_{ij}$  est négative, les spins adopteront une configuration antiparallèle entre les plus proches voisins. Si les deux sous-réseaux se compensent exactement, le moment macroscopique résultant est nul et on parle d'ordre antiferromagnétique. Si la compensation est incomplète, il existe un moment magnétique non nul et on parle plutôt d'ordre ferrimagnétique.



FIGURE 1.1 – Différentes configurations magnétiques suivant le signe de l'intégrale d'échange. Pour  $A_{ij}>0$  le couplage est ferromagnétique et pour  $A_{ij}<0$  le couplage est antiferromagnétique si les deux sous-réseaux se compensent exactement ou ferrimagnétique dans le cas contraire.

Les considérations sur l'ordre magnétique faites ci-dessus sont valables à température nulle. Si la température est suffisamment élevée pour que l'agitation thermique soit plus grande que l'énergie d'échange, l'ordre magnétique disparaît. Dans ce cas, le matériau se trouve dans un état paramagnétique. Pour les matériaux ferromagnétiques, la température de disparition de l'ordre magnétique est appelée température de Curie  $T_C$ . Pour les matériaux antiferromagnétiques, cette température est appelée température de Néel  $T_N$ . En général, la température d'ordre est élevée pour les métaux 3d ( $T_C$ =1388 K pour le cobalt) et faible pour les terres rares ( $T_C$ =293 K pour le gadolinium). D'où l'utilisation privilégiée des métaux 3d à température ambiante.

#### 1.1.3 Anisotropie magnétique

Nous avons vu que l'interaction d'échange d'Heisenberg était responsable de l'ordre magnétique d'un matériau. Dans cette section, nous allons voir qu'il existe d'autres termes qui vont contribuer à la détermination de la configuration magnétique d'un matériau.

#### Anisotropie magnétocristalline

Les interactions électrostatiques d'un réseau d'ions et/ou d'atomes peuvent modifier les orbitales électroniques. Une géométrie qui respecte le mieux les symétries du cristal est imposée au moment orbital et par conséquent au moment de spin puisque ces deux moments sont couplés grâce au couplage spin-orbite<sup>2</sup>. On parle alors d'anisotropie magnétocristalline et l'axe privilégié est appelé axe de facile aimantation. On quantifie l'anisotropie magnétocristalline par le champ d'anisotropie  $H_A$  nécessaire pour faire tourner l'aimantation de l'axe facile à l'axe le plus difficile, généralement l'axe perpendiculaire à l'axe facile. En règle générale, l'anisotropie magnétocristalline est importante lorsque les orbitales électroniques sont fortement asphériques et la symétrie du cristal uniaxiale, comme par exemple le cobalt, tandis que pour les orbitales sphériques (Gd) ou de symétrie cubique (Ni ou Fe), l'anisotropie magnétocristalline est faible.

Pour un cristal cubique, l'anisotropie magnétocristalline  $W_K$  est donnée par :

$$W_K = K_1(\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_1^2 \alpha_3^2 + K_2(\alpha_1^2 \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \dots)$$
(1.3)

avec  $K_1$  et  $K_2$  les constantes d'anisotropie du premier et deuxième ordre respectivement.  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  et  $\alpha_3$  sont les cosinus directeurs de l'aimantation par rapport aux axes cristallographiques. Pour des symétries uniaxiales (en première approximation pour les symétries hexagonales, rhomboédriques et tétragonales), l'anisotropie magnétocristalline s'écrit :

$$W_{K} = K_{1}sin^{2}\theta + K_{2}sin^{4}\theta + (K_{3} + K_{4}cos^{6}\phi)sin^{6}\theta + \dots$$
(1.4)

avec  $\theta$  l'angle polaire entre l'aimantation et l'axe de facile aimantation et  $\phi$  l'angle azimutal.

Pour donner quelques ordres de grandeurs, regardons les constantes d'anisotropie du fer, du nickel et du cobalt :

<sup>2.</sup> Le couplage spin-orbite est l'interaction entre le moment orbital et le moment de spin. L'origine de ce couplage est que dans le référentiel d'un électron, le moment du noyau crée un champ magnétique qui interagit avec le moment magnétique de spin.

Matériau	$K_1 (J.m^{-3})$
Fe	$4, 8.10^4$
Ni	$-4, 5.10^3$
Со	$4, 5.10^5$

TABLE 1.1 – Constantes d'anisotropie magnétocristalline mesurées à température ambiante.

L'anisotropie magnétocristalline introduit les notions de matériaux magnétiques "durs" et "doux" qui font référence au coût énergétique pour faire tourner l'aimantation. En comparant les constantes d'anisotropie données par le tableau 1.1, on constate que le cobalt est plutôt "dur" en comparaison avec le nickel qui est plutôt "doux".

#### Anisotropie magnétoélastique

L'application d'une contrainte peut favoriser une direction différente de l'axe de facile aimantation défini par l'anisotropie magnétocristalline. Cette déformation peut venir lors d'une mesure, par exemple. Ce phénomène est à l'origine de l'anisotropie magnétoélastique. Il est important de noter que, dans une couche mince, il existe toujours des déformations même en absence d'un opérateur extérieur. Cela est dû au fait que, lorsqu'une couche est déposée sur un substrat ou sur une autre couche, les différences liées à la taille des mailles cristallines entre les deux couches en contact induisent une déformation locale à l'interface.

#### Anisotropie de champ démagnétisant ou de forme

On peut considérer qu'un échantillon magnétique est composé d'un ensemble de dipôles magnétiques. Un petit élément magnétique du matériau subit donc des interactions dipolaires magnétiques crées par l'ensemble des dipôles magnétiques du matériau. Le champ démagnétisant est le résultat de ces interactions dipolaires. A courte distance, les interactions dipolaires entre moments magnétiques sont négligeables devant celles d'échange, mais elles dominent à grande distance. Elles vont donc influencer l'ordre magnétique à longue distance. Pour estimer les interactions dipolaires, il est commode de supposer, par analogie avec les dipôles électriques, l'existence de pôles magnétiques de surface. Ces pôles de surface induisent un champ démagnétisant  $\vec{H_d}$  de signe opposé à l'aimantation. Un échantillon aimanté tend donc toujours à se désaimanter spontanément sous l'action de son propre champ démagnétisant.  $\vec{H_d}$  est exprimé par la relation :

$$\vec{H}_{d} = -\frac{\|N_{d}\| \ \vec{M}}{\mu_{0}} \tag{1.5}$$

où  $||N_d||$  est le tenseur du champ démagnétisant et  $\mu_0$  la perméabilité du vide. Généralement, le champ démagnétisant n'est uniforme ni en direction ni en amplitude dans le volume de l'échantillon, sauf pour le cas d'un ellipsoïde de révolution. Dans ce cas, la matrice représentative de ce tenseur est diagonale telle que  $N_{dx} + N_{dy} + N_{dz} = 1$ . Donc si l'aimantation est orientée suivant l'un ce ces axes,  $H_d$  lui est colinéaire. Quelques cas simples existent :

- ellipsoïde aplati :  $N_{dx} = N_{dy} \rightarrow 0, N_{dz} \rightarrow 1$
- ellipsoïde allongé :  $N_{dx} = N_{dy} \rightarrow 1/2, N_{dz} \rightarrow 0$
- sphère :  $N_{dx} = N_{dy} = N_{dz} = 1/3$

Dans la majorité des calculs et en première approximation, la distribution du champ démagnétisant est considérée comme uniforme et son module est donné par  $H_d = M_s$ ,  $M_s$ étant l'aimantation à la saturation. Puisque l'énergie du champ démagnétisant dépend de la forme de l'échantillon et non de sa taille, on l'appelle anisotropie de forme.

#### Anisotropie de surface

Ce type d'anisotropie apparaît typiquement dans les couches minces magnétiques. Son origine repose sur le fait qu'à la surface d'un échantillon le nombre d'atomes voisins est réduit. On a donc une brisure de symétrie qui donne lieu à une contraction ou dilatation de la maille cristallographique par exemple. Il peut également se produire une hybridation, c'est-à-dire un mélange entre les orbitales électroniques à l'interface de deux matériaux adjacents. La rugosité entre deux couches génère aussi une anisotropie de surface en engendrant des champs démagnétisants locaux qui réduisent l'anisotropie de forme. En général, l'anisotropie de surface induit une orientation de l'aimantation hors du plan comme par exemple aux interfaces à base de Co/Pt ou Co/Pd.

#### 1.1.4 Bilan énergétique

L'anisotropie magnétique totale  $K_{\text{eff}}$  exprimée en J/m<sup>3</sup> peut être décrite comme la somme d'une contribution de volume  $K_v$  (anisotropie magnétocristalline, magnétoélastiques et de forme) et une contribution de surface  $K_s$ :

$$K_{\rm eff} = K_v + \frac{K_s}{e} \tag{1.6}$$

avec e l'épaisseur de la couche.

Par définition, une valeur de  $K_{\text{eff}}$  positive signifie une direction de facile aimantation perpendiculaire au plan des couches. On constate qu'en réduisant l'épaisseur de la couche, la contribution surfacique devient de plus en plus importante. Par conséquent, on peut faire basculer l'aimantation orientée dans le plan des couches à une configuration perpendiculaire au plan des couches en jouant sur l'épaisseur de la couche.

Pour illustrer, considérons les travaux de Purcell et al. sur l'anisotropie d'une multicouche de Pd/Co/Pd en fonction de l'épaisseur de cobalt [3]. La Figure 1.2 montre le champ d'anisotropie magnétique total multiplié par l'épaisseur de Co en fonction de l'épaisseur de la couche de cobalt. On constate qu'il existe une épaisseur totale critique de cobalt d'environ 1,8 nm au dessous de laquelle l'aimantation est perpendiculaire au plan des couches.



FIGURE 1.2 – Anisotropie multipliéé par épaisseur en fonction de l'épaisseur de cobalt pour une multicouche à base de Pd/Co/Pd. L'aimantation devient perpendiculaire au-dessous d'une certaine épaisseur critique. Extrait de [4].

#### 1.1.5 Renversement de l'aimantation

Le modèle de retournement cohérent de l'aimantation considère un système monodomaine supposé uniformément aimanté, également appelé macrospin. Cette approximation est valable pour des nanoparticules de taille comparable ou inférieure aux longueurs magnétiques caractéristiques, typiquement la dizaine de nm, pour garantir une aimantation uniforme. Dans ce cas, l'énergie totale de la couche  $E_T$  s'écrit :

$$E_T = -\mu_0 V \left( \vec{M} \cdot \vec{H_{ext}} \right) + V K sin^2 \theta \tag{1.7}$$

Le premier terme correspond à l'énergie Zeeman qui traduit l'interaction entre le champ appliqué  $\vec{H_{ext}}$  et l'aimantation  $\vec{M}$  de la couche. V est le volume de la couche et  $\mu_0$  la perméabilité du vide. Le deuxième terme correspond à l'interaction entre le moment magnétique et la symétrie de l'environnement atomique dans le matériau. K est la constante d'anisotropie liée à l'anisotropie magnétocristalline et à l'anisotropie de champ démagnétisant. Enfin,  $\theta$  l'angle entre l'aimantation et l'axe facile.

La minimisation de l'énergie par rapport à  $\theta$  définit un champ critique orienté suivant l'axe facile dans le sens opposé à l'aimantation initiale. Ce champ est appelé champ coercitif et il correspond à l'énergie nécessaire pour faire basculer l'aimantation de la couche considérée. Le module du champ coercitif  $H_c$  est donné par :

$$H_c = \frac{2K}{\mu_0 M_s} \tag{1.8}$$

Il est important de noter que ce modèle est valable seulement pour des systèmes de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres pour lesquels l'approximation mono-domaine est vérifiée. En revanche, pour les systèmes massifs et les couches minces qui ne sont pas sous forme de piliers submicroniques, la coercitivité réelle peut être jusqu'à un ou deux ordres de grandeur inférieure à la prédiction du modèle. Pour un système multi-domaines, le renversement peut être activé par l'apparition d'un domaine inverse et ensuite se répandre sur toute la couche par propagation de parois. Un défaut cristallin peut être aussi à l'origine de l'activation du renversement de l'aimantation. Par contre, les défauts peuvent aussi bloquer la propagation des domaines lors du retournement. Il devient donc difficile de prévoir l'amplitude du champ coercitif pour des systèmes de plus grandes tailles.

Si on applique un champ extérieur en le faisant varier dans la direction de l'axe facile avec une amplitude supérieure au champ coercitif, on obtient un cycle d'hystérésis. Pour le cas de la Figure 1.3, on constate que pour des valeurs de champ coercitif de  $H_C = \pm 10$  Oe, l'aimantation change de sens. Il est important de remarquer que dans le système d'unité international (MKSA) le champ magnétique H s'exprime en A/m. Par contre, dans le domaine du magnétisme la plupart des publications utilisent le système dit CGS (centimetre-gram-second system) pour des raisons historiques. Dans ce manuscrit, le système CGS sera utilisé, H étant donné en Oersted (Oe) avec 1 Oe =  $4\pi \cdot 10^{-3}$ A/m.



FIGURE 1.3 – Cycle d'hystérésis d'une couche de CoFeB de 4 nm. L'aimantation normalisée change de sens pour des champs coercitifs de  $\pm 10$  Oe.

De manière générale, le retournement peut s'effectuer dans le plan de la couche avec un champ non colinéaire à l'axe facile. Dans ce cas, le champ de retournement est donné par l'astroïde de Stoner-Wohlfarth [5] :

$$H_f^{2/3} + H_d^{2/3} = \left(\frac{2K}{M_s}\right)^{2/3} \tag{1.9}$$

où  $H_f$  est la composante du champ suivant l'axe facile et  $H_d$  la composante du champ suivant l'axe difficile. L'astroïde est représentée par la Figure 1.4. Il apparaît clairement que la norme du champ magnétique à appliquer pour retourner l'aimantation est plus faible lorsque le champ n'est pas colinéaire à l'axe facile, mais quand il fait un angle de  $45^{\circ}$  avec celui-ci.



FIGURE 1.4 – Champ de renversement en fonction de l'angle  $\theta$  entre le champ appliqué et la direction de facile aimantation. Les cycles d'hystérésis sont schématisés pour certains angles. Extrait de [6].

#### Stabilité thermique

Considérons un cas simple où une seule orientation est stable en champ appliqué nul.  $\theta=0^{\circ}$  et  $\theta=180^{\circ}$  sont les deux états stables équivalents en énergie. Pour passer d'un état à l'autre, l'aimantation doit franchir une barrière d'énergie  $\Delta E$  donnée par :

$$\Delta E = KV \tag{1.10}$$

où K est la constante d'anisotropie et V le volume de la couche.

Chaque état étant associé à un puits de potentiel, le modèle de Néel-Brown permet de calculer le taux de transfert d'un puits de potentiel à l'autre en fonction de la température [7, 8]. Ce modèle montre que le retournement de l'aimantation peut être effectué grâce à l'activation thermique. La probabilité P pour que l'aimantation de la particule ne soit pas retournée pendant un temps t est donnée par :

$$P(t) = e^{-\frac{t}{\tau}} \text{ avec } \tau = \tau_0 e^{\frac{\Delta E}{k_B T}}$$
(1.11)

où  $\Delta E$  est la hauteur de la barrière,  $k_B$  la constante de Boltzmann et T la température.  $\tau_0$  est une constante qui dépend de la température et des caractéristiques du matériau tels que la constante de Gilbert (cf. 1.2.5), la constante d'anisotropie, l'aimantation du matériau et son volume. Par soucis de simplicité, la valeur de  $\tau_0$  est typiquement estimée à 1 ns.

Ce phénomène amène à des conséquences concernant la fiabilité dans le cas des mémoires magnétiques par exemple. Pour garantir la conservation de l'information pendant 10 ans, il est nécessaire que la probabilité de retournement de l'aimantation soit suffisamment faible, de l'ordre de  $10^{-12}$ . Cela entraîne que  $\Delta E = KV$  doit être d'environ 40 à 60  $k_BT$ . Donc pour avoir une bonne stabilité thermique, il est nécessaire soit d'avoir une constante d'anisotropie importante, soit d'augmenter le volume de la couche. Cela a pour conséquence une augmentation du champ d'écriture des cellules magnétiques. Il est donc important de trouver un compromis entre tous ces paramètres pour garantir une bonne stabilité thermique tout en conservant une énergie relativement faible pour l'écriture de l'information.

### 1.2 Electronique de spin

Les composants électroniques classiques sont à base de semi-conducteurs dans lesquels on utilise la charge de l'électron comme grandeur fondamentale. Or les électrons possèdent également un moment de spin comme nous avons vu dans la Section 1.1.1. La spintronique est le domaine de l'électronique qui utilise le spin des électrons comme degré de liberté supplémentaire en plus de la charge électrique. Nous allons tout d'abord décrire les propriétés de magnétorésistance, premier fait marquant de la spintronique. Nous présenterons ensuite une description de la dynamique de l'aimantation et du transfert de spin.

#### 1.2.1 Quelques briques de base

Avant la description des principaux phénomènes de la spintronique, nous allons voir brièvement deux briques de base essentielles pour la compréhension des phénomènes détaillés dans la suite.

#### Approximation de Mott

Lors du passage d'un courant électrique dans un matériau, les électrons subissent des collisions avec d'autres particules (électron, impureté), avec des excitations collectives (phonons, magnons) ou encore avec les défauts cristallins (dislocations, joints de grains). Il est possible de définir une longueur caractéristique  $\lambda$ , appelé libre parcours moyen, sur laquelle les collisions ont lieu. Cette longueur contribue à la résistance électrique d'un matériau donné. En effet, la résistivité  $\rho$  dans un solide est définie par :

$$\rho = \frac{m}{ne^2\tau} \tag{1.12}$$

où m est la masse effective de l'électron, n nombre d'électrons par unité de volume, e la charge électrique fondamentale et  $\tau$  le taux de relaxation qui est directement lié au libre parcours moyen  $\lambda$  par la relation :

$$v_F = \frac{\lambda}{\tau} \tag{1.13}$$

où  $v_F$  est la vitesse des électrons au niveau de Fermi. Une grandeur importante dans le transport électronique est la diffusion électronique qui correspond au changement de l'état de l'électron qui a lieu lors des collisions entre l'électron et une autre particule. En ce qui concerne le transport dépendant du spin, nous sommes amenés à définir une longeur de diffusion de spin  $l_{sf}$  correspondant à la distance moyenne parcourue entre deux collisions n'affectant pas le spin de l'électron. En général  $l_{sf}$  est supérieur à  $\lambda$  ce qui veut dire que le spin des électrons est conservé entre deux collisions<sup>3</sup>. L'approximation de Mott consiste à supposer que le spin des électrons est conservé et donc que les électrons de spin up et de spin down conduisent le courant par deux canaux indépendants en parallèle.

#### Diffusion dépendante du spin

Tout phénomène de diffusion nécessite un état final vers lequel la particule peut être diffusée. Dans un matériau magnétique le nombre d'électrons est différent pour les électrons de spin *up* et de spin *down*, c'est-à-dire, la densité d'états non occupés est différente pour ces deux états. Or nous avons vu (Equation 1.12) que la résistivité dépend de la densité d'états au niveau de Fermi. Donc, en fonction du spin des électrons, la probabilité de diffusion sera différente si les spins des électrons ont la même orientation que l'aimantation du matériau magnétique ou non. Si les spins des électrons sont orientés dans la même direction que l'aimantation du matériau, la résistance sera plus faible que si l'orientation est antiparallèle.

#### 1.2.2 Débuts de la spintronique : magnétorésistance géante

La première manifestation d'un effet caractéristique de la spintronique a été la magnétorésistance géante ou GMR (Giant MagnetoResistance). Cet effet a été observé pour la première fois par Baibich et al. [9] et Binash et al. [10] dans les systèmes à base de multicouches, typiquement plusieurs dizaines de répétitions métal ferromagnétique/métal non magnétique. Pour faciliter l'explication de ce phénomène, nous allons considérer un système similaire appelé vanne de spin décrit par la première fois en 1991 [11]. Ce système est composé de deux couches ferromagnétiques séparées par un métal non magnétique. Lorsqu'un courant électrique passe à travers cette structure, on observe que la résistance

<sup>3.</sup> Il est important de définir les dimensions caractéristiques du système étudié. Si on s'intéresse au transport électronique sur une échelle inférieure au libre parcours moyen  $\lambda$ , la diffusion peut être négligée et une approche balistique doit être considérée. Par contre, si l'échelle est très supérieure au libre parcours moyen, la diffusion a lieu de nombreuses fois et il faudra adopter une approche diffusive.

dépend de la configuration magnétique des électrodes ferromagnétiques : si les aimantations sont parallèles, la résistance sera minimale tandis que si les aimantations sont antiparallèles, la résistance sera maximale. Pour expliquer ce phénomène, considérons le schéma de la Figure 1.5 :



FIGURE 1.5 – Schéma représentant les mécanismes de la GMR pour un système métal ferromagnétique/ couche non magnétique/ métal ferromagnétique. Lorsque le spin des électrons qui traversent ce système est orienté dans le même sens que l'aimantation du matériau (a), ont obtient un état de faible résistance. Par contre, si le spin des électrons et l'aimantation du matériau ont une orientation antiparallèle (b), la résistance est plus importante. On peut schématiser ce système par des circuits électriques avec les résistances r (faible résistance) et R (haute résistance) en série ou en parallèle.

En supposant que l'approximation de Mott décrite précédemment est vérifiée, si les aimantations des couches magnétiques ont une orientation parallèle entre elles (Figure 1.5a), les électrons de spin opposé à l'aimantation (canal minoritaire) seront plus diffusés que ceux dans la même direction des aimantations (canal majoritaire). Dans le cas où les aimantations sont alignées antiparallèlement (Figure 1.5b), chaque famille de spin sera plus ou moins diffusée selon que l'aimantation est orientée dans la même direction que le spin des électrons ou non. Nous pouvons schématiser ces systèmes par deux circuits électriques en parallèle où r représente la résistance du canal majoritaire et R celle du canal minoritaire avec r < R. La résistance totale du système lorsque les aimantations sont dans l'état parallèle  $R_P$  et dans l'état antiparallèle  $R_{AP}$  sont respectivement :

$$R_P = \frac{2 \cdot rR}{(r+R)}$$
 et  $R_{AP} = \frac{r+R}{2}$  (1.14)

La magnétorésistance géante GMR est définie comme la différence relative entre les états parallèle et antiparallèle :

$$GMR = \frac{R_{AP} - R_P}{R_P}$$
(1.15)

Les valeurs de GMR expérimentales obtenues pour les vannes de spin atteignent des valeurs autour de 20% [12]. Par contre, ses valeurs se réduisent à quelques % sur les piliers magnétiques car la faible résistance du cuivre séparant les deux couches magnétiques est beaucoup plus sensible aux résistances parasites qui peuvent apparaître lors de la nanostructuration des piliers.

#### 1.2.3 Magnétorésistance tunnel

La magnétorésistance tunnel ou TMR (Tunnel MagnetoResistance) s'observe dans des systèmes appelés jonctions tunnel magnétiques constitués de deux électrodes ferromagnétiques séparées par une fine couche isolante, appelée barrière tunnel, dont l'épaisseur est de quelques nanomètres. Une des électrodes a une aimantation dont le sens peut être modifié par rapport à l'aimantation de l'autre électrode (Figure 1.6). Cette première électrode est appelée couche libre, couche douce ou encore couche de stockage. L'autre électrode, dont l'aimantation est fixe, est appelée couche piégée, couche dure ou couche de référence.



FIGURE 1.6 – Illustration d'une jonction tunnel magnétique. Les électrodes sont séparées par une barrière isolante. L'électrode dont l'aimantation est fixe est appelée couche piégée, dure ou de réference tandis que l'autre électrode est appelée couche libre, douce ou de stockage.

La première mesure de magnétorésistance tunnel date de 1975 par Jullière [13]. Une TMR de 14% a été observée à 4,2 K sur une tricouche de Fe/GeOx/Co. En raison de la nature isolante de la barrière tunnel, le courant qui traverse la jonction passe d'une électrode à l'autre par effet tunnel. Pour expliquer le transport électronique dans une jonction tunnel magnétique, une approche quantique est donc nécessaire. Dans ce cas, l'électron est représenté par sa fonction d'onde. On peut montrer que la densité de présence d'un électron dans la barrière tunnel décroît de manière exponentielle au long de la barrière. En considérant que le spin des électrons est conservé lors du transport, d'après la règle d'or de Fermi, cette probabilité de transition par effet tunnel d'un électron d'une électrode ferromagnétique à l'autre est proportionnelle au produit de la densité d'état initiale dans la première électrode par la densité d'état finale dans la deuxième électrode. Par conséquent, la conductance G est aussi proportionnelle au produit des densités d'état initiale et finale. La conductance pour deux électrodes ferromagnétiques indexées 1 et 2 vérifie :

$$G \propto n_1^{\uparrow} \cdot n_2^{\uparrow} + n_1^{\downarrow} \cdot n_2^{\downarrow} \tag{1.16}$$

où  $n^{\uparrow}$  et  $n^{\downarrow}$  sont les densités des états avec spin up et spin down respectivement.

Dans le cas où les aimantations de deux couches sont parallèles, on a  $n_1^{\uparrow} > n_1^{\downarrow}$  et  $n_2^{\uparrow} > n_2^{\downarrow}$  (Figure 1.7a). Dans le cas où les aimantations sont antiparallèles, on a  $n_1^{\uparrow} > n_1^{\downarrow}$  et  $n_2^{\downarrow} > n_2^{\uparrow}$  (Figure 1.7b). Un changement de configuration des aimantations d'un état parallèle vers un état antiparallèle entraîne donc un changement du courant électrique à travers la barrière tunnel.



FIGURE 1.7 – Schéma de la dépendance de la conductance en fonction de l'orientation relative des électrodes magnétiques. En considérant que le spin de l'électron est conservé lors de la traversée de la barrière tunnel et que la conductance dépend de la densité d'état électronique au niveau de Fermi, les deux configurations parallèle (a) et antiparallèle (b) ne présentent pas les mêmes propriétés de transport électronique.

Dans ce modèle, dit modèle de Jullière, la TMR est définie par :

$$TMR = \frac{G_P - G_{AP}}{G_{AP}} = \frac{R_{AP} - R_P}{R_P} = \frac{2P_1 P_2}{1 - P_1 P_2}$$
(1.17)

 $P_i$  (i = 1 et 2) est la polarisation des électrodes ferromagnétiques définie par :

$$P = \frac{n_i^{\uparrow} - n_i^{\downarrow}}{n_i^{\uparrow} + n_i^{\downarrow}} \tag{1.18}$$

Pour un matériau non magnétique, P=0 tandis que pour un matériau dont les spins au niveau de Fermi sont complètement polarisés on a P=|1|.

Les premières jonctions tunnel magnétiques à température ambiante ne sont apparues qu'en 1995 suite à des travaux de Miyazaki et Moodera [14, 15] avec des magnétorésistance tunnel jusqu'à 24% avec une jonction à base d'alumine. Les valeurs de TMR reportées dans la littérature sont souvent bien plus importantes que les valeurs de GMR. Aujourd'hui, une TMR d'environ 600% a été mesuré à température ambiante pour une jonction à base d'oxyde de magnésium combinée avec des électrodes en CoFeB [16]. Le fait que la TMR soit plus importante que la GMR dans une vanne de spin vient de ce que dans une jonction tunnel, la probabilité pour les électrons de passer d'une électrode à l'autre dépend de manière exponentielle de l'épaisseur de barrière à traverser. Cette probabilité est maximale pour les électrons d'incidence normale à la surface de la jonction. Le courant est donc principalement porté par les électrons de vecteur d'onde orthogonal à l'interface. Il y a donc une sélectivité des vecteurs d'onde qui sert de "filtre" pour certains électrons et qui n'apparaît pas dans la magnétorésistance géante. On observe également une sélectivité liée à la géométrie de fonctions d'onde pour les barrières qui présentent des structures cristallographiques particulières. On verra ces points en plus de détails au Chapitre 2 consacré à l'étude de la barrière tunnel.

#### 1.2.4 Transfert de spin

Nous avons vu que l'aimantation d'un matériau ferromagnétique peut influencer le passage d'un courant d'électrons en raison de leur spin. Cette influence fait que le spin des électrons s'oriente selon l'aimantation du matériau. On parle alors de courant polarisé en spin. Or l'effet réciproque peut aussi avoir lieu, c'est-à-dire, un courant polarisé en spin peut renverser l'aimantation d'une couche ferromagnétique. Dans ce cas, la conservation du moment magnétique implique que lorsque les électrons traversent une couche magnétique, une partie de leur moment magnétique est cédée à l'aimantation, d'où le terme de transfert de spin ou alors *spin torque* car le spin des électrons exerce un couple sur l'aimantation du matériau. Cette idée a été formulé par Berger et Slonczewski qui en 1996 ont proposé une formulation théorique qui prédit qu'un courant polarisé en spin induit une excitation magnétique dans une couche magnétique et peut provoquer le renversement de son aimantation [17, 18]. En 2000, Katine et al. présentent les premières mesures de renversement de l'aimantation grâce à un courant polarisé en spin dans une vanne de spin [19]. Ce phénomène apparaît pour des fortes densités de courant de l'ordre de  $10^6$  à  $10^8 \text{ A/cm}^2$  ce qui nécessite donc la fabrication des piliers de petites dimensions latérales, de l'ordre de 200 nm. Malgré les prédictions de transfert de spin dans des jonctions tunnels magnétiques, les forts courants injectés posent un problème de claquage électrique de la barrière tunnel. Ce n'est que récemment que le spin torque a pu être observé dans les jonctions tunnel grâce à des efforts au niveau technologique pour réduire la résistance de la barrière. En 2004, Huai et al. puis Fuchs et al. ont observé les premiers renversements d'aimantation dans les jonctions tunnels magnétiques [20, 21].

Pour quantifier le transfert de spin, considérons un système avec deux couches magnétiques séparées par un matériau non magnétique. La première couche a une aimantation supposée fixe (couche dure ou de référence) insensible au transfert de spin tandis que l'aimantation de la deuxième électrode peut changer son orientation par effet du courant polarisé en spin (couche douce ou libre). Un tel système peut être obtenu grâce à plusieurs techniques qui seront détaillées dans la Section 1.4 consacrée au développement des mémoires magnétiques. La couche de référence joue le rôle de polariseur de spin des électrons qui la traversent ou qui sont réfléchis par cette même couche. On note  $\vec{P}$  le vecteur de polarisation de spin lors de son passage (ou réfléxion) par la couche de référence. Lorsque les électrons arrivent dans la couche libre d'aimantation  $\vec{M}$ , ils sont polarisés à nouveau par celle-ci et changent leur orientation. La conservation du moment magnétique implique que le moment transversal correspondant au changement de l'orientation des spins, est transmis à l'aimantation de la couche libre. Le couple de transfert de spin  $\vec{\Gamma}$  peut être exprimé par :

$$\vec{\Gamma} = a_j \, \vec{M} \times \left(\vec{P} \times \vec{M}\right) + b_j \, \vec{M} \times \vec{P} \tag{1.19}$$

Le premier terme correspond à la composante longitudinale du transfert de spin et le facteur  $a_j$  dépend du courant (signe et intensité). Le deuxième terme, orthogonal au plan formé par  $\overrightarrow{M}$  et  $\overrightarrow{P}$ , est appelé "field-like term" car il agit comme un champ externe d'amplitude  $b_j$  appliqué dans la direction de la polarisation. Dans des systèmes complètement métalliques, la prise en compte seulement du premier terme de l'Equation 1.19 a permis d'expliquer, au moins qualitativement, les phénomènes expérimentaux dus au transfert de spin [22, 23, 24, 25]. Par contre, il a été démontré théoriquement [26, 27, 28] et puis expérimentalement [29, 30, 31] que, pour les jonctions tunnel magnétiques, le terme lié à la composante perpendiculaire du couple de transfert de spin n'est pas négligeable en comparaison à la composante longitudinale.

Dans la suite de ce Chapitre et dans une première approximation, nous allons négliger le terme  $b_j$  pour expliquer les phénomènes de retournement de l'aimantation par transfert de spin. Par contre, il faut garder à l'esprit que ce terme n'est pas négligeable. D'ailleurs, pour expliquer quelques résultats présentés au Chapitre 4, nous ferons appel à cette composante perpendiculaire.

#### 1.2.5 Dynamique de l'aimantation

Dans cette partie, nous nous intéressons à la manière dont l'aimantation passe d'un état à l'autre lors de son renversement. L'équation du mouvement de l'aimantation par rapport au champ effectif est appelée équation Landau-Lifschift-Gilbert (LLG) [32, 33] :

$$\frac{d \ \dot{M}}{dt} = -\gamma_0 \ \vec{M} \times \vec{H_{\text{eff}}} + \frac{\alpha}{M_S} \ \vec{M} \times \frac{d \ \dot{M}}{dt}$$
(1.20)

Le premier terme représente le couple exercé par le champ effectif  $\overrightarrow{H_{\text{eff}}}$  sur l'aimantation  $\overrightarrow{M}$ . Le champ effectif est la somme du champ extérieur appliqué sur le système et du champ d'anisotropie de matériau.  $\gamma_0$  est le facteur gyromagnétique qui correspond au facteur de proportionnalité entre le moment cinétique et le moment magnétique et sa valeur est  $\gamma_0 = -q/2m$ , q est la charge de l'électron et m sa masse. L'effet de ce terme est un mouvement de rotation uniforme autour du champ effectif. Ce terme est conservatif car le mouvement de précession ne dissipe pas d'énergie et pourrait s'entretenir indéfiniment en absence d'autres couples. Dans un cas réel, l'aimantation va avoir tendance à être amortie en raison les collisions avec les excitations du matériau (phonons, électrons itinérants, etc). Elle revient donc à sa position d'équilibre déterminée par le champ effectif.

On introduit donc un terme d'amortissement qui correspond au deuxième terme de l'équation 1.20. Ce terme d'amortissement peut être assimilé à un frottement visqueux subi par l'aimantation lui permettant de dissiper son énergie et de se stabiliser selon le champ effectif. Le terme de frottement est proportionnel à la vitesse de rotation. Le coefficient  $\alpha$  sans dimension est le coefficient d'amortissement aussi connu comme coefficient de Gilbert ou encore *damping*. Dans cette description, le coefficient d'amortissement est supposé constant et indépendant de l'amplitude des précessions. D'après l'équation 1.20, la trajectoire de l'aimantation est une spirale qui tend progressivement vers l'axe du champ effectif comme le montre la Figure 1.8.



FIGURE 1.8 – Effet des différents couples qui interviennent dans la dynamique de l'aimantation. L'aimantation précesse autour du champ effectif  $\overrightarrow{H_{\text{eff}}}$ . Le mouvement est amorti en raison d'un couple de frottement qui agit comme un dissipateur d'énergie.

#### Effet du transfert de spin dans la dynamique de l'aimantation

Si l'on introduit le premier terme de l'équation 1.19 qui traduit le transfert de spin (nous avons vu dans la Section 1.2.4 que le deuxième est négligeable en première approximation) dans l'équation 1.20 décrivant la dynamique de l'aimantation, on obtient l'équation LLG généralisé notée LLG-ST :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma_0 \vec{M} \times \vec{H_{eff}} + \frac{\alpha}{M_S} \vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt} + a_j \vec{M} \times \left(\vec{P} \times \vec{M}\right)$$
(1.21)

Dans le cas d'un système à aimantations planaires, le vecteur polarisation  $\overrightarrow{P}$  est colinéaire au champ effectif  $\overrightarrow{H_{\text{eff}}}$ . Ainsi le couple de transfert de spin agit suivant le même axe que le couple de frottement.

Selon le signe de  $a_i$ , et donc selon le sens du courant, le transfert de spin peut soit renforcer l'amortissement et stabiliser l'aimantation dans sa position initiale déterminée par  $\overrightarrow{H_{\text{eff}}}$ , soit s'opposer à l'amortissement pour un courant dans le sens opposé. Dans ce dernier cas, si le couple de transfert de spin est inférieur à celui de l'amortissement, le retour à l'état initial aura toujours lieu mais plus lentement. Dans le cas où le transfert de spin est plus important que l'amortissement, l'aimantation va s'éloigner progressivement de sa position initiale jusqu'à passer dans l'état opposé. Finalement, si les deux couples se compensent exactement, la précession sera entretenue. Ce dernier cas est très intéressant pour les applications de type oscillateurs radio-fréquence. La Figure 1.9 illustre les différents couples qui agissent sur l'aimantation sous l'effet du transfert de spin.



FIGURE 1.9 – Différents couples qui agissent sur l'aimantation sous l'effet du transfert de spin. Selon le sens du courant, soit le transfert de spin renforce l'amortissement, soit il fait basculer l'aimantation dans l'autre sens. Si l'amortissement et le transfert de spin se compensent exactement, des oscillations entretenues sont observées.

Le terme  $a_j$  étant proportionnel au courant, le couple de transfert de spin va être plus important que l'amortissement à partir d'une densité de courant critique  $J_c$  proportionnelle à [34] :

$$J_c = \left(\frac{\alpha}{P}\right) \cdot \left(\frac{2e}{\hbar}\right) \cdot t \cdot M_s \cdot H_{eff} \tag{1.22}$$

avec  $\alpha$  le coefficient de Gilbert, P la polarisation du courant en spin,  $2e/\hbar$  le quantum de conductance, t l'épaisseur de la couche,  $M_s$  l'aimantation à saturation et  $H_{eff}$  le champ effectif.

#### 1.2.6 Renversement de l'aimantation par transfert de spin

Si la configuration initiale d'une jonction tunnel magnétique est la configuration antiparallèle, il est possible de renverser l'aimantation de la couche libre par transfert de spin pour passer à une configuration parallèle. De la même façon, il est possible de passer d'une configuration initiale parallèle à une configuration antiparallèle en changeant le sens du courant. Ce mécanisme est le principe des mémoires magnétiques avec une écriture par transfert de spin que nous verrons dans le Paragraphe 1.4.2. Nous pouvons schématiser les différentes transitions par la Figure 1.10.

#### Configuration initiale parallèle Configuration initiale antiparallèle Référence Référence Transition Etat initial le<sup>-</sup> le<sup>-</sup> AP-P favorisée P stabilisé Libre Etat initial Libre Transition îe⁻ **AP** stabilisé **e<sup>-</sup> P-AP** favorisée

FIGURE 1.10 – Schéma représentant les différentes transitions magnétiques générées grâce au transfert de spin. En jouant sur le sens du courant, il est possible de passer de l'état antiparallèle à parallèle et vice-versa.

Si la configuration initiale est l'état antiparallèle (noté AP dans la figure), lorsque les électrons traversent d'abord la couche de référence vers la couche libre, la transition vers l'état parallèle (noté P dans la figure) est favorisée. En revanche, si les électrons passent de la couche libre vers la couche de référence, l'état initial est stabilisé. Maintenant, si la configuration initiale est l'état parallèle, lorsque les électrons arrivent de la couche libre vers le polariseur, la transition vers l'état antiparallèle est favorisée tandis que pour le sens de courant contraire, l'état parallèle est stabilisé. Ces considérations sont basées sur la résolution numérique de l'équation LLG-ST. Pour plus de détail, nous invitons le lecteur à consulter des chapitres d'ouvrage consacrés cette thématique [35].

La Figure 1.11 montre la trajectoire de l'aimantation lorsque le sens du courant favorise la transition magnétique. Le couple lié au transfert de spin est proportionnel à  $\vec{M} \times (\vec{P} \times \vec{M})$ . On remarque que si  $\vec{M}$  et  $\vec{P}$  sont colinéaires, leur produit vectoriel est nul. C'est l'agitation thermique qui induit des petites déviations de l'aimantation permettant d'activer le retournement. Une fois le retournement activé thermiquement, l'aimantation réalise des précessions dans le plan de la couche comme montré la Figure 1.11. L'amplitude de ces oscillations est de plus en plus importante et, à partir d'un certain courant critique, l'aimantation bascule de l'autre côte. Une fois l'aimantation retournée, le courant va donc favoriser l'état final et l'aimantation sera ramenée dans sa nouvelle position d'équilibre.



FIGURE 1.11 – Trajectoire de l'aimantation lorsque le sens du courant favorise le retournement. Extrait de [36].

### 1.3 Couplages dans les couches minces magnétiques

Toutes les considérations qui ont été faites dans les parties précédentes étaient valables pour une couche seule. Quand on considère un empilement avec différentes couches, d'autres interactions peuvent apparaître modifiant les propriétés magnétiques. Dans cette section, nous allons décrire les principaux couplages dans les multicouches magnétiques.

#### 1.3.1 Couplage dipolaire

D'après les équations de Maxwell, le flux magnétique est conservatif (divB=0). Donc le champ magnétique doit fermer les lignes de champ à l'extérieur d'un échantillon. Le couplage dipolaire est un couplage antiferromagnétique représenté sur le schéma de la Figure 1.12. Les lignes de champ se rebouclent sur le bord de la structure. Le champ dipolaire rayonné par la structure dépend notamment de sa forme, des épaisseurs des couches et de leurs aimantations.



FIGURE 1.12 – Schéma illustrant le couplage dipolaire. Les lignes de champ se rebouclent au bord de la structure.

Il est donc important de contrôler les champs qui vont être rayonnés en jouant à la fois sur l'aimantation, sur la forme des piliers et sur la distance entre les couches puisque le champ dipolaire décroît avec la distance. Il faut bien noter que cet effet apparaît quand la couche mince est sous la forme de piliers. En effet, sur les échantillons pleine tranche, c'est-à-dire quand la couche mince n'est pas en forme de piliers, la largeur de l'échantillon peut être considérée comme étant infinie, et donc les lignes de champ vont se boucler à l'infini n'affectant pas les autres couches.

#### 1.3.2 Interaction RKKY

Ce couplage s'observe dans des systèmes constitués de deux couches ferromagnétiques séparées par un métal non magnétique. Ce couplage est connu sous le nom de RKKY en hommage à quatre physiciens ayant contribué à sa compréhension dans les années 1950 : Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida [37, 38, 39]. Les électrons de conduction du métal non magnétique acquièrent une faible polarisation au contact des couches ferromagnétiques. Au long du métal non magnétique, la polarisation de ces électrons décroît et ils subissent une oscillation due à la nature oscillatoire de la fonction d'onde associée à l'électron. Si l'épaisseur de la couche non magnétique est suffisamment faible, typiquement quelques nm, alors les directions des aimantations de couches ferromagnétiques sont couplées par l'intermédiaire de ces électrons. Si après les oscillations dans la couche non magnétique, l'onde électronique présente la même polarisation aux interfaces de la couche non magnétique, alors le couplage est positif et les aimantations ont une orientation parallèle. Si la polarisation est en opposition de phase, alors le couplage est négatif et l'alignement est antiparallèle. L'amplitude de cette interaction oscille en fonction de l'épaisseur e de la couche non magnétique produisant un alignement parallèle ou antiparallèle entre les couches ferromagnétiques. La période de ces oscillations est de l'ordre du nm et la décroissance de cette interaction est en  $1/e^2$ . Sur la Figure 1.13 on peut voir les oscillations du couplage en fonction de l'épaisseur de Ru pour une tricouche de NiCo/Ru/NiCo [40]. Le signe du couplage étant positif, les couches sont couplées antiparallèlement tandis que quand le signe est négatif, le couplage entre les couches est parallèle.


FIGURE 1.13 – Oscillations du couplage RKKY en fonction de l'épaisseur de Ru pour une tricouche à base de NiCo/Ru/NiCo. On observe une succession d'un couplage antiferromagnétique et d'un couplage ferromagnétique [40].

Dans le cas d'un couplage antiparallèle, le système est usuellement appelé antiferromagnétique synthétique (SAF) et il est typiquement utilisé comme couche de référence. Dans ce cas, la couche non magnétique est le ruthénium et son épaisseur a été déterminée pour obtenir un couplage antiferromagnétique. L'avantage d'un tel dispositif est que les lignes de champs se rebouclent à l'intérieur de la bicouche magnétique ce qui permet de diminuer les champs magnétiques rayonnés dans la couche libre pour des structures submicroniques. Ces champs rayonnés peuvent perturber la couche libre et ainsi augmenter son champ de couplage qui est défini par un décalage du cycle d'hystérésis. La Figure 1.14 montre le cycle d'hystérésis de la couche libre d'une jonction tunnel magnétique sous forme de nanopilier elliptique de 80x180 nm<sup>2</sup>. On remarque que pour un couplage RKKY antiferromagnétique de la couche de référence, le champ de couplage de la couche libre est faible (4 Oe) tandis que pour un couplage RKKY ferromagnétique ce champ est beaucoup plus important (280 Oe).



FIGURE 1.14 – Cycle d'hystérésis des jonctions tunnel magnétique sous forme de nanopiliers elliptiques de  $80x180 \text{ nm}^2$ . Le champ de couplage de la couche libre est sensiblement moins important quand référence SAF est antiferromagnétique. Dans ce cas, les lignes de champ se rebouclent et la couche libre est moins perturbée.

Comme pour le couplage dipolaire, l'effet de bouclage de lignes de champ est observé seulement pour les structures sous forme de piliers. En revanche, pour un échantillon pleine tranche, le fait de ne pas avoir un couplage RKKY antiferromagnétique, n'affecte pas le retournement de la couche libre en considérant qu'il n'y a pas d'autre interaction en jeu.

## 1.3.3 Couplage d'échange

Lorsqu'une couche ferromagnétique est adjacente à une couche antiferromagnétique, une interaction d'échange apparaît à l'interface appelée couplage d'échange ou encore exchange bias. Ce couplage crée un champ effectif sur la couche ferromagnétique qui a pour effet de décaler son cycle d'hystérésis. L'origine de ce couplage est une interaction d'échange directe (similaire à celle créée entre les spins voisins d'un matériau ferromagnétique) entre les spins à l'interface des couches antiferromagnétique et ferromagnétique. La figure 1.15 explique comment ce couplage est construit. D'abord il faut considérer que la température de Curie  $T_C$  du matériau ferromagnétique. Cela sera supposé dans la suite de ce manuscrit car cette considération est justifiée pour les matériaux utilisés expérimentalement. Lorsqu'un champ magnétique extérieur est appliqué à une température T comprise entre  $T_N$  et  $T_C$ , les spins du ferromagnétique s'alignent avec ce champ extérieur alors que les spins de l'antiferromagnétique sont dans des directions aléatoires (i). Si le système est refroidi à une température  $T < T_N$  en présence d'un champ magnétique extérieur, les spins de l'antiferromagnétique qui sont à l'interface s'alignent selon l'orientation des spins du ferromagnétique de l'interface. Les autres spins de l'antiferromagnétique s'alignent de façon à avoir une aimantation résultante nulle (ii). Si le champ extérieur est inversé à  $T < T_N$ , les spins du ferromagnétique commencent à tourner. Par contre les spins de l'antiferromagnétique à l'interface exercent un couple microscopique sur les spins du ferromagnétique s'opposant au retournement de l'aimantation. Le champ coercitif nécessaire pour retourner l'aimantation d'une couche ferromagnétique en contact avec une couche antiferromagnétique est donc plus important que dans le cas d'une couche ferromagnétique isolée (iii).



FIGURE 1.15 – Mécanisme du retournement de l'aimantation dans le cas d'un couplage d'échange. Extrait de [41].

En revanche si le champ magnétique extérieur est ramené dans sa position initiale, les spins du ferromagnétique vont commencer à tourner à un champ plus petit que dans le cas précédant à cause de l'interaction avec les spins de l'antiferromagnétique qui exercent maintenant un couple dans la même direction que le champ extérieur (v). La température, inférieure à  $T_N$ , où les deux couches magnétiques sont couplées est appelée température de blocage.

Ce type de mécanisme est utilisé pour piéger l'aimantation d'une couche de référence dans une jonction tunnel magnétique.

## 1.3.4 *Pinholes* ou trous d'épingle

Les *pinholes* ou trous d'épingle sont des endroits où un contact direct apparaît entre les électrodes magnétiques à travers la couche non magnétique. Pour les barrières tunnel magnétiques, cet effet provoque un court-circuit en raison du contact direct entre les électrodes. Ce couplage direct est ferromagnétique car la configuration parallèle est plus stable ne nécessitant pas de retournement de l'aimantation au niveau du contact entre les deux couches. Les *pinholes* apparaissent généralement lorsque l'épaisseur de la barrière est très fine. Ce couplage dégrade la TMR puisque le transport à travers les *pinholes* n'est pas tunnel. Il est donc impératif de bien contrôler la densité de *pinholes* en maîtrisant la rugosité des couches sous-jacentes et les conditions de dépôt.

## 1.3.5 Couplage de Néel ou peau d'orange

Le couplage de Néel ou encore couplage "peau d'orange" apparaît lorsque la rugosité des couches présente une structure morphologique ondulée conforme [42, 43]. Cela entraîne l'apparition de dipôles magnétiques aux interfaces représentés sur la Figure 1.16 pour un empilement du type métal magnétique/matériau non magnétique/métal magnétique. Ce couplage est ferromagnétique car dans la configuration parallèle, les charges magnétiques créées d'une part et d'autre de la couche non magnétique se compensent. L'effet de ce couplage est d'affaiblir la stabilité d'un antiferromagnétique synthétique ou encore de rendre le passage de l'état parallèle à l'état antiparallèle plus difficile à obtenir que le passage de l'état antiparallèle à l'état parallèle ce qui se traduit par un décalage du cycle d'hystérésis.



FIGURE 1.16 – Schéma illustrant le couplage de Néel. Pour que les charges d'un côté et de l'autre de la couche non magnétique se compensent, les aimantations doivent être parallèles. Le couplage de Néel est donc ferromagnétique

# 1.4 MRAM, la mémoire magnétique

La mémoire MRAM (*Magnetic Random Access Memory*) constitue une des voies le plus prometteuses pour créer une mémoire universelle car elle combine la rapidité, une faible consommation électrique et la non-volatilité (les données ne sont pas perdues lorsque l'alimentation électrique est coupée). Dans cette partie, nous allons présenter le principe de fonctionnement de ces mémoires. Ensuite, un bref aperçu des différentes générations de MRAM sera présenté. Finalement nous allons situer les MRAM dans l'ensemble du marché actuel pour mieux comprendre les défis technologiques et économiques qui sont en jeu.

### 1.4.1 Principe de fonctionnement

Comme nous avons vu dans le Paragraphe 1.2.3, l'orientation relative de deux électrodes magnétiques induit deux états résistifs différents. Ce phénomène peut être utilisé pour des applications de type mémoire : l'état de faible résistance (configuration parallèle) permet de coder le "0" tandis que l'état de haute résistance (configuration antiparallèle) permet de coder le "1" du code binaire, base logique de la cellule mémoire. Il est donc important d'obtenir des TMR les plus grandes possibles pour préserver la lisibilité de l'information.

Le bon fonctionnement d'une jonction tunnel magnétique dépend de la capacité à bien contrôler l'orientation des aimantations des couches magnétiques. A cet égard, l'architecture recherchée est une couche dure dite piégée ou de référence qui est fixe et une couche douce dite libre ou de stockage dont l'orientation peut être modifiée. Plusieurs techniques permettent la réalisation de ce système. La première consiste à utiliser des champs coercitifs différents en employant soit des matériaux différents, soit des couches magnétiques d'épaisseurs différentes. Une autre technique est l'utilisation d'un couplage à l'interface de la couche de référence avec un matériau antiferromagnétique. Néanmoins, la méthode la plus utilisé est la combinaison d'un antiferromagnétique sur une des interfaces du SAF.



FIGURE 1.17 – Illustration d'une cellule mémoire à base d'une jonction tunnel magnétique avec une couche libre et une couche de référence SAF piégée par un matériau antiferromagnétique, dans ce cas l'IrMn. La barrière tunnel est typiquement à base de MgO.

Comme nous avons évoqué quand le Paragraphe 1.3.2, l'avantage du SAF est que, dans les piliers submicroniques, les lignes de champs se rebouclent à l'intérieur de la couche sans créer des champs rayonnés qui peuvent perturber le cycle d'hystérésis de la couche libre. L'empilement typiquement utilisé dans ces travaux de thèse est représenté de façon schématique sur la Figure 1.17. Le matériau antiferromagnétique (IrMn) déposé sur le SAF sert à créer un couplage d'échange qui fixe la direction de la couche de référence. La couche libre peut avoir deux orientations possibles par rapport à la couche de référence : parallèle et antiparallèle.

## 1.4.2 Différentes technologies de MRAM

#### MRAM à écriture par champ magnétique

Dans les cellules mémoires de première génération l'écriture de l'information se fait par retournement de l'aimantation de la couche libre grâce aux champs magnétiques induits par les courants passant dans les lignes conductrices inférieures (*bit line*) et supérieures (*word line*) orthogonales entre elles. Cette combinaison de deux champs magnétiques permet d'assurer la sélectivité entre les bits de la matrice mémoire. L'écriture est réalisée grâce à un champ magnétique appliqué à 45° de l'axe d'anisotropie de la couche libre. C'est dans cette configuration que le champ de retournement est minimal d'après le modèle de Stoner-Wolfarth. La lecture se fait en appliquant une tension aux bornes de la jonction pour mesurer la résistance (Figure 1.18). Finalement, les nanopiliers sont de forme elliptique afin d'apporter une anisotropie de forme suffisante pour assurer la bistabilité de l'aimantation de la couche libre.



FIGURE 1.18 – Première génération de MRAM : l'écriture se fait par application d'un champ magnétique. Image basée sur [44].

Ce dispositif demande une grande consommation électrique étant donnée la nécessité d'appliquer deux champs magnétiques pour l'écriture. De plus, le champ d'écriture est inversement proportionnel à la taille du bit, donc la consommation augmente quand la taille du bit diminue. Cette approche est peu adaptée à la densification de l'information car en réduisant la taille de la cellule mémoire, les imperfections sur la forme géométrique deviennent plus critiques, par conséquent la distribution du champ de renversement augmente et il devient plus difficile de sélectionner un seul bit pour écrire. Puisque le champ magnétique est créé sur toute une ligne, on peut provoquer le retournement d'un plot mémoire par erreur sous l'effet de l'agitation thermique ou encore d'un faible champ parasite.

Afin de surmonter le problème de sélectivité à l'écriture, une variante de la première gé-

nération, appelée "Toggle MRAM", a été proposé par Savtchenko [45]. La Toggle MRAM est commercialisé depuis 2006 par Motorola devenue depuis Freescale puis Everspin. La différence avec la version précédente est que dans la Toggle MRAM, la couche libre a une structure antiferromagnétique synthétique. Par conséquent, pour retourner la couche libre, une séquence de champs doit être appliquée. Nous n'entrerons pas en détail sur le mode de fonctionnement, mais nous invitons le lecteur intéressé à consulter les articles de Durlam et al. pour plus de détails [46]. La complexité de la séquence de champs appliqués pour retourner la couche libre dans la technologie Toggle limite considérablement le risque d'écriture involontaire et améliore également la stabilité thermique du système.

Lorsque la dimension des cellules mémoires est réduite à des tailles inférieures à 100 nm, la limite superparamagnétique<sup>4</sup> se rapproche et la Toggle MRAM ne peut pas s'affranchir des problèmes de stabilité de l'information à long terme. La perte de stabilité liée à la réduction de taille doit être compensée par un accroissement de l'anisotropie, ce qui entraîne une augmentation du champ de renversement.

#### MRAM assistée thermiquement : TAS-MRAM

Récemment, une nouvelle approche a été proposée, basée sur l'utilisation de la température pour assister l'écriture des cellules mémoire. Il s'agit de la *Thermally Assisted Switching* MRAM ou TAS-MRAM. Cette technologie a été proposée par le laboratoire Spintec [47, 48] et a été breveté en 2002 [49, 50]. L'approche TAS-MRAM est à l'origine de la création de la start-up Crocus Technology en 2004, dont le but est de commercialiser ce type de mémoire.

Dans la TAS-MRAM, pour empêcher l'écriture des bits dont on ne souhaite pas modifier l'information et augmenter la stabilité thermique, la couche libre est couplée à une couche antiferromagnétique par un couplage d'échange décrit dans la Paragraphe 1.3.3. C'est seulement lorsqu'un courant circule dans la jonction que la température s'élève au dessus de la température de blocage de la couche antiferromagnétique, libérant ainsi la couche libre. Celle-ci peut donc être renversée par l'application d'un seul champ magnétique généré par une seule ligne de champ et sera ensuite refroidie en présence de ce champ (Figure 1.19).

<sup>4.</sup> Lorsque les dimensions d'un échantillon décroissent de manière importante, il arrive que l'agitation thermique soit suffisante pour renverser l'aimantation des particules. Dans ce cas l'aimantation fluctue le long de l'axe facile avec un temps caractéristique de l'ordre de  $10^{-11}$ s. Si la mesure est plus lente que la fluctuation thermique, l'aimantation mesurée est nulle bien que l'échantillon soit ferromagnétique. C'est phénomène s'appelle superparamagnétisme.



FIGURE 1.19 – Principe de la lecture et l'écriture dans une TAS-MRAM. Extrait de [51].

Cette nouvelle technologie présente des avantages par rapport à la première génération MRAM. Les erreurs d'adressage sont fortement réduites puisque la sélection en écriture se fait par la température. La consommation est réduite aussi étant donné qu'un seul champ magnétique est nécessaire à l'écriture. Et enfin, l'anisotropie d'échange avec la couche antiferromagnétique assure la stabilité thermique de l'aimantation.

#### MRAM avec écriture par transfert de spin : STT-MRAM

Cette génération de mémoire s'affranchit des champs magnétiques pour l'écriture en utilisant un courant polarisé en spin. C'est la STT-MRAM pour *spin transfer torque* MRAM. L'écriture de la cellule mémoire se fait par transfert de spin. En jouant sur le sens de courant, on peut écrire les états parallèle et antiparallèle par le mécanisme décrit dans le Paragraphe 1.2.6.

L'avantage de cette technologie repose sur le fait qu'aucune ligne de champ n'est utilisée. La consommation électrique est donc réduite et la densité d'intégration augmente considérablement. L'inconvénient de cette méthode est que, comme nous l'avons évoqué dans le Paragraphe 1.2.6 sur le transfert de spin, les densités de courant sont fortes de l'ordre de  $10^6$  à  $10^8$  A/cm<sup>2</sup> ce qui nécessite la fabrication des jonctions tunnel avec une barrière isolante de faible résistance, donc de très faible épaisseur.

Dans l'approche STT-MRAM, il n'y a pas, à priori, de limite de taille du pilier magnétique. Cependant la condition mentionné dans 1.1.5 (KV = 40 à 60  $k_B T$  avec Kl'anisotropie effective, V le volume de la couche magnétique,  $k_B$  la constante de Boltzmann et T la température) pour garantir la stabilité de l'information stockée de la cellule mémoire limite la réduction de la taille.

#### MRAM à aimantation perpendiculaire

Dans cette quatrième génération de MRAM, l'aimantation des électrodes n'est plus dans le plan des couches mais perpendiculaire au plan. L'avantage d'un tel dispositif est que les plots mémoires n'ont plus besoin d'avoir une forme elliptique pour assurer la stabilité thermique apportée par l'anisotropie de forme. Cela permet de garantir une stabilité thermique plus grande et de s'affranchir de la limite superparamagnétique audessous de laquelle l'aimantation n'est plus stable vis-à-vis de l'agitation thermique. Il est donc possible d'avoir une plus grande densification du réseau de plots grâce à la réduction de la taille. En outre, dans une approche d'écriture par transfert de spin, la densité de courant nécessaire au retournement de l'aimantation de la couche libre est plus faible que dans le cas des aimantations planaires. En effet, le courant critique est proportionnel au champ effectif. Or ce champ a une contribution qui vient de l'anisotropie de forme. Donc si on s'affranchit de l'aspect géométrique des plots, le courant critique diminue.

### 1.4.3 Situation des MRAM sur le marché

Avant de situer les mémoires MRAM sur le marché, nous allons donner un bref aperçu des 3 principales mémoires RAM existants dans le commerce aujourd'hui. Le sens littéral du terme RAM indique la possibilité d'un accès arbitraire aux données, c'est-à-dire, un accès à n'importe quelle donnée, n'importe quand. Par opposition, il existe aussi les mémoires à accès séquentiel, comme par exemple les disques durs, où les données sont nécessairement lues dans un ordre prédéfini ce qui la rend plus lente en comparaison avec les mémoires RAM. Les principaux paramètres que nous utiliserons pour comparer les différents mémoires RAM sont la vitesse d'écriture et de lecture, l'endurance (nombre de cycles de lecture et lecture possibles), le caractère volatile ou non volatile, la capacité ou la densité<sup>5</sup>, la puissance consommée et le coût de fabrication.

**SRAM** (Static Random Acces Memory) : mémoire volatile composée de 6 transistors CMOS, ce qui la rend très rapide avec des temps d'écriture et lecture qui peuvent atteindre 1ns. Par contre, en raison du grand nombre de transistors, la densité est assez faible avec une taille de cellule d'environ 50 F<sup>2</sup>. La SRAM est très endurante avec un nombre de cycles supérieur à  $10^{16}$ . Son coût est important à cause de sa grande surface et elle est réservée aux applications où il faut un temps d'accès court, comme par exemple les mémoires caches dans les ordinateurs qui conservent les informations fréquemment consultées.

**DRAM** (Dynamic Random Acces Memory) : mémoire volatile qui utilise la charge d'un condensateur associée à un transistor pour stocker l'information. La DRAM est relativement rapide avec un temps d'écriture de 50 ns. Vu le nombre réduit de transistors, elle est dense (6 F<sup>2</sup>) et de même endurance que la SRAM. En raison de son faible coût, elle est aujourd'hui la mémoire la plus répandue du marché. L'inconvénient majeur de cette mémoire est que le condensateur se décharge progressivement. L'information doit donc

<sup>5.</sup> Souvent la capacité est exprimé en valeur absolue, par exemple en kbits, Mbits ou Gbits. Par contre, pour le concepteur en microélectronique, on parle plutôt de densité. Pour pouvoir comparer les différentes technologies entre elles indépendamment des contraintes de fabrication, la densité est souvent exprimé en  $F^2$  pour la taille d'une cellule unique, F étant le plus petite dimension d'un transistor.

être rafraîchie de manière périodique (quelques millisecondes) pour ne pas être perdue.

**FLASH** : mémoire non-volatile où l'information est stockée sous forme des charges dans une grille flottante localisée d'un transistor CMOS. Il existe deux grands types de mémoire Flash : la NOR et la NAND. La principale différence entre la NAND et la NOR réside dans leur mode de lecture des données. Alors que la NOR donne un accès direct à n'importe laquelle de ses cellules, la NAND impose un accès séquentiel. L'avantage de cette mémoire est sa densité très élevé avec des tailles de cellules inférieures à  $5F^2$  pour la NAND. Par contre elles sont lentes avec un temps d'écriture et lecture d'environ 0,1 ms. Egalement son endurance est limitée à  $10^5$  cycles en raison du vieillissement de l'oxyde de grille. Son faible coût de fabrication lui confère un quasi-monopole sur le marché des mémoires non volatiles à semiconducteurs. La mémoire FLASH de type NAND est typiquement utilisée pour le stockage de masse dans les baladeurs, clés USB et téléphones portables. La NOR est plutôt utilisée pour stocker des commandes où un accès direct est privilégié.

L'intérêt de l'industrie de la mémoire pour les MRAM provient de plusieurs facteurs. D'abord cette mémoire est non volatile et son endurance est importante (supérieure à  $10^{15}$  en nombre de cycles). Elle est également potentiellement rapide avec des temps caractéristiques qui peuvent atteindre 1 ns pour faire basculer l'aimantation de la couche libre. La MRAM associe donc les caractéristiques telles que l'endurance et la rapidité de la SRAM et de la DRAM avec la non volatilité de la FLASH. A ces attributs se rajoutent l'insensibilité aux rayonnements ionisants, cruciale pour les applications spatiales et militaires.

Il est important de noter que d'autres mémoires concurrencent la MRAM à long terme, en particulier la mémoire à changement de phase PCRAM (*Phase Change Random Access Memory*). Cette mémoire non-volatile se base sur le changement de phase des verres de chalcogénures. Lorsqu'on courant électrique circule dans le matériau, celuici provoque une hausse de température par effet Joule. Si la température dépasse la température de fusion du matériau, ce dernier devient amorphe. Ce changement de phase cristalline/amorphe induit un changement de résistance qui permet de coder le "0" et le "1".

Des produits MRAM sont déjà commercialisés industriellement par Everspin, ce qui a permis de démontrer la validité de l'approche et incité la plupart des grands groupes industriels du domaine de la microélectronique à projeter une mise sur le marché des produits MRAM. Par contre la capacité de stockage reste encore limitée, autour de la dizaine de mégabits en raison principalement des problèmes liés aux champs magnétiques nécessaires à écrire la cellule mémoire. L'augmentation de la densité d'information est donc un enjeu important aujourd'hui. Le passage à une écriture par transfert de spin est une solution envisageable pour augmenter la densité d'intégration. La Figure 1.20 montre un tableau comparatif des principaux types de mémoires.

	SRAM	DRAM	FLASH	MRAM	STT- MRAM
Non-volatilité	non	non	oui	oui	oui
Taille cellule (F <sup>2</sup> )	50 - 120	6 - 10	5 - 10	16 - 40	6 – 20
Temps de lecture (ns)	1 - 100	30	10 - 50	3 - 20	2 - 20
Temps d'écriture et effacement (ns)	1 - 100	15	1µs -10ms (NOR) 1 ms - 0.1ms (NAND)	3 - 20	2-20
Endurance	10 <sup>16</sup>	10 <sup>16</sup>	10 <sup>5</sup>	>10 <sup>15</sup>	>10 <sup>15</sup>
Consommation électrique	Faible	Faible	Très grande	Grande	Faible
Tension nécessaire	non	3V	6-8 V (NOR) 16-20V (NAND)	3∨	<1.5V
Limites	Condensateur	6 transistors	Barrière tunnel	Densité de courant	Densité de courant
	Produits existants				Prototype

FIGURE 1.20 – Tableau récapitulatif des principales mémoires dans le marché [52].

# 1.5 Objectif de la thèse : MRAM à écriture précessionnelle

L'objectif de cette thèse de doctorat est l'élaboration d'une jonction tunnel magnétique à aimantation planaire qui intègre une couche magnétique avec une aimantation perpendiculaire au plan des couches (Figure 1.21). La couche avec aimantation hors du plan joue le rôle de "polariseur perpendiculaire" pour les électrons qui la traversent. Le principe de fonctionnement est le suivant. Les éléctrons qui passent à travers la jonction vont être polarisés par la couche à aimantation perpendiculaire et leurs spins seront donc orientés hors du plan. Quand ces électrons arrivent dans la couche libre, ils vont exercer un couple sur son aimantation. L'aimantation de la couche libre sort donc du plan et, pour des densités de courants suffisantes, elle va précesser hors du plan pour ensuite se relaxer dans le plan une fois que le courant électrique sera coupé.

L'idée est ici d'utiliser cette précession pour écrire une cellule mémoire en contrôlant la durée d'impulsion de courant pour faire en sorte que l'aimantation de la couche libre ne fasse qu'une demi-précession, donc commute parallèlement ou antiparallèlement par rapport à l'aimantation de la couche de référence. Nous détaillerons ce mécanisme d'écriture dans le Chapitre 4. Ce mode d'écriture est appelé *écriture précessionnelle*. L'avantage est que ces précessions sont extrêmement rapides avec une période inférieure à 500 ps ce qui permettra de gagner un ordre de grandeur sur le temps d'écriture actuel et ainsi réaliser une cellule mémoire ultra-rapide.



FIGURE 1.21 – Schéma qui montre l'intégration d'un polariseur perpendiculaire dans une jonction tunnel magnétique. Des oscillations hors du plan de l'aimantation de la couche libre sont induites grâce au transfert de spin venant du polariseur perpendiculaire.

Les effets de précession de la couche libre ont déjà été observés pour des systèmes similaires qui intègrent un polariseur perpendiculaire dans une vanne de spin [24, 53]. L'intégration d'un polariseur perpendiculaire sur une jonction tunnel permet d'augmenter considérablement le signal de sortie par rapport à une vanne de spin. La validation de ce concept est donc une porte ouverte à la compréhension des mécanismes physiques du transport tunnel et de la dynamique de l'aimantation.

Le Chapitre 2 sera consacré à l'optimisation de la barrière tunnel. Ensuite, le Chapitre 3 montrera les différentes étapes qui ont permis d'intégrer le polariseur perpendiculaire dans une jonction tunnel magnétique. Finalement, dans le Chapitre 4 nous présenterons les résultats électriques sur les nanopiliers validant le concept d'écriture précessionnelle.

# Chapitre 2

# Optimisation de la barrière tunnel

Dans la fabrication des jonctions tunnel magnétiques, une des étapes les plus critiques est l'élaboration de la barrière tunnel. Le premier paramètre important est la TMR qui doit être la plus grande possible pour garantir une bonne lisibilité de l'information. Le deuxième paramètre est la résistance de la barrière qui doit être faible pour éviter le claquage électrique de la jonction tunnel. Typiquement, la grandeur utilisée pour caractériser la résistance de la barrière tunnel est le produit résistance × surface (*resistance area product* ou  $\mathbb{R} \times \mathbb{A}$ ) généralement exprimé en  $\Omega.\mu m^2$ . L'avantage de cette grandeur est qu'elle est indépendante de la taille de l'échantillon.

Les valeurs de R×A citées dans la littérature sont toujours pour une configuration parallèle. Pour des applications qui utilisent des effets de transfert de spin, les densités de courant qui passent à travers la barrière tunnel pour assurer le basculement de l'aimantation sont de l'ordre  $10^6$  à  $10^7$  A/cm<sup>2</sup>. Pour qu'un tel courant puisse traverser la jonction tunnel sans provoquer le claquage électrique de la barrière, le R×A de la barrière doit être l'ordre de 10  $\Omega.\mu$ m<sup>2</sup>. En effet, à partir de la loi d'ohm nous pouvons écrire :

$$U = R \times A \cdot j \tag{2.1}$$

où U est la différence de potentiel appliquée à la jonction et j la densité de courant. Or la valeur de U est fixée à une valeur maximale de l'ordre de 1,5 à 3 V au delà de laquelle il y a claquage de la jonction. Donc pour qu'un courant de l'ordre de 10<sup>7</sup> A/cm<sup>2</sup> traverse la barrière tunnel sans provoquer le claquage, le produit R×A de la barrière tunnel doit être de l'ordre de quelques  $\Omega.\mu m^2$ . Cela implique la fabrication de barrières avec une épaisseur de l'ordre de quelques angströms. La barrière tunnel doit être donc très fine, continue et présenter une faible densité des points conducteurs (*pinholes*) susceptibles de provoquer des courts-circuits et ainsi réduire la TMR. Il est donc essentiel de bien contrôler les paramètres de dépôt lors de la fabrication de barrières tunnel. Dans le cadre de ces travaux, beaucoup d'efforts ont été consacrés à l'amélioration de la qualité de la barrière tunnel. En raison de l'importance de l'optimisation de la barrière tunnel, ce chapitre lui est destiné.

D'abord, un état de l'art sur les différentes barrières tunnel sera présenté. Ensuite

les méthodes de caractérisation électrique et magnétiques que nous avons utilisées seront exposées. Puis, les étapes d'optimisation des paramètres comme la température de recuit, l'épaisseur de la barrière, la pression, le temps d'oxydation seront présentées. Nous allons présenter les résultats expérimentaux pour deux types de barrière tunnel à base d'oxyde de magnésium (MgO) : la première préparée par pulvérisation cathodique radio-fréquence (RF) et la deuxième préparée par un processus d'oxydation d'une couche de magnésium.

# 2.1 Etat de l'art des barrières tunnel magnétiques

Grâce au travaux de Miyazaki et Moodera en 1995, la première TMR a pu être observée à température ambiante avec une barrière tunnel à base d'oxyde d'aluminium ou alumine (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) [14, 15]. Depuis cette découverte, l'alumine est resté le matériau le plus utilisé pour les barrières pendant plusieurs années. Des études concernant la température de recuit et le choix des électrodes avec une forte polarisation comme les alliages en CoFe et CoFeB, ont permis d'atteindre des valeurs de TMR de l'ordre de 70 à 80% [54, 55]. Les meilleurs résultats obtenus au laboratoire Spintec pour des jonctions à base d'alumine présentent une TMR de 51% et un R×A de 21  $\Omega.\mu m^2$  pour un recuit à 300°C avec des électrodes à base de CoFeB. Pour les plus faibles valeurs de R×A, de l'ordre de 10  $\Omega.\mu m^2$ , la TMR vaut environ 28% pour un recuit à 250 °C [56].

Depuis quelques années, des efforts importants se sont concentrés sur la réalisation de jonctions tunnel à base d'oxyde de magnésium, encouragés par des prédictions théoriques qui prévoient la possibilité d'atteindre des TMR de l'ordre de 1000% avec ce type de jonction grâce à la nature cristalline de l'oxyde de magnésium [57, 58]. En 2004, deux équipes de recherche ont montré indépendamment que des jonctions du type Fe/MgO/Fe élaborées par épitaxie par jet moléculaire et par pulvérisation cathodique peuvent atteindre des TMR de l'ordre de 200% à température ambiante [59, 60].

La différence entre une barrière à base de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et de MgO est leur nature cristalline. L'alumine reste amorphe et par conséquent, la barrière ne possède pas de symétrie cristallographique. Le transport tunnel à travers la barrière est donc insensible aux symétries de l'onde évanescente associée aux électrons qui traversent la barrière tunnel. La barrière à base de MgO est cristalline. Dans le cas particulier d'une tricouche Fe/MgO/Fe, le MgO croît sur le fer qui a une structure cubique centré (*bcc*). Le faible désaccord paramétrique entre les mailles du Fe et du MgO d'environ 3% permet d'obtenir une très bonne épitaxie des couches dans la direction de croissance 001. Les symétries cristallines du fer font apparaître trois types de bandes électroniques combinaisons linéaires des orbitales atomiques s, p et  $d : \Delta_1, \Delta_2$ , et  $\Delta_5$ . Il existe un taux d'atténuation différent pour chaque symétrie dans la barrière. Zhang et al. [61] ont montré que le taux de décroissance dans la barrière tunnel des électrons majoritaires) est beaucoup plus faible que pour les autres symétries (électrons minoritaires). Le courant est principalement porté par les électrons  $\Delta_1$ . Il a donc une sélectivité supplémentaire grâce à la symétrie de la barrière qui permet d'atteindre des valeurs de TMR beaucoup plus importantes pour les barrières cristallines. La Figure 2.1 illustre les différents mécanismes du transport tunnel pour une barrière amorphe d'alumine et pour une barrière cristalline à base de MgO.



FIGURE 2.1 – Schéma illustrant le transport tunnel pour une barrière amorphe à base de  $Al_2O_3$  (a) et pour une barrière cristalline à base de MgO (b). Grâce à la nature cristalline de la barrière, une sélectivité associée aux symétries cristallines agit comme un "filtre" supplémentaire au transport tunnel. Extrait de [62].

Des calculs sur la structure électronique d'une barrière de MgO permettent de comprendre cette sélection en fonction de la symétrie de la fonction d'onde [61]. Sur la Figure 2.2, les densités d'états des électrons dans les configurations parallèle et antiparallèle sont représentées pour les spins majoritaires et minoritaires dans chaque couche. En configuration parallèle, pour le canal majoritaire, le transport est dominé par  $\Delta_1$  qui s'atténue beaucoup moins que les autres symétries. Tandis que pour le canal minoritaire, la symétrie  $\Delta_5$  domine. En configuration antiparallèle, les états majoritaires  $\Delta_1$  ne trouvent pas d'état correspondant dans l'électrode réceptrice. Ils sont totalement réfléchis par la barrière. Cette asymétrie pour les différentes fonctions d'onde est à l'origine des fortes magnétorésistances observées dans les jonctions avec une barrière cristalline.



FIGURE 2.2 – Densité d'états au niveau de Fermi d'une jonction tunnel à base de FeCo/MgO/FeCo pour des configurations parallèle et antiparallèle. Le filtrage créé par la nature cristalline de la barrière renforce l'effet de magnétorésistance tunnel. Extrait de [61].

Il est important de noter que, dans le modèle de Jullière (cf. 1.2.3), aucune considération sur les symétries des électrons n'a été faite pour décrire les phénomènes de magnétorésistance tunnel. Ce modèle est valable pour expliquer le transport tunnel à travers une barrière amorphe, par exemple l'alumine. Néanmoins une description plus approfondie est nécessaire pour les barrières cristallines.

Les importantes valeurs de TMR sont caractéristiques des électrodes à base des métaux 3d avec une structure cubique centrée (001) comme le fer, le cobalt et également leur alliages comme par exemple FeCo et CoFeB. Les prédictions théoriques des grandes valeurs de TMR sont valables pour toutes les barrières cristallines comme le ZnSe(001) [63] et le SrTiO<sub>3</sub>(001) [64]. A ce jour, aucune valeur importante de TMR n'a été pas observée sur ces systèmes en raison de la difficulté technologique pour l'élaboration des barrières avec une bonne qualité structurale.

Depuis le développement des premières jonctions à base de MgO, des efforts technologiques importants ont été faits dans le but d'augmenter le signal de TMR. A ce jour, la plus grande valeur rapportée dans la littérature est une TMR supérieure à 600% à température ambiante pour une jonction à base d'oxyde de magnésium combinée avec des électrodes en CoFeB [16]. En revanche, dans ce cas, le R×A reste encore important supérieur à  $10^4 \ \Omega.\mu m^2$ . Néanmoins des jonctions tunnel qui gardent un bon compromis entre une TMR supérieure à 100% et un faible R×A inférieur à 10  $\ \Omega.\mu m^2$  ont été développées, par exemple les résultats reportés par Maehara et al. montrent une TMR de 170% et un R×A de 1  $\ \Omega.\mu m^2$  [65].

# 2.2 Techniques de caractérisation

# 2.2.1 Caractérisation électrique : méthode CIPT

L'objectif de la caractérisation électrique est de mesurer le comportement résistif d'une jonction tunnel dans ses deux configurations caractéristiques : parallèle et antiparallèle, afin d'estimer les valeurs de TMR et de  $R \times A$ . La méthode de mesure classique consiste à réaliser une lithographie de l'échantillon pour le mettre sous forme de pilier et ainsi intégrer des contacts sur les électrodes supérieure et inférieure pour faire circuler un courant perpendiculaire au plan de couches, méthode dite CPP (Current Perpendicular to the Plane). Avec cette technique, l'estimation de la TMR est directe, mais elle demande des étapes de lithographie laborieuses et coûteuses qui augmentent ainsi les risques de dégradation des jonctions. Une alternative à ce problème a été utilisée. Cela consiste à une méthode dite CIPT (Current-In-Plane Tunneling) qui peut être mise en place sans qu'aucune étape de lithographie ne soit nécessaire.

Dans la méthode de mesure CIPT le courant passe dans le plan des couches. Cette technique est utilisée en association avec une technique de mesure à quatre pointes où deux pointes sont destinées à injecter le courant dans la jonction et les deux autres à mesurer la tension à la surface de l'échantillon. L'avantage de la mesure à quatre pointes est l'élimination de la résistance de contact entre la pointe et l'échantillon. Une fois le courant injecté, une partie du courant va traverser l'électrode supérieure alors que l'autre partie parcourt l'électrode inférieure en traversant la barrière. Ce système peut être modélisé par le circuit électrique représenté par la Figure 2.3. Un changement de l'état résistif des barrières sera indiqué par la mesure de la tension entre les pointes.



FIGURE 2.3 – Méthode CIPT : schéma de la trajectoire du courant à travers la jonction.

Un modèle théorique proposé par Worledge et Trouilloud permet d'interpréter les résultats des mesures CIPT et d'en déduire les valeurs de TMR et de  $R \times A$  [66, 67]. Dans ce modèle, la résistance R est donnée par :

$$R = \frac{V}{I} = \frac{R_T \cdot R_B}{R_T + R_B} \cdot \frac{1}{2\pi} \left\{ \frac{R_T}{R_B} \left[ K_0 \left( \frac{a}{\lambda} \right) + K_0 \left( \frac{d}{\lambda} \right) - K_0 \left( \frac{b}{\lambda} \right) - K_0 \left( \frac{c}{\lambda} \right) \right] + \ln \left( \frac{bc}{ad} \right) \right\}$$
(2.2)

avec

$$\lambda = \sqrt{\frac{R \times A}{R_T + R_B}} \tag{2.3}$$

où  $R_T$  est la résistance de l'électrode supérieure (top resistance),  $R_B$  la résistance de l'électrode inférieure (bottom resistance),  $K_0$  est la fonction de Bessel modifiée de deuxième espèce à l'ordre zéro, a, b, c et d les distances entre les pointes telles que décrites par la Figure 2.4. A partir de l'expression de la résistance en configuration parallèle et antiparallèle, il est possible d'en déduire une expression pour la TMR en fonction de la distance entre les pointes.



FIGURE 2.4 – Quatre pointes non alignées.

Dans ce modèle, les valeurs de  $R_B$ , de  $R_T$ , des distances interpointes et du R×A sont des paramètres du système. La valeur du R×A utilisée comme paramètre est une simple estimation des valeurs qui seront données par l'ajustement numérique. La Figure 2.5 montre les résultats des ajustements numériques en fonction de la distance entre les pointes. L'unité utilisée pour mesurer la résistance est l'ohm/carré<sup>1</sup>. On remarque que les points expérimentaux sont en bon accord avec les points théoriques donnés par le modèle.

<sup>1.</sup> Unité "ohms par carré" représentée par le symbole  $\Omega$ /carré est utilisée pour mesurer la résistivité d'une couche métallique. Cette mesure est équivalente à la résistance d'une surface carrée dotée d'électrodes aux deux côté opposés et elle est indépendante de la taille latérale et des unités dimensionnelles du carré. Dans le cas d'une mesure à quatre pointes, les distances entre les pointes supposées égales, la relation pour passer de la résistance par carré  $R_{carre}$  exprimée en  $\Omega$ /carré à la résistance R exprimé en  $\Omega$  est  $R_{carre} = (\pi/\ln 2) \cdot R$  soit  $R_{carre} = 4.532 \cdot R$ .



FIGURE 2.5 – Ajustement numérique suivant le modèle de Worledge et Trouilloud. Les courbes représentent la résistance et la TMR en fonction de la distance entre les pointes. Le graphe a été obtenu pour une jonction à base de MgO.

La TMR est donnée par le maximum du pic de l'ajustement numérique montré dans la Figure 2.5a. Il est important de noter que le maximum du pic de la TMR dépend de  $R_T$  et  $R_B$ . En effet, plus  $R_T$  est grand devant  $R_B$ , plus la pénétration du courant au travers de la barrière sera favorisé et des effets plus importants de magnétorésistance seront mesurés. Il est donc nécessaire de bien ajuster la résistance des électrodes. Le rapport que nous utilisons ici  $R_T/R_B=30$  est suffisant pour avoir une bonne estimation de la TMR. L'interprétation de la courbe de la Figure 2.5b se fait par un raisonnement simple en utilisant le circuit schématique décrit précédemment sur la Figure 2.4 où deux chemins sont possibles pour le passage du courant : par l'électrode supérieure ou par l'électrode inférieure. Si la distance entre les pointes est faible, la résistance de l'électrode supérieure est faible et la plus grande partie du courant passera par celle-ci. Dans ce cas, la résistance mesurée vaut  $R_T$ . D'un autre côté, si la distance inter-pointes devient plus importante, les deux chemins sont équivalents et la résistance de la barrière est petite en comparaison aux résistances des électrodes. Dans ce cas, la résistance équivalente est d'un circuit électrique en parallèle avec  $R_T$  et  $R_B$ , soit  $(R_T \cdot R_B)/(R_T + R_B)$ . Ce raisonnement est utilisé pour estimer les valeurs de  $R_T$  et de  $R_B$  à partir des points expérimentaux.

La mesure a été faite grâce à une machine de la société CAPRES destiné à la caractérisation électrique CIPT des jonctions tunnel. La distance entre les pointes varie de 1,5 à 8,25  $\mu$ m. Cet appareil est la propriété de Crocus-Technology.

#### 2.2.2 Caractérisation magnétique : VSM

Les propriétés magnétiques des jonctions tunnel ont été caractérisées à l'aide d'un magnétomètre VSM (*Vibrating Sample Magnetometer*) qui mesure l'aimantation de l'échantillon en fonction du champ magnétique appliqué.

Le principe de fonctionnement est la mesure du flux  $\phi$  induit par le déplacement périodique de l'échantillon qui est placé au centre d'un bobinage. On fait vibrer verticalement selon l'axe z l'échantillon avec une amplitude constante. La tension e induite dans les bobines de détection par un échantillon de moment magnétique  $\mu$  est donnée par :

$$e = -\frac{d\phi}{dt} = -\mu \frac{d\left(\frac{B}{I}\right)}{dz} \cdot \frac{dz}{dt}$$
(2.4)

Le rapport B/I ne dépend que de la bobine de détection qui produit un champ magnétique B quand elle est parcourue par un courant I. De cette façon, nous avons donc accès au moment magnétique puisque ce dernier est directement proportionnel à la tension créée par la vibration de l'échantillon.

Le cycle magnétique normalisé donné par le VSM d'une jonction tunnel est représenté sur la Figure 2.6a en fonction du champ appliqué. Dans cet empilement, la couche de référence se trouve au-dessus de la barrière tunnel et est composée d'un SAF couplé par échange avec un matériau antiferromagnétique (IrMn). Les différentes transitions magnétiques sont représentées sur le cycle. Les aimantations de la couche libre et de la couche de référence sont représentées par les flèches sur le graphe. Le champ de saturation correspond au champ où l'aimantation de toutes les couches sont orientées dans le même sens. Le champ d'échange représente le champ de décalage de la couche de référence en raison du couplage d'échange avec l'IrMn. Les champs de spin flop correspondent aux champs où les aimantations des couches du SAF, initialement alignées antiferromagnétiquement, commence à tourner pour passer à une configuration ferromagnétique grâce au champ extérieur. La Figure 2.6b montre un agrandissement du cycle d'hystérésis de la couche libre. Le champ de couplage est le décalage du cycle d'hystérésis de la couche libre dû aux défauts dans la barrière (pinholes, rugosité) ou encore aux champs rayonnés par la couche de référence. Le champ coercitif est le champ nécessaire pour faire basculer l'aimantation de la couche libre.



FIGURE 2.6 – Cycle d'hystérésis donné par le VSM d'une jonction tunnel à base de MgO avec une couche de référence sur la barrière tunnel. Cette couche est formée par un SAF piégé par un matériau antiferromagnétique (IrMn).

# 2.3 Technique de dépôt : pulvérisation cathodique

Les deux techniques les plus répandues pour l'élaboration des multicouches magnétiques sont l'épitaxie par jet moléculaire et la pulvérisation cathodique. Le principe de ces deux méthodes de dépôt est similaire : émission de particules à partir d'une cible qui vont se déposer sur un substrat pour former les couches minces.

Dans le cas des dépôts réalisés par épitaxie par jet moléculaire, les atomes de la cible sont arrachés grâce au chauffage de celle-ci. Les très basses pressions lors du dépôt généralement de l'ordre de  $10^{-10}$  mbar permettent aux atomes provenant de la cible de ne subir aucune collision avant de se déposer sur le substrat. De cette façon, la croissance est faite couche atomique par couche atomique. Ce type de technique permet donc la fabrication des échantillons de très bonne qualité structurale. Puisque cette technique est relativement lente et que les équipements sont très lourds, elle est surtout utilisée pour des études à caractère fondamental.

A l'inverse de l'épitaxie par jet moléculaire, la pulvérisation cathodique est beaucoup plus rapide à mettre en oeuvre. Les pressions de base de l'ordre de  $10^{-6}$  à  $10^{-8}$  mbar sont plus élevées que celles utilisées par l'épitaxie par jet moléculaire. Cette technique est très répandue dans les laboratoires de recherches en raison de la possibilité de faire varier rapidement les paramètres de dépôt. Cette méthode est également largement utilisée dans l'industrie des dispositifs magnétiques, ce qui facilite les transferts technologiques. Les échantillons fabriqués lors de ces travaux de recherche ont été élaborés par pulvérisation cathodique.

La pulvérisation cathodique consiste à placer le substrat et la cible (matériau à déposer) dans une chambre sous vide. Ensuite, une tension négative est appliquée entre la cible et les parois de la chambre dans une atmosphère raréfiée permettant la création d'un plasma, typiquement d'argon, dans l'enceinte. Les charges positives créées dans le plasma sont attirées par la cible à une vitesse élevée (Figure 2.7). L'impact de la collision permet d'éjecter les atomes neutres de la cible qui vont se déposer sur le substrat. La décharge est auto-entretenue par les électrons secondaires émis par la cible. Ces électrons, lors de collisions inélastiques, transfèrent une partie de leur énergie cinétique aux atomes d'argon qui s'ionisent.



FIGURE 2.7 – Schéma illustrant la pulvérisation cathodique. Les ions positifs sont attirés vers la cible. Le choc des collisions arrache les atomes de la cible qui vont se déposer sur le substrat.

Un dispositif magnétron constitué de deux aimants permanents situés sous la cible permet d'augmenter la densité ionique au voisinage de la cible et donc d'augmenter l'efficacité du dépôt.

Le mode de fonctionnement en courant continu (DC) s'applique essentiellement aux métaux. Les matériaux isolants ne peuvent pas être déposés par ce procédé car l'accumulation de charges positives apportées par les ions d'argon à la surface de la cible crée un champ électrique qui repousse les ions du plasma. Ce phénomène réduit considérablement l'efficacité de la pulvérisation. Pour éviter cela, le champ électrique continu est remplacé par un champ électrique alternatif à haute fréquence de l'ordre du mégahertz. On peut ainsi entretenir la décharge dans la chambre. Ce type de dépôt est appelé RF pour radio-fréquence qui fait référence à la fréquence utilisée pour entretenir le plasma.



Intérieur de la machine de dépôt

FIGURE 2.8 – Photographie de l'intérieur de la chambre de dépôt avec ses 12 cibles.

Les dépôts ont été réalisés grâce à un bâti de pulvérisation cathodique de marque Actemium. Le pression de base de la machine est de  $10^{-7}$  mbar et la pression de travail est de  $2.10^{-3}$ . La photographie de la Figure 2.8 montre l'intérieur de cette machine de dépôt avec douze cibles. Stéphane Auffret, responsable de la machine, a réalisé les dépôts au cours des travaux de recherche présentés dans ce manuscrit.

# 2.4 Empilement standard

L'empilement magnétique standard utilisé dans la suite de ce chapitre est représenté sur la Figure 2.9. La couche tampon est à base de CuN avec 60 nm d'épaisseur déposée sur un substrat de silice. La couche de couverture est constituée de Cu 3/Ru 7 (épaisseur en nm). Le choix et les épaisseurs des matériaux qui composent ces couches sont adaptés aux mesures électriques. Les deux couches en contact avec la barrière tunnel sont à base de CoFeB. Ce matériau est typiquement utilisé comme électrode avec les barrières à base de MgO. La composition de cet alliage est  $Co_{60}Fe_{20}B_{20}$  (en pourcentages atomiques). Puisque le CoFeB est amorphe lors du dépôt, on peut l'intercaler entre deux couches dont l'arrangement cristallin n'est pas compatible. Le MgO déposé sur le CoFeB va croître naturellement avec une texture 001. Le recuit après dépôt favorise la diffusion d'une partie du B de l'alliage. Par conséquent, le CoFeB va cristalliser selon la texture 001. Le deuxième avantage du CoFeB est sa faible anisotropie que lui confère un caractère beaucoup plus doux en comparaison avec d'autres matériaux comme le CoFe. Il est donc très souvent utilisé pour la couche libre pour faciliter le retournement par transfert de spin.

La couche de référence est composée d'une couche antiferromagnétique synthétique à base de CoFeB 3/Ru 0,9/Co 2 et d'une couche d'IrMn 7 (en nm). L'épaisseur de Ru a été choisie de façon à avoir un couplage RKKY antiferromagnétique. L'IrMn est le matériau antiferromagnétique choisi pour piéger le SAF. Sa composition est de  $Ir_{80}Mn_{20}$ (en pourcentages atomiques). Le couplage d'échange est créé lors du recuit après le dépôt (cf. 1.3.3).



FIGURE 2.9 – Empilement caractéristique des jonctions tunnel utilisées dans cette étude.

*Note*: Les valeurs quantitatives des paramètres que nous allons présenter dans la suite du chapitre sont caractéristiques de notre bâti de dépôt. Ces valeurs seront difficilement les mêmes lors de la réalisation des barrières dans un autre bâti de dépôt. Néanmoins les démarches d'optimisation ainsi que les interprétations physiques sont être transposables.

# 2.5 Barrières MgO RF

La première barrière étudiée est déposée directement à partir d'une cible de MgO. Dans ce cas, on utilise une source RF en raison de la nature isolante du matériau. La puissance appliquée à la cible est de 150 W et la pression d'argon dans l'enceinte est de  $2.10^{-3}$  mbar avec un débit de 80 sccm.

Une coupe TEM (Microscopie Electronique à Transmission) haute résolution d'un échantillon est représentée sur la Figure 2.10. Le mode d'imagerie utilisé est le mode en champ clair. Dans ce cas, le contraste dépend du numéro atomique des constituants de l'échantillon. La probabilité qu'un électron subisse un choc élastique lors de sa traversée dans l'échantillon augmente avec le numéro atomique (Z) des constituants du matériau et de son épaisseur. Les électrons qui subissent ces chocs sont déviés avec de grands angles et ne seront pas détectés. C'est pour cette raison que les éléments lourds apparaissent plus sombres et les éléments légers plus clairs. De même, les zones de l'échantillon les plus épaisses apparaissent plus sombres et les zones plus fines plus claires. Sur l'image, on distingue clairement toutes les couches de l'empilement. L'échantillon a été recuit à 340°C pendant 90 minutes avec un champ planaire appliqué. L'épaisseur de la barrière est de 1,2 nm. On constate que, sur l'échelle étudiée, la couche d'oxyde est homogène, avec une faible rugosité et continue sans la présence visible de *pinholes*.





FIGURE 2.10 – Image TEM haute résolution d'une jonction tunnel magnétique à base de MgO RF. L'échantillon a été recuit à une température de 340°C pendant 90 minutes sous champ planaire appliqué. La barrière, d'épaisseur 1,2 nm, est continue et homogène.

Les paramètres qui seront optimisés pour les barrières à base de MgO RF sont :

- L'épaisseur du MgO;
- L'effet des insertions de Mg au-dessous, au-dessus et des deux côtes des la barrière tunnel ainsi l'épaisseur de l'insertion de Mg;
- La température de recuit.

## 2.5.1 Effet de l'épaisseur de MgO

Notre machine de dépôt permet de faire le dépôt dans deux géométries différentes. La première consiste à placer le substrat à l'aplomb de la cible (Figure 2.11a). Cette technique permet d'avoir une épaisseur constante de la couche déposée sur toute la plaque (pour un diamètre de substrat de 100 mm). En outre, pour garantir une meilleure homogénéité des couches, le dépôt est fait en rotation du substrat à une vitesse de 600°/s. Cette géométrie est appelée *on-axis*. La deuxième technique, appelé *off-axis*, consiste à ne pas placer le substrat en face de la cible. Dans cette configuration, le centre du substrat est à 100 mm du centre de la cible comme le montre la Figure 2.11b. Si le dépôt est fait sans rotation, cette géométrie permet, en un seul dépôt, d'avoir un gradient de l'épaisseur. Les mesures aux rayons X par la technique de franges de Kiessig ont été utilisées pour calibrer l'épaisseur de la couche déposée.



FIGURE 2.11 – Schéma illustrant les deux types de géométries : *on-axis*, où le substrat est en face de la cible et *off-axis*, avec le substrat décalé par rapport à la cible. Si le dépôt est fait sans rotation, la géométrie *off-axis* permet d'avoir un gradient d'épaisseur sur la couche déposée.

Avec la géométrie *off-axis*, le profil du gradient est quasi-linéaire au long de la plaque comme nous pouvons voir sur le graphe de la Figure 2.12 où l'épaisseur de MgO est tracée en fonction de la position sur une plaque de 100 mm. L'épaisseur nominale pendant le dépôt est de 50 nm.



FIGURE 2.12 – Epaisseur de MgO au long d'une plaque 100 mm. Le dépôt est réalisé dans la géométrie *off-axis*. L'épaisseur nominale de MgO lors du dépôt est de 50 nm.

Le R×A en fonction de l'épaisseur de MgO est représenté sur le graphe de la Figure 2.13 pour des épaisseurs allant de 1,2 à 1,55 nm. La jonction a été recuite à 340°C pendant 90 minutes sous champ planaire. La dépendance du R×A est exponentielle en fonction de l'épaisseur de la barrière. Le modèle de Simmons sur le transport à travers une barrière isolante décrit la dépendance de la résistance de la barrière en fonction de son épaisseur e et de la hauteur de la barrière  $\phi$  [68]. Dans ce modèle, le R×A est donné par :

$$R \times A \propto exp\left(\frac{4\pi e\sqrt{2m} \cdot \sqrt{\phi}}{h}\right) \tag{2.5}$$

où m est la masse effective de l'électron et h la constante de Planck. Le comportement observé sur le graphe de la Figure 2.13 est en accord avec le comportement théorique. Cela indique que le transport électronique se fait essentiellement par effet tunnel. Donc, dans cette gamme d'épaisseur, la densité de *pinholes* qui donnerait un transport direct, est faible.



FIGURE 2.13 – Dépendance du  $R \times A$  en fonction de l'épaisseur de MgO. La structure a subis un recuit à  $340^{\circ}$ C pendant 90 minutes sous champ planaire.

D'après l'équation 2.5, la pente de la courbe permet de calculer la hauteur de barrière  $\phi$  qui correspond à la différence d'énergie entre le niveau de Fermi et la bande de conduction de la barrière tunnel. Ici, notre hauteur de barrière est estimée à 1,7 eV. La hauteur de barrière pour une couche de MgO parfaitement oxydée et sans défauts est estimée à 3,6 eV [69]. Il est important de noter que pour les applications du type transfert de spin, une hauteur de barrière faible est nécessaire pour pouvoir appliquer des densités de courant importantes tout en évitant le claquage électrique de la jonction. Grâce à des techniques qui permettent de réduire la quantité d'oxygène dans la barrière, des hauteurs de barrière d'environ 0,39 eV ont pu être observées dans la littérature [59].

Sur la Figure 2.14, le champ de couplage de la couche libre a été tracé en fonction de l'épaisseur de la barrière. On remarque que, pour des épaisseurs inférieures à 1,2 nm, le champ de couplage augmente considérablement. Cela est dû au couplage ferromagnétique direct dû à une plus grande densité de *pinholes* en raison de la faible épaisseur d'oxyde (cf. 1.3.4 et 1.3.5). Puisque ce couplage favorise un alignement parallèle des électrodes magnétiques, l'alignement antiparallèle est difficile à être obtenu pour les faibles épaisseurs. Puisque les deux configurations magnétiques parallèle et antiparallèle ne sont pas bien définies, la mesure CIPT n'a pas été possible pour des épaisseurs de MgO inférieures à 1,2 nm.



FIGURE 2.14 – Champ de couplage de la couche libre en fonction de l'épaisseur de MgO. Pour les épaisseurs de barrière inférieures à 1,2 nm, la couche libre et la couche de référence sont fortement couplées.

#### 2.5.2 Effet des insertions de Mg

Dans cette partie, nous allons voir que, grâce à des insertions métalliques de Mg au contact avec la barrière de MgO RF, des valeurs de R×A de l'ordre de 5  $\Omega.\mu m^2$  ont pu être obtenues tout en gardant une valeur de TMR raisonnable en comparaison à des échantillons sans insertion métallique [70].

Des résultats dans la littérature montrent que l'insertion d'une fine couche métallique au-dessous de la barrière tunnel permet d'augmenter la TMR dans la région des faibles  $R \times A$  au-dessous de 10  $\Omega.\mu m^2$  [71, 72]. Ces études montrent que les améliorations sont dues à une réduction d'oxydation de l'interface entre le MgO et le CoFeB. Egalement, la structure cristalline de la barrière est de meilleure qualité sous l'effet des insertions de Mg. Nous avons étudié l'influence des insertions au-dessous et au-dessus de la barrière tunnel, ainsi que de deux côtés à la fois. Tous les échantillons ont été recuits à une température de 340°C pendant 90 minutes. Sur le graphe de la Figure 2.15, la TMR est tracé en fonction du R×A dans deux régions distinctes :  $R \times A > 5 \ \Omega.\mu m^2$  et  $R \times A < 5 \ \Omega.\mu m^2$ . La plage de R×A étudiée va de 2 à 1000  $\Omega.\mu m^2$ . Les points noirs correspondent à un échantillon sans insertion de Mg. Les points en rouge représentent des insertions de 0,3 et 0,5 nm de Mg au-dessous de la barrière tandis que les points bleus correspondent aux insertions au-dessus de la barrière. Finalement la double insertion de 0,3 nm de Mg de deux côtés de la barrière est représentée par les points verts.



FIGURE 2.15 – TMR en fonction du R×A pour différentes insertions de Mg.

Regardons d'abord la zone des R×A supérieurs à 5  $\Omega.\mu m^2$ . Dans cette région et pour un R×A supérieur à 30  $\Omega.\mu m^2$ , les insertions sous la barrière (points rouges) ont pratiquement la même TMR que l'échantillon sans aucune insertion métallique (points noirs). En revanche, tous les autres points présentent une TMR plus faible par rapport à l'échantillon sans insertion. Donc, dans cette région, les insertions n'améliorent pas les propriétés de transport, au contraire la TMR est réduite en présence des insertions, sauf pour les insertions sous la barrière pour un R×A supérieur à 30  $\Omega.\mu m^2$ .

Maintenant regardons la région de R×A inférieur à 5  $\Omega.\mu m^2$ . Le graphe représenté par la Figure 2.16 est un agrandissement de la région de faible R×A du graphe de la Figure 2.15. Dans cette région, aucune mesure CIPT n'a été possible pour l'échantillon sans insertion de Mg car les électrodes étaient couplées à travers la barrière. Un résultat important est que des R×A inférieurs à 5  $\Omega.\mu m^2$  n'ont pu être obtenus qu'avec des insertions métalliques de Mg. Il est possible que, dans cette région de faible épaisseur de barrière, la couche de Mg contribue à la continuité de la barrière en supprimant les pinholes. On remarque aussi qu'il n'y a pas de différence significative entre les insertions au-dessous et au-dessous de la barrière tunnel. Le plus grand signal de TMR a été obtenu pour une double insertion de 0,3 nm de Mg des deux côtés de la barrière. Pour cet échantillon, une TMR de 50% et un R×A de 4,8  $\Omega.\mu m^2$  ont été obtenus. Ces valeurs de TMR restent faibles comparées aux valeurs dans la littérature. Cela est dû au fait que nous sommes limités par l'importante hauteur de barrière qui est caractéristique de notre cible de MgO comme nous avons vu dans le Paragraphe 2.5.2. L'introduction de ces insertions est un moyen de surmonter ce problème pour avoir un R×A faible même si le signal de TMR est réduit.



FIGURE 2.16 – TMR en fonction du R×A pour différentes insertions de Mg dans la région où le R×A est inférieur à 5  $\Omega.\mu m^2$ .

## 2.5.3 Effet de la température de recuit

Le recuit d'une jonction tunnel magnétique a deux objectifs principaux :

- Cristallisation des électrodes de CoFeB. Lors du dépôt, le CoFeB reste amorphe comme évoqué dans la Section 2.4 tandis que le MgO présente déjà la structure cristalline 001. Pendant le recuit post-dépôt, la diffusion d'une partie du bore de l'alliage CoFeB va être activée. Ensuite la cristallisation du CoFeB va avoir lieu. La structure cristalline du MgO va agir comme une matrice à la cristallisation du CoFeB depuis le niveau de l'interface avec le MgO pour ensuite se répandre vers le reste de l'électrode [73]. Le recuit permet également d'améliorer les qualité de l'interface entre le CoFeB et le MgO [74].
- Piégeage de la couche de référence. En général, une fois déposées, les couches ferromagnétique et antiferromagnétique de la couche de référence ne sont pas encore

couplées<sup>2</sup>. Pour cela, il est nécessaire de porter la structure à une température supérieure à la température de blocage du matériau antiferromagnétique (cf. 1.3.3 Chapitre 1). Ensuite, il est nécessaire de refroidir le système sous champ magnétique. Un couplage d'échange unidirectionnel se crée lors du refroidissement du système comme expliqué dans le Paragraphe 1.3.3.

Les recuits ont été faits dans un four où les échantillons sont placés dans une enceinte sous vide avec une pression de  $10^{-5}$  mbar. Le chauffage est effectué grâce à trois lampes halogènes pilotées en courant. Un champ permanent de 2,3 kOe est présent pendant toute la durée du recuit. Sur la Figure 2.17, la TMR est tracée en fonction de la température de recuit. Dans ce manuscrit, le temps de recuit de 90 minutes correspond uniquement au temps de palier sans le temps de montée qui est d'environ 30 minutes.



FIGURE 2.17 – TMR en fonction de la température de recuit pour une jonction tunnel à base de MgO RF d'épaisseur égale à 1,6 nm.

Le signal de TMR augmente progressivement avec la température pour atteindre un maximum aux alentours de 350°C. Ensuite le signal commence à se dégrader à plus haute température. Ce comportement est caractéristique des barrières tunnel à base de MgO. La cristallisation des électrodes de CoFeB est d'autant plus prononcée que la température de recuit est haute. Par contre, pour les plus hautes températures, les propriétés de transport commencent à se dégrader. En effet, à partir d'une certaine température, le recuit va activer la diffusion de certains éléments contenus dans l'empilement comme le Mn, le Ru ou le Ta. Hayakawa et al. ont montré que, pour des températures autour de 450°C, le Ru (utilisé pour le SAF de la couche de référence) et le Mn (typiquement utilisé dans les alliages des matériaux antiferromagnétiques comme l'IrMn ou le PtMn) diffusent vers la barrière tunnel dégradant le signal de TMR [75]. Des valeurs de TMR autour de 600% ont pu être obtenues avec un recuit à 525°C en supprimant la diffusion du tantale

<sup>2.</sup> Un couplage d'échange peut être établi si le dépôt est fait sous un champ magnétique.

[16]. Néanmoins, pour atteindre les objectifs de la thèse, nous avons besoin d'avoir une couche SAF couplée avec un matériau antiferromagnétique (IrMn) pour avoir une couche de référence bien robuste. De la même façon, le CoFeB de la couche libre est déposé sur le Ta amorphe ce qui permet d'avoir une bonne cristallisation du CoFeB lors du recuit. Pour ces raisons, nous ne pouvons pas nous passer de l'utilisation des matériaux comme le Ru, le Mn et le Ta. Les valeurs de TMR obtenues sont satisfaisantes pour les besoins des travaux qui seront décrits dans le prochain chapitre.

Le tableau 2.1 montre que, pour un recuit à 300°C, la TMR passe de 18% à 86% lorsque le temps de recuit passe de 0 minute de palier à 90 minutes. Pour un recuit avec un temps de palier plus long égal à 300 minutes, le signal de TMR ne change pas en comparaison avec la TMR pour 90 minutes de palier.

Temps de palier	TMR	
0 minutes	18%	
90 minutes	86%	
300  minutes  (5h)	88%	

TABLE 2.1 – TMR pour un recuit à 300°C à différents temps de palier.

#### Effet du recuit sur le couplage RKKY de la couche de référence

Nous venons de voir que la température optimale pour obtenir un meilleur signal de TMR est de 350°C. Le couplage RKKY de la couche de référence en fonction de la température de recuit a été également étudié. Les cycles magnétiques normalisés d'une jonction tunnel sont représentés sur la Figure 2.18 pour un recuit à 300°C (a) et 340°C (b). On constate que, pour un recuit à 300°C, le couplage est antiferromagnétique. En revanche, pour un recuit à 340°C, ce couplage devient ferromagnétique. Cela est probablement dû à un mélange à l'interface du Ru du SAF en raison de la plus grande température de recuit. Dans le but de garder un bon compromis entre un bon signal de TMR et un couplage RKKY antiferromagnétique de la couche de référence, la température de recuit a été choisie à 300°C dans la suite des travaux. En plus de cela, 300°C correspond à la température optimale pour l'anisotropie perpendiculaire dans le cadre de l'intégration d'un polariseur perpendiculaire dans une jonction tunnel magnétique qui sera montrée dans le chapitre 3.



FIGURE 2.18 – Cycles magnétiques des jonctions tunnel après un recuit à  $300^{\circ}$ C et  $340^{\circ}$ C. Le couplage RKKY évolue d'antiferromagnétique ( $300^{\circ}$ C) à ferromagnétique ( $340^{\circ}$ C) avec la température de recuit.

# 2.5.4 Résumé : barrières MgO RF

Les principaux résultats concernant l'optimisation de la barrière tunnel à base de MgO RF sont les suivants :

- L'épaisseur de MgO : la dépendance du R×A avec l'épaisseur de MgO est exponentielle comme prévue par le modèle de Simmons. Grâce à la pente de la courbe du R×A en fonction de l'épaisseur, nous avons calculé la hauteur de barrière ce qui nous donne une valeur de 1,7 eV. Pour des épaisseurs inférieures à 1,2 nm, la couche libre et la couche de référence sont fortement couplées par couplage ferromagnétique direct probablement en raison d'une grande densité de *pinholes* vu la faible épaisseur d'oxyde.
- L'effet des insertions de Mg : nous avons testé l'effet de l'insertion d'une fine couche de Mg au-dessous, au-dessus et des deux cotês de la barrière tunnel. Deux régions ont été idéntifiées :  $R \times A > 5 \ \Omega.\mu m^2$  et  $R \times A < 5 \ \Omega.\mu m^2$ . Dans la région des  $R \times A$  supérieurs à 5  $\Omega.\mu m^2$ , une insertion de Mg sous la couche de MgO donne pratiquement la même TMR que l'échantillon sans aucune insertion. Les autres insertions réduisent la TMR. Donc, dans cette région, les insertions n'améliorent pas le signal de la TMR. D'ailleurs, il n'y a pas de différence considérable entre une épaisseur de 0,3 ou O,5 nm de Mg. Maintenant, pour la région des  $R \times A$  inférieurs à 5  $\Omega.\mu m^2$ , nous avons constaté qu'un  $R \times A$  aussi faible n'a pu être obtenu que grâce

aux insertions de Mg. Nous supposons que, dans cette région de faible épaisseur de MgO, les insertions contribuent à la continuité de la barrière réduisant ainsi la densité des *pinholes*. Le meilleur résultat a été obtenu pour une insertion de 0,3 nm de Mg de deux côtés de la barrière tunnel avec une TMR de 50% et un R×A de  $4,8 \ \Omega.\mu m^2$ .

– La température de recuit : nous avons mesuré la TMR pour des températures de recuit allant de 270 à 370°C. Le temps de recuit est de 90 minutes sous un champ planaire de 2,3 kOe. Le maximum de TMR ( $\approx 100\%$ ) a été obtenu pour une température aux alentours de 350°C. Néanmoins, nous avons vérifié que le couplage RKKY de la couche de référence est ferromagnétique pour un recuit à 340°C. Par conséquence, notre température optimale de recuit est plutôt de 300°C ( $\approx 80\%$ ) car pour cette température, le couplage RKKY reste antiferromagnétique. Pour une température de recuit de 300°C, la TMR augmente d'environ 20% à 80% lorsque le temps de recuit passe de 0 minutes à 90 minutes. Par contre, pour des temps de recuit plus plus longs, il n'y a pas d'amélioration considérable de la TMR.
# 2.6 Barrières MgO par oxydation naturelle

Les barrières de MgO faites par oxydation naturelle sont préparées à partir d'un dépôt d'une couche de Mg métallique. Ensuite, l'échantillon est transféré dans une chambre de traitement où un processus d'oxydation est déclenché à des pressions qui varient entre 100 mbar et 1000 mbar. Cette technique d'oxydation est dite *naturelle* pour la différencier de l'oxydation *plasma* où il y a une accélération de la cinétique d'oxydation grâce au plasma. Dans ce cas, l'optimisation de la barrière est plus longue puisque des paramètres liés au processus d'oxydation, comme le temps et la pression, entrent en jeu dans l'élaboration de la barrière.

Les paramètres qui seront optimisés pour les barrières à base de MgO oxydation naturelle sont :

- L'effet des insertions de Mg et de MgO RF (déposé directement à partir d'une cible de MgO) au-dessus de la barrière tunnel à base de MgO oxydation naturelle;
- Epaisseur de la couche de Mg qui a été ensuite oxydée pour former la barrière tunnel;
- Temps et pression d'oxydation.

#### 2.6.1 Effet des insertions de Mg et MgO

Inspirés par les résultats obtenus avec le MgO RF, une insertion métallique de 0,5 nm de Mg déposée sur la barrière tunnel a été réalisée. Une insertion de 0,65 nm de MgO RF déposé directement à partir d'une cible sur la barrière a été également testée. Les échantillons sont du type (épaisseurs en nm) :

#### Ta 3/CoFeB 4/Mg 1+oxydation naturelle/Insertion(Mg 0,5 ou MgO 0,65)/ CoFeB 3/Ru 0,9/Co 2/IrMn 7/Cu 3/Ru 7

L'oxydation se fait sous une pression de 900 mbar pendant 180 secondes. Ensuite les échantillons ont été recuits à 340°C. Les résultats sont résumés sur le tableau 2.2.

Echantillon	TMR	R×A
Sans insertion	7%	$5 \ \Omega.\mu m^2$
Insertion $0,5$ nm de Mg	133%	$30 \ \Omega.\mu m^2$
Insertion 0,65 nm de MgO	144%	$184 \ \Omega.\mu m^2$

TABLE 2.2 - TMR et  $R \times A$  pour les différentes insertions.

Notre premier essai d'oxydation naturelle était l'échantillon sans insertion. La valeur du R×A est faible autour de 5  $\Omega.\mu m^2$  par contre la TMR est aussi faible autour de 7%. Cela est probablement dû à la discontinuité de la barrière tunnel. Avec les insertions de Mg ou de MgO, le signal de TMR atteint des valeurs importantes de 133% et 144% respectivement. Cela met en évidence l'importance des insertions pour améliorer la

continuité de la couche et ainsi augmenter la TMR. Pour l'insertion de Mg, le R×A vaut 30  $\Omega.\mu m^2$  tandis que pour l'insertion de MgO, le R×A est de 148  $\Omega.\mu m^2$ . La résistance de l'insertion de MgO vient donc se rajouter à la résistance de la barrière tunnel et par conséquent le R×A total augmente significativement. L'insertion de Mg semble donc être une solution pour atteindre des grandes valeurs de TMR avec un R×A plus faible.

#### Influence de l'épaisseur de Mg

La Figure 2.19 montre la TMR et le R×A en fonction de l'épaisseur de l'insertion de Mg. L'échantillon a été recuit à 340°C pendant 90 minutes. Les conditions d'oxydation sont de 450 mbar pendant 180 secondes.

On observe un pic de TMR pour une épaisseur de Mg d'environ 0,45 nm. Pour des épaisseurs de Mg entre 0,45 et 0,75 nm, le R×A reste pratiquement inchangé à 45  $\Omega.\mu m^2$ . Au vu de ces résultats, nous avons décidé de travailler avec une insertion de 0,5 nm de Mg dans la suite des travaux.



FIGURE 2.19 – TMR et  $R \times A$  en fonction de l'épaisseur de l'insertion de Mg sur la barrière tunnel.

#### 2.6.2 Effet de l'épaisseur de la barrière tunnel

Pour étudier l'effet de l'épaisseur de la barrière tunnel sur les propriétés de transport, une couche de Mg avec un gradient d'épaisseur sur une plaque de 100 mm de diamètre a été déposée. Le gradient a été obtenu grâce à la géométrie *off-axis* comme décrit dans le Paragraphe 2.5.1. L'épaisseur de Mg varie de 0,6 à 1,5 nm. Ensuite la couche de Mg a été oxydée avec une pression de 160 mbar pendant 90 secondes. Une couche de 0,5 nm de Mg a été déposée sur la barrière tunnel. L'échantillon a été recuit à 300°C pendant 90 minute sous champ magnétique.

Sur la Figure 2.20, l'évolution de la TMR et du  $R \times A$  en fonction de l'épaisseur de Mg qui a été ensuite oxydé est tracée. Les graphes ne sont pas tracés en fonction de l'épaisseur finale d'oxyde car il est difficile de l'estimer. En effet, il est possible qu'une partie de l'insertion métallique de Mg pompe l'oxygène de la barrière pour former du MgO.



FIGURE 2.20 – TMR et R×A en fonction de l'épaisseur de Mg.

La TMR augmente progressivement jusqu'à atteindre un pic à 120% pour une épaisseur de 0,9 nm de Mg. Pour des épaisseurs plus faibles que 0,9 nm, le R×A augmente quand l'épaisseur de Mg diminue. Dans cette région, la barrière est probablement suroxydée. L'épaisseur de la couche de Mg est tellement faible que la couche sous-jacente de CoFeB s'oxyde et par conséquent, la résistance augmente. Cela est confirmé par une chute considérable de la TMR puisque les propriétés de transport tunnel sont probablement dégradées en raison de l'oxydation du CoFeB. Pour des épaisseurs plus grandes que 0,9 nm, la TMR commence à se dégrader probablement en raison d'une sous-oxydation de la barrière vue son épaisseur plus importante. Le R×A est constant autour de 25  $\Omega.\mu$ m<sup>2</sup>.

Il est important de noter que, pour un même profil de gradient, le comportement du  $R \times A$  ici est différent par rapport au comportement du  $R \times A$  en fonction de l'épaisseur de MgO pour une barrière MgO RF (Figure 2.13). On constate sur la Figure 2.20 que, pour des épaisseurs supérieures à 0,9nm de Mg, deux épaisseurs différentes de Mg oxydées pendant le même temps et la même pression présentent la même valeur de  $R \times A$ . Ce qui compte pour la résistance de la barrière est donc la quantité totale d'oxygène plutôt que l'épaisseur de la couche à oxyder.

#### 2.6.3 Effet du temps et de la pression d'oxydation

Dans toute cette partie, l'empilement utilisé est celui décrit dans la Section 2.4. L'épaisseur de la couche de Mg qui a été ensuite oxydée est de 0,8 nm. Le recuit a été fait à 300°C pendant 90 minutes sous champ magnétique.

#### Temps d'oxydation

Pour étudier l'influence du temps d'oxydation sur les propriétés de transport, ce temps a été varié pour une pression fixe. La Figure 2.21 montre la TMR et le  $R \times A$  pour trois temps différents d'oxydation : 10, 90 et 180 secondes. 10 secondes réprésente la valeur minimale du temps d'oxydation donnée par le bâti de dépôt et 180 secondes est une valeur historique utilisée dans notre machine de dépôt. La pression a été fixée à 160 mbar.



FIGURE 2.21 - TMR et  $R \times A$  pour les différents temps d'oxydation. La pression est fixe à 160 mbar et l'épaisseur de la couche de Mg est de 0,8 mn.

La barre d'erreur de la TMR est de 10% et du  $R \times A$  de 2  $\Omega.\mu m^2$ . Ces valeurs sont dûs à un problème de reproductibilité lors du dépôt. La TMR passe par un maximum à 90 secondes avec 112% de TMR. Pour 10 et 180 secondes la TMR est de 85% et 76% respectivement. Le  $R \times A$  évolue de 13 et 17  $\Omega.\mu m^2$  pour 10 et 90 secondes à 50  $\Omega.\mu m^2$  pour 180 secondes. Il est clair que la barrière est suroxydée pour un temps de 180 secondes. Plus le temps d'oxydation est long, plus la résistance est grande car la quantité d'oxygène qui arrive à la barrière sera plus grande. Cependant, cette dépendance semble être moins critique entre 10 et 90 secondes. Ces temps donnent des valeurs de  $R \times A$  intéressantes pour des applications faisant appel au transfert de spin.

#### Pression d'oxydation

Nous allons voir maintenant quelle est l'influence de la pression sur les propriétés de transport pour un temps d'oxydation fixe. D'abord regardons l'effet de la pression pour un temps d'oxydation de 180 secondes. Les résultats de la TMR et du R×A en fonction de la pression sont présentés dans la Figure 2.22. Le R×A passe de 30 à 50  $\Omega.\mu m^2$  quand la pression augmente de 100 mbar à 160 mbar. Cette augmentation du R×A s'accompagne par une légère chute de TMR mais cette réduction est encore dans la barre d'erreur de 10% sur la valeur de la TMR. De toute manière, pour 100 et 160mbar, le R×A est supérieur à 30  $\Omega.\mu m^2$  ce qui reste encore trop élevé.



FIGURE 2.22 - TMR et R×A pour des pressions de 100 et 160 mbar. Le temps d'oxydation est fixé à 180 secondes et l'épaisseur de la couche de Mg est de 0,8 mn.

Maintenant, regardons l'influence de la pression pour des temps plus courts. La TMR et le R×A ont été mesurés en fonction de la pression pour des temps d'oxydation de 10 (Figure 2.23a) et 90 secondes (Figure 2.23b). La pression varie de 50 à 250 mbar. Nous sommes limités à une pression de 50 mbar en raison de problèmes de difficultés à basse pression sur notre machine de dépôt. Pour un temps d'oxydation de 10 secondes, la TMR est pratiquement constante autour de 90%. Pour 90 secondes, la TMR est légèrement plus importante pour les plus grandes valeurs de pression. Le R×A est pratiquement constant pour toutes les valeurs de pression. Il vaut environ 15  $\Omega.\mu m^2$  pour 10 secondes et 17  $\Omega.\mu m^2$ pour 90 secondes. Cela indique que, dans la plage de pression étudiées, le R×A est plus sensible au temps d'oxydation qu'à la pression pendant le processus d'oxydation.



FIGURE 2.23 - TMR et R×A pour différentes pressions. Le temps d'oxydation est fixé à 10 (a) et 90 secondes (b). L'épaisseur de la couche de Mg est de 0,8 mn.

Des pressions plus importantes que 250 mbar n'ont pas été testées pour un recuit à 300°C. Néanmoins, pour un recuit à 340°C, dans la plage de pressions qui va de 100 à 900 mbar et pour un temps de recuit de 180 secondes, la TMR est maximale autour de 120% et pratiquement constante pour des pression de 250 mbar à 900 mbar. Dans la plage de pression étudiée, le R×A vaut environ 40  $\Omega.\mu m^2$  pour toutes les valeurs de pression.

#### 2.6.4 Résumé : barrières MgO oxydation naturelle

Les principaux résultats concernant l'optimisation de la barrière tunnel à base de MgO oxydation naturelle sont les suivants :

- L'effet des insertions de Mg et de MgO RF (déposé directement à partir d'une cible de MgO) au-dessus de la barrière tunnel à base de MgO oxydation naturelle : le signal de TMR augmente de façon considérable passant de 7% (R×A = 5  $\Omega.\mu$ m<sup>2</sup>) à 133% (R×A = 30  $\Omega.\mu$ m<sup>2</sup>) avec une insertion de 0,5 nm de Mg. Une insertion de 0,65 nm de MgO RF sur la barrière MgO oxydation naturelle permet d'atteindre un signal de TMR d'environ 145%. Par contre, l'augmentation du R×A est trop importante avec une valeur autour de 180  $\Omega.\mu$ m<sup>2</sup>. L'insertion d'une couche de Mg est donc la meilleure option pour atteindre des signaux importants de TMR tout en gardant un R×A raisonnable. Les optimisations sur la pression et le temps d'oxydation montrent qu'il est possible de réduire cette valeur de R×A. L'épaisseur optimale de l'insertion de Mg est 0,45 nm pour avoir un maximum de TMR avec des faibles valeurs de R×A. Dans la suite, nous avons utilisé une insertion métallique de 0,5 nm. Ces optimisations ont été faites pour un recuit à 340°C pendant 90 minutes sous champ planaire appliqué.
- Epaisseur de la couche de Mg qui a été ensuite oxydée pour former la barrière tunnel : la plage d'épaisseurs testée va de 0,35 à 0,8 nm de Mg. Le maximum de TMR a été atteint pour 0,9 nm de Mg (TMR≈120% pour un R×A de 25 Ω.µm<sup>2</sup>). Pour des épaisseurs plus faibles, la couche est suroxydé ce qui ce traduit par une décroissance de la TMR et une augmentation du R×A probablement car la couche de CoFeB sur la barrière s'oxyde augmentant ainsi la résistance. Pour des épaisseurs plus grandes que 0,9 nm de Mg, la TMR diminue indiquant une sous-oxydation de la barrière. Néanmoins le R×A reste pratiquement constant à 25 Ω.µm<sup>2</sup>. Le recuit a été fait à 300°C pendant 90 minutes sous champ planaire appliqué.
- **Temps d'oxydation :** en fixant la pression d'oxydation à 160 mbar, nous avons varié le temps d'oxydation de 10 à 180 secondes. La TMR est maximale avec 112% de signal pour un temps d'oxydation de 90 secondes. Le R×A est pratiquement constant autour de 15  $\Omega.\mu m^2$  pour 10 et 90 secondes. Pour 180 secondes, le R×A vaut 50  $\Omega.\mu m^2$  indiquant que la barrière est suroxydée. Le recuit a été fait à 300°C pendant 90 minutes sous champ planaire appliqué.
- Pression d'oxydation : en fixant le taux d'oxydation, nous avons varié la pression d'oxydation. Pour un temps d'oxydation de 10 secondes et dans une plage de pression de 50 à 250 mbar, la TMR et le R×A sont pratiquement constants autour de 90% et 15  $\Omega.\mu m^2$  respectivement. Pour 90 secondes, la TMR est légèrement plus importante à partir de 160 mbar en comparaison aux pressions plus faibles. Le R×A est pratiquement constant d'environ 17  $\Omega.\mu m^2$ . La température de recuit est de 300°C pendant 90 minutes sous champ planaire appliqué.

# 2.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons vu que l'optimisation des paramètres de dépôt nous ont permis d'améliorer les qualités des barrières tunnel afin d'atteindre un signal de TMR suffisant pour garantir la lisibilité de l'information (TMR>50%) et un R×A assez faible pour permettre l'injection du courant nécessaire pour induire des effets de transfert de spin.

Le meilleur résultat pour les barrières déposées à partir d'une cible de MgO (MgO RF) a été obtenu pour une insertion de 0,3 nm de Mg des deux côtés de la barrière avec un signal de TMR de 50% et un R×A de 4,8  $\Omega.\mu m^2$ . L'état de l'art pour ce même type de barrière montrent des résultats très satisfaisants, comme par exemple les travaux reportés par Maehara et al. qui montrent une TMR de 170% et un R×A de 1  $\Omega.\mu m^2$  [65]. Il est important de noter que la différence fondamentale entre notre machine de dépôt et celle utilisée pour les travaux de Maehara et al. est la pression de base et la pression de travail. Dans notre cas la pression de base est de  $10^{-7}$  mbar et la pression de travail est de  $2.10^{-3}$ mbar tandis que dans leur machine la pression de base est considérablement plus faible à  $6.10^{-9}$  mbar et la pression de travail est de 2,6.10<sup>-4</sup> mbar et de 1,2.10<sup>-3</sup> mbar pour le dépôt du MgO. Cette différence de pression peut expliquer la différence des résultats. En effet, plus la pression est faible, moins il y a des particules parasites dans la chambre et par conséquent, meilleure est qualité du dépôt. En particulier, la présence de vapeur d'eau est réduite ce qui évite le processus d'oxydation des couches déposées avec l'oxygène de la vapeur d'eau qui reste dans la chambre. Nous avons trouvé des moyens pour surpasser en partie la limitation technique de notre machine de dépôt comme par exemple l'utilisation d'insertions métalliques de Mg. Il existe d'autres moyens pour réduire encore le R×A et augmenter le signal de TMR comme par exemple un recuit in-situ [65] ou un recuit à plus haute température [16].

Après les optimisations faites sur les barrières à base de MgO oxydation naturelle, nous avons obtenu un niveau de TMR d'autour de 90% et un R×A d'autour de 15  $\Omega.\mu m^2$ . Ces valeurs sont proches des résultats de la littérature pour ce même type de barrière [76]. Schreiber et al. montrent qu'il est encore possible de réduire le R×A et augmenter la TMR en utilisant des électrodes à base de CoFe/CoFeB par exemple [76].

L'objetif premier de ces études d'optimisation n'était pas d'avoir le plus grand signal de TMR ou le plus faible  $R \times A$  reportés dans la littérature mais d'avoir des niveaux suffisant pour les besoins liés au transfert de spin. Au début de ces travaux, les barrières n'étaient pas au point ce qui limitait tout système qui nécessitait des jonctions tunnels pour faire du transfert de spin. Dans ce sens, les optimisations réalisées pendant ce travail ont été réussies et des niveaux de TMR et de  $R \times A$  satisfaisants ont été obtenus pour assurer le bon déroulement des travaux, à savoir l'intégration d'un polariseur perpendiculaire dans une jonction tunnel magnétique pour l'écriture précessionnelle.

# Chapitre 3

# Intégration du polariseur perpendiculaire dans une jonction tunnel magnétique

Dans ce chapitre, nous allons décrire les étapes d'intégration d'un polariseur avec une aimantation perpendiculaire au plan des couches dans une jonction tunnel magnétique aux aimantations planaires.

L'intégration n'est pas évidente à mettre en place. Des problèmes de rugosité apparaissent puisque la structure contient un nombre important de couches. La compatibilité cristallographique doit être aussi prise en compte pour avoir de bonnes propriétés de transport. Un autre problème rencontré est l'interaction dipolaire entre les couches en raison de la présence du polariseur perpendiculaire. Dans ce chapitre nous allons voir comment nous avons fait face à ces problèmes pour finalement élaborer une structure fonctionnelle.

D'abord nous montrerons les études concernant le développement d'un polariseur avec une forte anisotropie perpendiculaire. Ensuite, nous allons présenter les essais d'intégration dans les jonctions tunnel magnétiques. Suite à des problèmes rencontrés lors de l'intégration, nous avons modifié les couches qui composent la structure pour finalement arriver à des dispositifs qui gardent de bonnes qualités électriques et magnétiques.

# 3.1 Développement du polariseur perpendiculaire

L'origine de l'anisotropie perpendiculaire vient essentiellement des effets d'interface. Néel a prédit, en 1954, qu'une anisotropie supplémentaire apparaît lors de la brisure de symétrie à l'interface d'un matériau magnétique [77]. En effet, en raison du nombre réduit d'atomes voisins aux interfaces d'un matériau magnétique, une levée de dégénérescence apparaît entre les orbitales dans le plan et hors du plan [78]. Le niveau d'énergie des orbitales hors du plan est plus faible que celui dans le plan et par conséquent, l'aimantation va se mettre hors du plan. En plus de ces effets, il exister avoir une hybridation des orbitales atomiques avec les atomes des couches qui sont en contact avec le matériau magnétique ce qui peut induire une anisotropie supplémentaire [79].

Les premières études expérimentales sur l'anisotropie perpendiculaire dans des multicouches magnétiques datent des années 1980 avec des systèmes à base de Co/Pd, Co/Pt et Co/Au [80, 81, 82]. Les premiers travaux développés au laboratoire sur l'anisotropie perpendiculaires sont sur des systèmes avec les multicouches Co/Pt [83]. Depuis, le laboratoire a acquis un bon savoir-faire dans l'élaboration et l'étude des multicouches Co/Pt. Pour cette raison, nous avons choisi un polariseur perpendiculaire à base Co/Pt.

Dans le cadre des jonctions tunnel magnétiques avec des électrodes perpendiculaires, la réalisation d'une électrode perpendiculaire située au-dessus de la barrière tunnel est beaucoup plus difficile à développer en comparaison à une électrode au-dessous de la barrière. En effet, la croissance d'une couche ou multicouche perpendiculaire est plus difficile à mettre en place expérimentalement quand la croissance se fait sur une couche d'oxyde [84]. En plus, un polariseur sur la barrière tunnel entraînerait une rugosité plus importante dans la multicouche perpendiculaire ce qui pourrait dégrader les effets d'anisotropie perpendiculaire dans les interfaces. La rugosité est plus importante lorsque les couches sont fines ce qui est le cas des couches qui composent le polariseur perpendiculaire (inférieures à 1 nm). C'est pourquoi, dans un premier temps, nous avons choisi de placer le polariseur perpendiculaire sous la jonction tunnel. Dans la suite de cette section, les étapes de développement d'un polariseur perpendiculaire avec une forte anisotropie perpendiculaire seront présentées.

#### 3.1.1 Techniques de caractérisation

En complément aux mesures magnétiques VSM, deux autres techniques ont été utilisées pour mesurer l'aimantation d'un matériau : des mesures d'effet Hall extraordinaire (EHE) et des mesures magnéto-optique d'effet Kerr polaire. Nous allons voir brièvement le principe de ces deux types de mesure.

#### Effet Hall extraordinaire

L'effet Hall ordinaire apparaît dans le cas d'une couche métallique, magnétique ou non, ou d'un semi-conducteur. Si on considère un courant électrique qui passe dans le plan du matériau, un champ magnétique perpendiculaire au courant va dévier les électrons de conduction grâce à la force de Lorentz. L'accumulation des charges électriques sur les bords de l'échantillon fait apparaître une tension appelée tension de Hall proportionnelle au champ magnétique appliqué. Dans les matériaux magnétiques, un effet similaire, mais n'ayant pas les mêmes sources se superpose à l'effet Hall ordinaire. Il résulte de l'interaction spin-orbite des électrons de conduction avec l'aimantation du milieu et est nommé effet Hall extraordinaire. La résistivité de Hall  $\rho_H$  est généralement exprimée par [85] :

$$\rho_H = R_{ord} \cdot B + R_{extra} \cdot \mu_0 \cdot M_z \tag{3.1}$$

où  $R_{ord}$  est le coefficient de Hall ordinaire lié à la force de Lorentz, B l'induction magnétique,  $R_{extra}$  le coefficient de Hall extraordinaire,  $\mu_0$  la perméabilité du vide et  $M_z$ , l'aimantation du matériau selon l'axe z perpendiculaire au plan de l'échantillon. La mesure EHE est donc sensible à la composante de l'aimantation selon z.

Le coefficient de Hall ordinaire dépend de la densité des porteurs de charges tandis que le coefficient de Hall extraordinaire dépend des paramètres de diffusion liés à l'interaction spin-orbite. Le premier terme de l'équation est généralement négligeable devant le deuxième. L'équation 3.1 nous donne un moyen d'estimer l'aimantation d'un matériau magnétique qui est directement proportionnelle à la résistance mesurée.

Les mesures d'EHE peuvent être réalisées avec un champ appliqué perpendiculaire ou parallèle au plan des couches. Prenons une multicouche composée de Pt 30/Co 0,8/Cu 0,3/Co 0,8 (en nm) avec une aimantation résultante hors du plan. La mesure EHE en champ perpendiculaire est représentée sur la Figure 3.1a. La résistance, mesurée sous un champ appliqué selon l'axe z de facile aimantation, a été normalisée par sa valeur à la saturation dont l'amplitude dépend du coefficient de Hall extraordinaire. On obtient ainsi une courbe d'hystérésis de la résistance de Hall. Cette mesure nous donne accès aux champs caractéristiques des transitions magnétiques comme le champ de couplage ou le champ coercitif.

La courbe de la Figure 3.1b représente la résistance de Hall normalisée en champ planaire. Nous avons d'abord mesuré la résistance sous un champ appliqué selon z et ensuite nous avons estimé la résistance selon x grâce à la relation  $R_x^2=1-R_z^2$ . L'anisotropie effective  $K_{\text{eff}}$  correspond à l'aire du triangle coloré en jaune sur la Figure 3.1b. Le champ  $H_K$  est le champ d'anisotropie qui correspond au champ nécessaire pour mettre l'aimantation, initialement hors du plan, dans le plan des couches.



FIGURE 3.1 – Mesure de la résistance de Hall d'un échantillon composé de Pt 30/Co 0.8/Cu 0.3/Co 0.8 (nm) aux aimantations hors du plan en champ appliqué perpendiculaire (a) et planaire (b).

Plus le champ d'anisotropie d'un échantillon est grand, plus il est difficile de mettre son aimantation dans l'axe difficile, donc l'aimantation sera plus stable. La mesure du champ coercitif  $H_c$  donne une estimation directe de l'anisotropie du matériau car ces deux quantités sont directement proportionnelles dans le cas d'un retournement cohérent de l'aimantation (cf. Paragraphe 1.1.5).

#### Mesure magnéto-optique d'effet Kerr polaire

L'effet Kerr optique est une méthode de mesure magnétique très sensible, dont la profondeur de couche sondée est de 20 nm. Une géométrie polaire a été utilisée. Dans ce cas, un faisceau de lumière polarisée (laser) arrive en incidence normale sur une surface aimantée. Après réflexion, la polarisation tourne d'un angle donné. L'inversion de l'aimantation conduit à une rotation en sens opposé de la polarisation. La mesure d'effet Kerr dans la géométrie polaire est sensible à la composante perpendiculaire de l'aimantation. On mesure l'angle de rotation qui est proportionnel à l'aimantation. La mesure de l'angle est convertie en intensité lumineuse et il est ainsi possible de tracer un cycle d'hystérésis de cette intensité lumineuse en fonction du champ appliqué.

#### 3.1.2 Polariseur perpendiculaire à base de multicouche de Co/Pt

Toutes les structures présentées dans cette section sont déposées sur une couche de 3 nm de Ta. Une couche à base de Cu 2/Pt 2 (épaisseur en nm) est déposée sur l'échantillon pour éviter l'oxydation des couches supérieures puisque le Pt est très résistant à l'oxydation. La couche de Cu sert à annuler toute contribution à l'anisotropie perpendiculaire qui peut venir de l'interface entre la dernière couche de Co et la couche de Pt qui sert de protection à l'oxydation.

La première structure perpendiculaire étudiée était composée de :

Pt 
$$30/Co x/Cu 0,3/Co x$$
 (en nm)

La lamination du Co avec la couche de Cu permet de réduire la longueur de diffusion de spin et ainsi augmenter la polarisation de la couche de Co [86]. Lorsque l'épaisseur de la couche magnétique est réduite, l'anisotropie perpendiculaire de la multicouche augmente car les effets de surface qui favorisent une orientation hors du plan deviennent plus importants (cf. 1.1.4). La Figure 3.2 montre le champ d'anisotropie en fonction de l'épaisseur des couches de cobalt. Un champ d'anisotropie positif indique que l'aimantation est hors du plan tandis qu'un champ négatif indique que l'aimantation est dans le plan des couches. On constate qu'il existe une épaisseur totale critique de cobalt d'environ 2,2 nm au-dessous de laquelle l'aimantation est perpendiculaire au plan des couches.



FIGURE 3.2 – Champ d'anisotropie en fonction de l'épaisseur totale de cobalt pour une multicouche à base de Pt 30/Co x/Cu 0,3/Co x (nm). Le recuit a été fait à 300° pendant 90 minutes sans champ appliqué.

En réduisant l'épaisseur de la couche de cobalt, l'anisotropie perpendiculaire augmente. Par contre, la polarisation de la couche diminue pour les faibles épaisseurs. Pour cette raison, nous avons choisi de travailler avec une épaisseur de 1 nm pour chaque couche de cobalt. Une façon d'augmenter significativement l'anisotropie perpendiculaire consiste à introduire dans le système des bicouches qui présentent une anisotropie perpendiculaire dans leur interface. En plus d'une augmentation d'anisotropie, le volume magnétique est plus important afin d'assurer une bonne stabilité thermique lorsque la taille latérale des dispositifs est réduite à quelques dizaines de nanomètres. Nous avons ainsi introduit des multicouches à base de Co/Pt dans notre polariseur :

Pt 
$$30/[Co 0,5/Pt 0,4]_{\times 5}/Co 1/Cu 0,3/Co 1$$
 (en nm)

Les mesures d'EHE en champ perpendiculaire montrent que l'introduction de ces multicouches augmente significativement la coercitivité du système (Figure 3.3). Le champ coercitif passe de 200 à 1480 Oe avec la multicouche. Cela est dû à une augmentation d'anisotropie d'interface apportée par la multicouche.



FIGURE 3.3 – Mesure EHE en champ perpendiculaire. La multicouche à base de Co/Pt augmente significativement la coercitivité du système. L'échantillon a été recuit à 300°C pendant 90 minutes sans champ appliqué.

#### Influence de la couche de couverture

Nous avons étudie l'influence de la couche de couverture du polariseur perpendiculaire. Cette couche va servir à séparer le polariseur perpendiculaire et la couche libre de la jonction tunnel dans les structures intégrées. L'empilement est :

$$\begin{array}{c} {\rm Pt \ 30/[Co \ 0,5/Pt \ 0,4]_{\times 5}/Co \ 1/Cu \ 0,3/Co \ 1/ \ Cu \ 0,3 \ ou \ Al_2O_3 \ 0,5 \ + \ oxydation} \\ {\rm naturelle \ 600 \ s \ 160 \ mbar \ (en \ nm)} \end{array}$$

Une couche séparatrice à base d'alumine entraîne une anisotropie perpendiculaire plus importante du polariseur par comparaison avec une couche métallique comme le cuivre. Cela rejoint d'autres résultats de la littérature qui montrent que, dans un système perpendiculaire, une couche de couverture en oxyde entraîne une plus grande anisotropie perpendiculaire en comparaison avec une couche métallique [87]. L'hybridation entre les orbitales à l'interface de la couche de couverture favorise une configuration perpendiculaire en présence de l'oxygène. Des mesures d'EHE en champ planaire montrent que le champ d'anisotropie passe de 3630 Oe pour une couverture à base de Cu à 5200 Oe pour une couverture à base de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (Figure 3.4).



FIGURE 3.4 – Anisotropie du polariseur perpendiculaire avec une couche de couverture à base de Cu ou de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. L'échantillon a été recuit à 300°C pendant 90 minutes sans champ appliqué.

#### Influence de la température de recuit

Le recuit améliore la qualité des interfaces et ainsi peut augmenter l'anisotropie perpendiculaire [84, 88]. Des mesures d'effet Kerr optique sur une structure du type :

Pt 30/[Co 0,5/Pt 0,4]
$$_{\times 5}/$$
Co 1,2/Cu 0,3/Co 1,2 (en nm)

montrent l'évolution du champ coercitif en fonction de la température (Figure 3.5). Les échantillons ont été recuits pendant 90 minutes sans champ extérieur appliqué. Il faut noter qu'un recuit sous champ planaire, utilisé typiquement lors du recuit d'une jonction tunnel magnétique afin d'augmenter le piégeage de la couche de référence, ne change pas significativement les propriétés d'anisotropie perpendiculaire de nos systèmes.



FIGURE 3.5 – Mesure d'effet Kerr en champ perpendiculaire du polariseur perpendiculaire pour un échantillon sans recuit (brut) et pour un recuit à 300°C et 330°C pendant 90 minutes. Le recuit a été réalisé sans champ extérieur appliqué.

Le champ coercitif augmente avec la température de recuit. Par contre, pour un recuit à 330°C, le cycle d'hystérésis est légèrement arrondi. La transition magnétique est moins abrupte. Cela est probablement dû à un mélange à l'interface du Co et du Pt puisque la miscibilité du Cu est relativement faible. La température choisie pour la suite des études est donc 300°C. Dans le Chapitre 2 concernant l'optimisation de la barrière tunnel, la température idéale pour avoir un couplage antiferromagnétique du SAF de la couche de référence et un bon signal de TMR était aussi 300°C (Paragraphe 2.5.3). Il y a donc compatibilité entre la température de recuit pour la jonction tunnel et pour le polariseur perpendiculaire.

#### 3.1.3 Polariseur perpendiculaire synthétique

Dans le cadre du développement des jonctions tunnel avec aimantations perpendiculaires, des travaux menés au laboratoire ont permis le développement d'une électrode perpendiculaire avec un couplage RKKY antiferromagnétique à travers une couche de Ru [89]. Ces structures, dites "antiferromagnétiques synthétiques", permettent de réduire les effets de couplage dipolaire avec une autre couche magnétique lorsque les tailles latérales sont réduites.

La Figure 3.6 compare le profil de la composante perpendiculaire du champ rayonné dans la couche adjacente à une structure synthétique (courbe noire) et à une structure non synthétique (courbe rouge). Le diamètre du pilier est de 140 nm et r est le rayon. Le champ rayonné est plus intense sur les bords du pilier car les dipôles magnétiques ne sont pas compensés à cet endroit. Au centre du pilier, le champ rayonné est pratiquement nul pour une structure synthétique tandis que pour une structure non synthétique il vaut presque 400 Oe.



FIGURE 3.6 – Champ rayonnée dans la couche libre par une couche de référence perpendiculaire non synthétique (ligne rouge) et synthétique (ligne noire) dans le cas des jonctions tunnels aux aimantations perpendiculaire. Extrait de [89].

En raison de la diminution du champ de fuite grâce au couplage antiferromagnétique RKKY, nous avons développé une structure synthétique pour l'utiliser comme polariseur perpendiculaire. L'empilement est constitué de :

La structure a été développée de façon à ce que la dernière couche soit à base de CoFeB. Pour justifier le choix de ce matériaux comme dernière couche, considérons la structure intégrée polariseur perpendiculaire et jonction tunnel magnétique avec une couche séparatrice entre le polariseur composée de MgO (cf. Section 3.2). Dans ce cas, la nature amorphe de la dernière couche de CoFeB du polariseur perpendiculaire donne la bonne texture à la croissance de la couche séparatrice à base de MgO (cf. Section 2.4). En outre, il est possible d'utiliser ce même polariseur perpendiculaire pour les autres configurations où la couche séparatrice entre le polariseur perpendiculaire et la couche libre est à base de  $Al_2O_3$  ou de Cu car la couche de CoFeB du polariseur perpendiculaire n'a pas d'impact néfaste à la fonctionnalité de la structure intégrée pour ces configurations-là.

Le cycle magnétique normalisé de cette structure a été mesuré au VSM en champ perpendiculaire (Figure 3.7). On constate qu'à champ nul, les deux électrodes à travers le Ru sont quasiment compensées. Le système présente une très bonne stabilité puisque la configuration antiferromagnétique est maintenue jusqu'à des champs de l'ordre de 2200 Oe.



FIGURE 3.7 – Cycle magnétique au VSM en champ perpendiculaire d'une structure perpendiculaire synthétique. L'échantillon a été recuit à 300°C pendant 90 minutes sans champ appliqué.

# 3.2 Premiers essais d'intégration : systèmes à double barrière

Dans une configuration double barrière, la couche entre le polariseur perpendiculaire et la couche libre est une barrière isolante à base de MgO ou de  $Al_2O_3$ , de même pour la couche entre la couche libre et la couche de référence. C'est en raison de la présence de deux barrières tunnel qu'on appelle ce type de structure "double barrière" (Figure 3.8). Dans cette section, le polariseur perpendiculaire est synthétique avec un couplage RKKY antiferromagnétique à travers la couche de Ru.



FIGURE 3.8 – Structure double barrière.

L'avantage d'utiliser une barrière tunnel entre le polariseur perpendiculaire et la couche libre est que dans ce cas, la polarisation en spin des électrons est plus efficace avant la traversée de la barrière tunnel en comparaison avec une couche de cuivre (cf. Section 3.3). Les différentes configurations que nous avons testées sont les suivantes (la première barrière correspond à la couche séparatrice entre le polariseur perpendiculaire et

la couche libre tandis que la deuxième barrière correspond à celles de la jonction tunnel) :

- $Al_2O_3 / Al_2O_3$
- Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> / MgO oxydation naturelle
- MgO RF / MgO RF
- MgO oxydation naturelle / MgO oxydation naturelle

Les critères qui nous permettent de valider chaque empilement sont les propriétés magnétiques et électriques. Nous allons nous intéresser principalement au champ de couplage de la couche libre et la valeur du  $R \times A$  des jonctions tunnel qui sera à comparer avec la valeur du  $R \times A$  attendue pour chaque barrière tunnel (estimé grâce à des résultats sur les jonctions tunnel aux aimantations planaires sans polariseur perpendiculaire). A la fin de cette section, nous allons présenter un tableau récapitulatif de façon à pouvoir comparer facilement toutes les structures testées.

**Note :** Les propriétés magnétiques du polariseur ne seront pas présentées lors des comparaisons entre les différentes structures car le cycle d'hystérésis du polariseur perpendiculaire est resté pratiquement inchangé sur tous les systèmes double barrière testés. La Figure 3.9 montre le cycle du polariseur sous champ perpendiculaire pour une double barrière à base de MgO oxydation naturelle. L'épaisseur de Mg est de 0,8 nm qui a été ensuite oxydé pendant 10 minutes avec une pression de 160 mbar.

Les flèches numérotées indiquent le sens de balayage du champ extérieur appliqué. Les flèches bleues correspondent à l'aller et les flèches rouges au retour. Le balayage en champ commence à un champ de -4 kOe pour aller à +4 kOe et ensuite revenir à -4 kOe. Ce qui est important de noter est que, en partant d'un champ nul, le polariseur garde une configuration antiferromagnétique jusqu'à un champ perpendiculaire d'environ  $\pm 2$  kOe ce qui indique une grande stabilité de la structure.



FIGURE 3.9 – Cycle magnétique au VSM en champ perpendiculaire du polariseur au-dessous d'une double barrière à base de MgO oxydation naturelle. Les flèches numérotées indiquent le sens de balayage du champ extérieur appliqué pour l'aller (flèches bleues) et pour le retour (flèches rouges).

### 3.2.1 Double barrière : $Al_2O_3$ - $Al_2O_3$

La première double barrière étudiée est composée de deux barrières tunnel à base d'alumine. L'épaisseur de la barrière tunnel (0,54 nm d'aluminium qui a été ensuite oxydé par un processus d'oxydation naturelle) a été choisie de façon à avoir un  $R \times A$ autour de 10  $\Omega.\mu m^2$  d'après des études réalisées préalablement au laboratoire [56].



La Figure 3.10 montre le cycle d'hystérésis obtenu au VSM sous champ planaire. On constate que la couche libre tourne en même temps que la couche de référence. Le champ de couplage de la couche libre est élevé autour de 115 Oe. Le problème rencontré sur cet échantillon était donc que la couche libre était fortement couplée à la couche de référence.



FIGURE 3.10 – Cycle magnétique au VSM en champ planaire d'une double barrière à base d'alumine.

Dans un premier temps, nous avons supposé que ce couplage pouvait venir d'une interaction entre la couche libre et le polariseur perpendiculaire. Pour vérifier cela, nous avons fabriqué un échantillon seulement avec un polariseur perpendiculaire et une couche libre, sans la couche de référence. La couche perpendiculaire et la couche planaire sont séparées par une barrière d'alumine. Le cycle hystérésis en champ planaire est représente sur la Figure 3.11. Le champ de couplage de la couche libre est faible inférieur à -5 Oe. Le faible champ de couplage est vérifié pour des épaisseurs d'Al allant de 0,45 à 8 nm.



FIGURE 3.11 – Cycle magnétique au VSM en champ planaire d'un système composé d'un polariseur perpendiculaire et une couche libre.

Les résultats précédents montrent que le couplage de la couche libre ne vient pas d'une

interaction avec le polariseur perpendiculaire mais avec la couche de référence. Le signe du couplage nous indique qu'il favorise un alignement parallèle entre la couche libre et la couche de référence. Il est donc possible que ce couplage soit dû à un couplage de Néel. En effet, sur des systèmes avec une double barrière tunnel et des couches magnétiques planaires, un couplage de Néel a été observée en raison d'une rugosité au niveau de la barrière [90, 91]. Le couplage de Néel est d'autant plus important que l'épaisseur de la barrière est faible [92]. Nous avons donc augmenté l'épaisseur de la barrière tunnel entre la couche libre et la couche de référence pour essayer de découpler la couche libre et la couche de référence. Sur la Figure 3.12, le champ de couplage est tracé en fonction de l'épaisseur d'Al oxydé ensuite pour former la barrière tunnel.



FIGURE 3.12 – Champ de couplage de la couche libre en fonction de l'épaisseur d'aluminium qui a été ensuite oxydé pour former une couche de  $Al_2O_3$  qui sépare la couche libre de la couche de référence dans le cadre de la double barrière alumine.

Le champ de couplage diminue pour des épaisseurs d'Al plus importantes. Pour des épaisseurs supérieures à 0,75 nm d'Al, le champ de couplage est de l'ordre de 50 Oe. Par contre, pour ces épaisseurs, le R×A est supérieur à 80  $\Omega.\mu m^2$ . Cette résistance limite la densité de courant à des valeurs inférieures à environ 2.10<sup>7</sup> A/cm<sup>2</sup> en considérant que le claquage électrique de la barrière se fait pour des tensions d'environ 1,8 V (vérifié expérimentalement sur des nanopiliers magnétiques d'une jonction d'alumine). Cette densité de courant est proche des densités de courant nécessaires pour faire le retournement par transfert de spin ce qui limite l'utilisation de ce type de structure.

En conclusion, pour une double barrière à base d'alumine, la couche libre et la couche de référence sont couplées. Pour découpler la couche libre et la couche de référence, il est nécessaire d'augmenter l'épaisseur de la barrière tunnel ce qui entraîne un  $R \times A$  trop important pour faire du transfert de spin sans claquage de la barrière tunnel.

## 3.2.2 Double barrière : $Al_2O_3$ - MgO oxydation naturelle

Une solution pour découpler les couches est une configuration où la couche séparatrice est à base de  $Al_2O_3$  et la barrière de la jonction tunnel à base de MgO fabriqué par un processus d'oxydation naturelle :



Le cycle majeur en champ planaire de la jonction tunnel complète est représenté sur le graphe de la Figure 3.13. Le détail montre le cycle mineur de la couche libre.



FIGURE 3.13 – Cycle majeur et cycle mineur au VSM en champ planaire d'une structure polariseur perpendiculaire dans une jonction tunnel magnétique. La couche séparatrice est à base de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> tandis que la barrière tunnel de la jonction est à base de MgO.

Contrairement à la double barrière alumine, on remarque qu'ici les couches sont bien découplées avec un champ de couplage de la couche libre autour de 25 Oe.

Encouragés par ces résultats, nous avons voulu estimer le  $R \times A$  de chaque barrière. Le modèle utilisé pour la méthode CIPT décrite dans le Paragraphe 2.3 du Chapitre 2 est adapté pour mesurer la TMR et le  $R \times A$  d'une seule barrière tunnel. Des études sont en cours au laboratoire sur l'adaptation de ce modèle pour un système à double barrière tunnel [93]. Des résultats préliminaires montrent que le modèle CIPT conventionnel (destiné à un système avec une seule barrière tunnel) adapté à un système avec deux barrières, donne une estimation du  $R \times A$  qui correspond à la somme des  $R \times A$  de chaque barrière tunnel.

Nous avons donc estimé la somme des  $R \times A$  des deux barrières tunnel avec une mesure CIPT. La somme des  $R \times A$  trouvée est d'environ 200  $\Omega.\mu m^2$ . Or, le  $R \times A$  de la barrière d'alumine est estimé à 10  $\Omega.\mu m^2$  et celui de la barrière de MgO à 20  $\Omega.\mu m^2$ d'après les mesures CIPT sur une jonction aux aimantations planaires sans polariseur perpendiculaire. Il y a donc une augmentation importante du  $R \times A$  pour un système à double barrière. Une hypothèse est de supposer que les couches de CoFeB en contact avec chaque barrière tunnel puissent être partiellement oxydées ce qui entraînerait une augmentation de la résistance. Ce phénomène serait plus important pour un système à double barrière en comparaison avec un système à une seule barrière car le nombre d'interfaces CoFeB/barrière tunnel est multiplié par deux. Par contre, cette supposition n'explique pas l'augmentation quantitative que nous avons observée dans notre système. Il doit donc exister d'autres mécanismes qui entraînent une augmentation du  $R \times A$  mais qui ne sont pas encore bien compris.

Malgré le fait que dans cette configuration les couches magnétiques sont bien découplées, le  $R \times A$  est trop grand ce qui rend l'empilement peu adapté à nos études sur le transfert de spin.

#### 3.2.3 Double barrière : MgO RF - MgO RF

Un système avec une double barrière tunnel à base de MgO RF (dépôt de la barrière tunnel directement à partir d'une cible de MgO cf. Section 2.5) a été testé. Chaque barrière présente une insertion de 0,3 nm de Mg de deux côtés de la barrière ce qui permet de réduire le  $R \times A$  en évitant le couplage entre les couches. La barrière de la jonction tunnel présente un gradient sur son épaisseur obtenu par une technique *off-axis* décrite dans le Paragraphe 2.5.1 :



Sur la Figure 3.14, le champ de couplage de la couche libre est tracé en fonction de l'épaisseur de la barrière tunnel à base de MgO.



FIGURE 3.14 – Champ de couplage de la couche libre en fonction de l'épaisseur de la barrière de la jonction tunnel.

Pour des épaisseurs inférieures à 1,65 nm de MgO, la couche libre est fortement couplée. Ce couplage est probablement dû au couplage de Néel par les mêmes raisons présentées dans le Paragraphe 3.2.1. Pour arriver à la découpler, il faut donc une barrière tunnel avec une épaisseur supérieure à cette valeur. Le problème est que, pour une épaisseur de MgO de 1,65 nm, le R×A est de l'ordre de 1000  $\Omega.\mu$ m<sup>2</sup> ce qui rend la configuration inutilisables pour nos besoins.

## 3.2.4 Double barrière : MgO oxydation naturelle - MgO oxydation naturelle

En alternative aux résultats trouvés avec double barrière à base de MgO RF, une double barrière à base de MgO oxydation naturelle a été testée :



 $\begin{array}{l} \textbf{Polariseur perpendiculaire}: Ta \ 3/Pt \ 5/[Co \ 0,5/\\ Pt \ 4]_{\times 5}/Co \ 0,5/Ru \ 0,9/Pt \ 0,2/[Co \ 0,5/Pt \ 0,4]_{\times 3}/Co \ 0,5/\\ Co_{60}Fe_{20}B_{20} \ 1\\ \textbf{Couche séparatrice}: Mg \ 0,8 + oxydation naturelle\\ \ 10 \ sec \ 160 \ mbar/Mg \ 0,5/\\ \textbf{Couche libre}: Co_{60}Fe_{20}B_{20} \ 2\\ \textbf{Barrière tunnel}: Mg \ 0,8 + oxydation naturelle\\ \ 10 \ sec \ 160 \ mbar/Mg \ 0,5\\ \textbf{Couche de référence}: Co_{60}Fe_{20}B_{20} \ 3/Ru \ 0,9/Co\\ \ 2/Ir_{80}Mn_{20} \ 7 \ (en \ nm)\\ \textbf{Recuit}: \ 300^\circ\text{C} - 90 \ minutes \ sous \ champ \ planaire \end{array}$ 

A la différence de la double barrière à base de MgO RF, avec une double barrière MgO oxydation naturelle, les couches sont découplées comme on peut voir sur le cycle magnétique en champ planaire représenté sur la Figure 3.15 (le détail est un agrandissement de la couche libre) :



FIGURE 3.15 – Cycle magnétique au VSM en champ planaire d'une double barrière à base de MgO oxydation naturelle. Le détail du graphe est un agrandissement du cycle magnétique de la couche libre.

Une double barrière à base de MgO oxydation naturelle donne des résultats satisfaisants en ce qui concerne les propriétés magnétiques. Par contre, le R×A total de la structure vaut 90  $\Omega.\mu m^2$ . Nous avons donc le même problème rencontré pour la double barrière Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/MgO oxydation naturelle : le R×A total est trop grand pour des applications faisant appel au transfert de spin sans claquage de la barrière tunnel.

#### 3.2.5 Conclusions : système double barrière

Le Tableau 3.1 résume les résultats présentés dans les paragraphes précedants.

Structure	Champ de cou- plage	R×A attendu pour chaque barrière	$\mathbf{R}  imes \mathbf{A}$ total	Commentaires	
$Al_2O_3/Al_2O_3$	115 Oe	$pprox 10  \Omega.\mu m^2 / \ pprox 10 \ \Omega.\mu m^2$	non mesuré	Pour découpler la couche libre de la couche de référence, il faut augmenter l'épais- seur de la barrière ce qui entraîne une augmentation trop importante du R×A.	
${ m Al}_2{ m O}_3/{ m MgO}$ oxyd. nat.	25 Oe	$ \begin{array}{c} \approx 10  \Omega.\mu \mathrm{m}^2 \\ \approx 20 \ \Omega.\mu \mathrm{m}^2 \end{array} / $	$\approx 200 \ \Omega.\mu m^2$	Les couches sont bien découplées mais R×A total est trop grand pour les applications type transfert de spin.	
$\begin{array}{c} {\rm MgO}\; {\rm RF}/\\ {\rm MgO}\; {\rm RF} \end{array}$	120 Oe	$ \begin{array}{c c} \approx 25 & \Omega.\mu \mathrm{m}^2 \\ \approx 25 & \Omega.\mu \mathrm{m}^2 \end{array} $	non mesuré	$\mathrm{Idem}\ \mathrm{Al_2O_3/Al_2O_3}$	
MgO oxyd. nat./ MgO oxyd. nat.	20 Oe	$\begin{array}{ll} \approx \!\! 15  \Omega.\mu \mathrm{m}^2 & / \\ \approx \!\! 15 \; \Omega.\mu \mathrm{m}^2 \end{array}$	$\approx 90 \ \Omega.\mu m^2$	Idem $Al_2O_3/MgO$ oxyd. nat.	

TABLE 3.1 – Tableau récapitulatif des différentes structures double barrière.

On constate que l'utilisation d'une barrière à base de MgO oxydation naturelle entre la couche libre et la couche de référence permet de mieux découpler les couches en comparaison avec les autres structures. Malgré cela, le R×A est trop grand pour qu'un courant passe à travers la structure sans claquage de la barrière.

En résumé, pour tous les systèmes à double barrière, deux problèmes principaux ont été rencontrés :

- couplage entre la couche libre et la couche de référence;

- augmentation importante du R×A.

En raison des ces problèmes rencontrés avec une configuration double barrière, nous avons abandonné cette configuration dans un premier temps pour nous consacrer à une structure avec un séparateur en cuivre entre la couche libre et le polarisuer perpendiculaire.

# 3.3 Séparateur en cuivre

Une alternative à la double barrière est d'utiliser le cuivre comme couche séparatrice entre le polariseur perpendiculaire et la couche libre de la jonction tunnel. Dans cette section, nous allons présenter les essais d'intégration en utilisant le cuivre comme espaceur.

#### 3.3.1 Jonction tunnel à base de MgO RF

Le premier essai d'intégration était pour une jonction tunnel à base de MgO RF. A l'époque, le polariseur perpendiculaire synthétique n'était pas encore développé. Pour cette raison, le polariseur ici est non synthétique à base de multicouches de Co/Pt :



La mesure CIPT donne un  $R \times A$  autour de 25  $\Omega.\mu m^2$  et une TMR de 10%. Puisque nous avons une seule barrière tunnel, la mesure CIPT permet d'estimer le  $R \times A$  et la TMR comme pour les jonctions aux aimantations planaire sans polariseur perpendiculaire. Une jonction tunnel aux aimantations planaires sans polariseur perpendiculaire avec le même type de barrière présente un  $R \times A$  de 20  $\Omega.\mu m^2$  et une TMR de 86%. Le  $R \times A$ est pratiquement le même pour les structures avec et sans polariseur perpendiculaire. En revanche, la TMR est considérablement réduite. Cette chute de TMR est due à la croissance du CoFeB sur le cuivre. Pour vérifier cela, la TMR a été étudié en fonction de la présence ou non de Cu sous le CoFeB de la couche libre avec un empilement du type :

Ta 3/sans ou avec Cu3/CoFeB 4/MgO RF/CoFeB 3/Ru 0,9/Co 2/IrMn 7 (en nm)

Les résultats sont présentés sur le Tableau 3.2.

sans insertion Cu	$TMR \approx 90\%$
avec insertion Cu	$TMR \approx 25\%$

TABLE 3.2 - TMR pour un échantillon sans et avec insertion de 0,3 nm de cuivre sous le CoFeB de la couche libre.

Pour un échantillon sans la couche de Cu, la TMR est d'environ 90% tandis qu'avec une couche de 3 nm de Cu, la TMR passe à 25%. Le cuivre cristallise selon une structure cubique faces centrées avec une orientation (111). Lors du recuit, le CoFeB va se cristalliser selon l'orientation (111) du cuivre au lieu de cristalliser dans la direction 001 du MgO. Par conséquent, le CoFeB n'ayant pas l'orientation (001) du MgO, le filtrage des électrons en fonction de leur symétrie n'aura pas lieu et la TMR sera donc réduite.

L'influence de couches de couverture déposées après le CoFeB sur la TMR a été étudiée par Tsunekawa et al. [94]. Les résultats sont présentés sur la Figure 3.16 extraite de [62]. La différence de TMR entre les différents matériaux en contact avec la couche de CoFeB est expliquée par une plus ou moins bonne compatibilité cristallographique entre les couches. Avec le Cu en contact avec le CoFeB, le signal de TMR est réduit d'un facteur 2 en comparaison avec le Ta. Malgré le fait que dans notre cas la couche en contact avec le CoFeB soit située au-dessous de la couche libre, nos résultats sont en accord avec ceux de la Figure 3.16. Nous allons voir dans la suite du chapitre qu'il existe des solutions pour s'affranchir de ce problème : soit l'utilisation d'une barrière tunnel amorphe (Paragraphe 3.3.2), soit l'utilisation d'une couche libre synthétique (Paragraphe 3.3.3).



FIGURE 3.16 – TMR pour une jonction tunnel du type CoFeB/MgO/CoFeB avec différentes couches de couverture. Extrait de [62].

#### **3.3.2** Jonction tunnel à base de $Al_2O_3$

Une solution pour surmonter ce problème de croissance de la couche libre sur le Cu est l'utilisation d'une barrière amorphe. Ici, la barrière tunnel à base de MgO a été remplacée par l'alumine :



Après un recuit à 250°C, la TMR est de 25% comme pour un échantillon sans polariseur perpendiculaire. Le R×A est légèrement plus important autour de 40  $\Omega.\mu m^2$  pour un échantillon avec polariseur perpendiculaire, à comparer avec 30  $\Omega.\mu m^2$  pour une jonction tunnel sans polariseur.

#### Interactions entre les couches magnétiques

L'étude des propriétés magnétiques permet de comprendre les interactions qui peuvent exister entre le polariseur et la jonction tunnel. Grâce à des mesures magnétiques à l'aide d'un VSM, le comportement magnétique du système polariseur perpendiculaire plus jonction tunnel magnétique a été étudié. Sur la Figure 3.17a, le cycle magnétique du système est représenté en fonction du champ magnétique appliqué dans le plan des couches. Le détail montre le cycle d'hystérésis de la couche libre. Partant d'un champ appliqué de +3500 Oe, on observe successivement la contribution de la couche libre de la jonction (entre -400 et 400 Oe), puis de la couche de référence de la jonction (entre -400 et -1200 Oe). La Figure 3.17b montre le signal magnétique obtenu pour une excursion de champ magnétique limitée à  $\pm 80$  Oe. On remarque que la forme du cycle magnétique de la couche libre est dans ce cas très proche de celui attendu pour une structure de type jonction planaire conventionnelle sans polariseur perpendiculaire.



FIGURE 3.17 – Cycle magnétique pour un champ planaire appliqué (a) et le retournement de la couche libre pour une excursion en champ limitée à  $\pm 80$  Oe.

Cette différence peut s'explique par le fait que, dans le cas de la Figure 3.17a, le champ planaire appliqué de 3500 Oe est suffisant pour orienter dans le plan des couches l'aimantation du polariseur, initialement à aimantation perpendiculaire et mono-domaine en champ nul. Lors du retour à champ nul, l'aimantation du polariseur redevient perpendiculaire mais avec une structure en domaines. La présence de domaines est liée à une compétition énergétique entre l'anisotropie et le champ dipolaire. Lorsque l'anisotropie est faible, la configuration en domaines est la plus favorable pour compenser le champ dipolaire même si cela présente un coût énergétique lié aux parois entre les domaines. En supposant que nous avons une structure en domaines, les champs rayonnés par ses domaines interagissent avec l'aimantation de la couche libre. Par conséquent, le champ coercitif est fortement augmenté. Dans le cas de la Figure 3.17b, le champ appliqué n'est pas assez important pour perturber l'aimantation du polariseur, préalablement saturé en champ perpendiculaire. On retrouve alors pour la couche libre un champ coercitif classique de l'ordre de 5 Oe.

Il est important de noter que, dans le cas d'un polariseur synthétique intégré à une jonction tunnel, le champ planaire appliqué de l'ordre de 2 kOe lors de la réalisation d'un cycle majeur, n'est pas suffisante pour mettre le polariseur en domaines. Par conséquent, le cycle mineur de la couche libre (excursion en champ dans la gamme de 100 Oe) reste inchangé en comparaison au cycle de la couche libre lors de la réalisation d'un cycle majeur (excursions en champ de l'ordre du kOe). Cela peut être vérifié sur les cycles magnétiques des doubles barrières avec un polariseur perpendiculaire synthétique présentés dans la section précédente. Ces résultats mettent encore en évidence l'avantage d'un polariseur synthétique comparé à une structure non synthétique.

Vu les résultats satisfaisants d'intégration sur les systèmes avec une barrière d'alumine et un séparateur en cuivre, nous avons fabriqués des nanopiliers pour des tests d'écriture par transfert de spin. Les résultats seront présentés au Chapitre 4 dans la Section 4.5.

#### 3.3.3 Jonction tunnel à base de MgO oxydation naturelle

Nous avons étudié l'intégration d'un polariseur perpendiculaire dans une jonction tunnel avec une barrière à base MgO oxydation naturelle. Le polariseur perpendiculaire est composé d'une structure synthétique couplée antiferromagnétique à travers le Ru :



Des mesures VSM montrent les couches magnétiques sont bien découplées. En revanche, les mesures électriques montrent que le signal de TMR chute de 85% pour une structure sans polariseur à 20% avec le polariseur. Le R×A reste inchangé autour de 15  $\Omega.\mu m^2$ . Le problème est le même que celui évoqué au Paragraphe 3.3.1 : la croissance du CoFeB sur le Cu entraîne une mauvaise orientation cristallographique du CoFeB et par conséquent, la TMR est considérablement réduite.

#### Couche libre synthétique

La solution que nous avons trouvé pour contourner ce problème est l'utilisation d'une couche libre synthétique composée de : CoFeB 1,3/Ru 0,9/CoFeB 1,7. Le couplage RKKY à travers la couche de Ru est antiferromagnétique. La couche de 1,3 nm de CoFeB est en contact avec le cuivre qui séparer le polariseur perpendiculaire de la couche libre tandis que la couche d'épaisseur égale à 1,7 nm de CoFeB est en contact avec la barrière de MgO. La couche de CoFeB moins épaisse est plus proche du polariseur perpendiculaire pour avoir un effet plus important de transfert de spin provenant du polariseur perpendiculaire puisque le courant critique lié au transfert de spin est directement proportionnel à l'épaisseur de la couche (cf. Paragraphe 1.2.5).

Pour démontrer l'efficacité de cette structure, nous avons étudié les propriétés de transport des jonctions tunnel aux aimantations planaires sans polariseur perpendiculaire. Nous avons testé différentes couches libres avec un empilement du type :

couche libre/MgO oxydation naturelle/CoFeB 3/Ru 0,9/Co 2/Ir<sub>80</sub>Mn<sub>20</sub> 7 (en nm)

L'épaisseur de Mg déposé est de 0,8 nm oxydé ensuite sous une pression de 100 mbar pendant 10 s. Les échantillons ont subi un recuit à 300°C pendant 90 minutes sous champ planaire de 2,3 kOe. Les résultats électriques sont synthétisés dans le Tableau 3.3 :

Couche libre (épaisseurs en nm)	TMR	R×A
Ta $3$ /CoFeB 2	85%	$13 \ \Omega.\mu m^2$
Ta $3$ /Cu $3$ /CoFeB $2$		$14 \ \Omega.\mu m^2$
Ta 3/Cu 3/CoFeB 1,3/Ru 0,9/CoFeB 1,7		$15 \ \Omega.\mu m^2$
Ta 3/Ru 3/CoFeB 2	86%	$16 \ \Omega.\mu m^2$

TABLE 3.3 – TMR et R×A pour différents types de couche libre.

Si le CoFeB est déposé sur une couche de Cu, la TMR est fortement réduite. Par contre, en introduisant une couche libre synthétique à base de CoFeB 1,3/Ru 0,9/CoFeB 1,7 (en nm), on récupère le signal de TMR. Cela est dû au fait que le CoFeB en contact avec le MgO ne croît pas sur la couche de Cu, mais sur une couche de Ru qui permet la bonne croissance cristalline du CoFeB lors du recuit. En effet, le dernier échantillon du tableau vérifie l'hypothèse que le Ru sous le CoFeB offre la bonne texture cristalline au CoFeB puisque le signal de TMR n'est pas dégradé. Donc une couche synthétique est une bonne candidate pour la structure intégrée. Il reste à vérifier que les couches soient bien découplées et que les propriétés de transport soient satisfaisantes (R×A correct et bon signal de TMR) sur une jonction tunnel avec une couche libre synthétique et un polariseur perpendiculaire.

#### Structure complète avec une couche libre synthétique

Nous avons intégré un polariseur perpendiculaire dans une jonction tunnel magnétique avec une couche libre synthétique :


 $\begin{array}{l} {\bf Polariseur perpendiculaire : Ta \ 3/Pt \ 5/[Co \ 0,5/\\ Pt \ 4]_{\times 5}/Co \ 0,5/Ru \ 0,9/\ Pt \ 0,2/[Co \ 0,5/Pt \ 0,4]_{\times 3}/Co \ 0,5/\\ Co_{60}Fe_{20}B_{20} \ 1\\ {\bf Couche \ séparatrice : Cu \ 3}\\ {\bf Couche \ libre : Co_{60}Fe_{20}B_{20} \ 1,3/Ru \ 0,9/Co_{60}Fe_{20}B_{20} \ 1,7}\\ {\bf Barrière \ tunnel : Mg \ 0,8 \ + \ oxydation \ naturelle \ 10 \ s}\\ \ 160 \ mbar/Mg \ 0,5\\ {\bf Couche \ de \ référence : Co_{60}Fe_{20}B_{20} \ 3/Ru \ 0,9/Co \ 2/Ir_{80}Mn_{20} \ 7 \ (en \ nm)}\\ {\bf Recuit : 300^{\circ}C \ - 90 \ minutes \ sous \ champ \ planaire \end{array}}$ 

Le cycle magnétique normalisé de la structure intégrée obtenu par une mesure VSM en champ planaire est représenté sur la Figure 3.18a. La contribution de chaque couche magnétique est montrée sur le graphe par les schémas de la structure indiquant le sens des aimantations. La Figure 3.18b montre un agrandissement du cycle d'hystérésis de la couche libre. On remarque que les couches de CoFeB de la couche libre ne sont pas complètement compensées puisque une différence d'aimantation apparaît entre les deux transitions. On remarque aussi que les couches sont bien découplées.





FIGURE 3.18 – Cycle magnétique de la structure intégrée en champ planaire.

La Figure 3.19 montre le cycle magnétique du polariseur perpendiculaire en champ appliqué perpendiculairement au plan des couches. On remarque une grande stabilité du polariseur qui garde un couplage RKKY antiferromagnétique jusqu'à des champs de  $\pm 2000$  Oe. Les signaux dus à la jonction planaire et au substrat ont été soustraits du signal magnétique du polariseur perpendiculaire.



FIGURE 3.19 – Cycle magnétique du polariseur perpendiculaire en champ appliqué perpendiculaire de la structure intégrée.

Le R×A de la structure complète vaut 15  $\Omega.\mu m^2$  et la TMR est de 80%. Ces valeurs sont pratiquement les mêmes que celles trouvées pour une structure standard aux aimantations planaires. Malgré le nombre important de couches magnétiques de l'empilement, la rugosité n'affecte pas significativement les propriétés de transport. Cette empilement présente des qualités magnétiques et éléctriques satisfaisantes : couches magnétiques découplées, faible R×A et bon signal de TMR. Dans le prochain chapitre, nous allons voir qu'avec cette structure, nous avons demontré la validité de l'écriture précessionnelle sur les nanopiliers magnétiques.

#### 3.3.4 Conclusions : séparateur cuivre

Contrairement aux systèmes double barrière, en utilisant une couche séparatrice de Cu entre le polariseur perpendiculaire et la couche libre, les couches sont bien découplées et nous n'avons pas rencontré de problèmes d'augmentation du R×A. L'évolution des études avec une couche de cuivre a été principalement régie par les propriétés de transport de la jonction tunnel suite à l'introduction du cuivre.

Si la couche libre composée de CoFeB est en contact à la fois avec la couche de cuivre du séparateur et le MgO de la jonction tunnel, la TMR est considérablement réduite en comparaison à une jonction classique aux aimantations planaires sans polariseur. Cela est dû au fait que le CoFeB va croître selon l'orientation cristalline du cuivre au lieu d'avoir l'orientation du MgO. Deux solutions ont été proposées pour surmonter ce problème. La première consiste à utiliser une barrière tunnel à base d'alumine. Dans ce cas, la barrière étant amorphe, il n'y a pas de problème lié à la croissance du CoFeB. Néanmoins, avec cette alternative, le signal de TMR est réduit en comparaison avec une barrière à base de MgO. La deuxième solution est d'utiliser une couche libre synthétique à base de CoFeB/Ru/CoFeB et une barrière à base de MgO. La couche de CoFeB en contact avec la barrière n'est plus en contact avec le cuivre. Les tests sur les jonctions planaires sans polariseur perpendiculaire montrent que la croissance du CoFeB sur une couche de Ru n'affecte pas la TMR de la jonction. Les tests intégration montrent que la structure intégrée avec un polariseur perpendiculaire, une couche libre synthétique et une barrière tunnel à base de MgO, présente des bonnes propriétés magnétiques avec toutes les couches bien découplées. De plus, les valeurs de la TMR et du  $R \times A$  sont les mêmes que celle trouvées pour une jonction planaire sans polariseur perpendiculaire. L'intégration n'affecte donc pas les propriétés de transport de la jonction tunnel. L'intégration a été donc réussie pour une jonction tunnel à base de MgO. Au prochain chapitre, nous allons voir que les tests électriques sur des nanopiliers de la structure optimisée ont démontré la validation du concept de l'écriture précessionnelle.

## Chapitre 4

# Ecriture précessionnelle : validation du concept

Dans le chapitre précédent, nous avons montré les étapes qui ont permis d'intégrer un polariseur perpendiculaire dans une jonction tunnel magnétique tout en gardant des bonnes propriétés magnétiques et électriques. L'objectif de ce chapitre est de valider la faisabilité de l'écriture précessionnelle des structures optimisées dans le chapitre précédant grâce à des tests électriques sur des nanopiliers.

D'abord, le mécanisme d'écriture précessionnelle sera détaillé et également un état de l'art sera présenté dans le but de mesurer l'intérêt des résultats électriques exposés dans la suite. Ensuite, nous allons présenter les techniques de caractérisation utilisées pour les tests électriques. Les résultats des mesures électriques pour des jonctions à base d'alumine et d'oxyde de magnésium seront présentés. Nous démontrerons le concept d'écriture précessionnelle sur les jonctions à base de MgO. Enfin, ces résultats ont soulevé des questions fondamentales sur le retournement précessionnel. Les pistes à suivre pour améliorer notre compréhension des ces nouveaux phénomènes seront présentées à la fin du chapitre.

#### 4.1 Retournement précessionnel de l'aimantation

L'idée d'utiliser un polariseur perpendiculaire dans une jonction tunnel magnétique a été initialement introduite pour les applications du type mémoire magnétique [95, 96, 97]. Le mode d'écriture envisagé avec ce type de dispositif est appelé écriture précessionnelle. Dans ce cas, l'aimantation de la couche libre précesse hors du plan grâce au transfert de spin généré par le polariseur perpendiculaire. Pour expliquer ces oscillations de l'aimantation, considérons l'équation qui décrit la dynamique de l'aimantation en tenant compte du terme dû au transfert de spin (cf. Paragraphe 1.2.5 au Chapitre 1) :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma_0 \vec{M} \times \vec{H_{eff}} + \frac{\alpha}{M_S} \vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt} + a_j \vec{M} \times \left(\vec{P} \times \vec{M}\right)$$
(4.1)

En résolvant l'équation 4.1 avec un vecteur polarisation  $\overrightarrow{P}$  généré par le polariseur perpendiculaire selon la direction z perpendiculaire au plan, des précessions hors du plan de l'aimantation apparaissent à partir d'un certain courant critique.

La Figure 4.1 montre les oscillations des composantes  $M_x$  et  $M_y$  de l'aimantation obtenues par des simulations numériques dans une approche macrospin à partir de l'équation 4.1. Sans effet du transfert de spin l'aimantation est initialement selon la direction -y.



FIGURE 4.1 – Simulation dans une approche macrospin des composantes x et y de l'aimantation sous effet du transfert de spin généré par le polariseur perpendiculaire. L'aimantation est initialement la direction -y. Les paramètres utilisés pour la couche libre lors de cette simulation sont : l'aimantation à la saturation  $M_s=1,8.10^6$  A/m, le coefficient de Gilbert  $\alpha=0,1$ , le champ d'anisotropie  $H_k=4,5.10^4$  A/m et le pilier a une forme elliptique de dimension 150 par 100 nm.

Ce type de précession est très intéressant pour des applications du type oscillateurs radio-fréquence. Des systèmes qui intègrent un polariseur perpendiculaire avec une vanne de spin conçus au laboratoire Spintec ont montré la faisabilité de ce système [24]. Dans ce cas, le système est entièrement métallique avec une couche de cuivre qui sépare le polariseur perpendiculaire de la couche libre. Dans l'approche oscillateurs, le courant est appliqué en continu sur la structure dans le but d'avoir des oscillations entrenues de l'aimantation.

Dans le cas des mémoires magnétiques, le fonctionnement est différent. L'idée est d'appliquer une impulsion de courant avec une durée qui correspond exactement à une demi-période (ou des multiples) de la précession de l'aimantation de la couche libre. L'aimantation de la couche libre sera donc retournée d'un angle  $\pi$  par rapport à son aimantation initiale et la probabilité de retournement est maximale. Si la durée d'impulsion correspond exactement à une précession entière de l'aimantation (ou des multiples), l'état final correspond à l'état initial et la probabilité de retournement sera minimale. Donc en fonction de la durée d'impulsion, une alternance d'états parallèle et antiparallèles par rapport à la couche de référence va apparaître. En traçant la probabilité de retournement en fonction de la durée d'impulsion, des oscillations de la probabilité de retournement sont attendues correspondant à une succession d'états parallèles et antiparallèles.

Des simulations numériques ont validé le concept d'écriture précessionnelle [98, 99]. Les systèmes intégrant un polariseur perpendiculaire dans une vanne de spin ont été déjà élaborés dans l'approche mémoire magnétique. En 2009, les travaux de Lee et al. [100] ainsi que ceux de Papusoi et al. [101], ont démontré un retournement de l'aimantation pour des impulsions inférieures à 500 ps. Une réduction de la probabilité de retournement avec la durée d'impulsion a été observée mais les oscillations de la probabilité ont été moins évidentes à caractériser. En 2011, des systèmes développées au laboratoire Spintec intégrant un polariseur perpendiculaire synthétique séparé par une couche de Ru dans une vanne de spin ont montré des oscillations très cohérentes de l'aimantation de la couche libre en fonction de la durée des impulsions [53] (Figure 4.2).



FIGURE 4.2 – Probabilité de retournemet de l'aimantation de la couche libre pour les transitions parallèle à antiparallèele et vice versa. Le système est constitué d'une vanne de spin avec un polariseur perpendiculaire synthétique. Extrait de [53].

D'après des simulations micromagnétiques, la cohérence des oscillations de la probabilité est due à la structure synthétique du polariseur perpendiculaire. En effet, les champs rayonnés sont considérablement réduits puisque les lignes de champs se rebouclent à l'intérieur de la couche perpendiculaire. Par conséquence, la formation d'états vortex (rotation locale de l'aimantation suivant un axe instantané) dans la couche libre est réduite et la cohérence des oscillations est plus prononcée.

L'inconvénient d'une vanne de spin est que le signal de magnétorésistance géante est faible (quelques %) en comparaison avec une jonction tunnel magnétique surtout après la nanofabrication. En effet, la couche de cuivre de faible résistance est beaucoup plus sensible aux résistances en série qui peuvent apparaître lors de la nanofabrication en comparaison à la couche d'oxyde d'une jonction tunnel. Pour les applications du type mémoire magnétique il est donc important de transposer ces résultats dans une jonction tunnel magnétique pour augmenter le signal de sortie. Des essais d'intégration en utilisant une jonction de MgO et une couche séparatrice entre le polariseur perpendiculaire et la couche libre à base de Cu ainsi qu'une double barrière de MgO, montrent un retournement ultra-rapide de la couche libre inférieur à 500 ps [102, 103]. Néanmoins des oscillations de la probabilité de retournement ne sont pas clairement visibles. Nous allons dans la suite de ce chapitre montrer comment, grâce à un polariseur perpendiculaire synthétique, des oscillations de la probabilité de retournement ont été observées avec une jonction tunnel magnétique à base de MgO.

#### 4.2 Fabrication des nanopiliers

Pour utiliser une mémoire MRAM dans un circuit intégré, elle doit présenter des dimensions submicroniques comparables à la taille d'un transistor qui est de l'ordre de la dizaine de nanomètres. En plus, dans le cadre du retournement de l'aimantation par transfert de spin, la consommation électrique est directement proportionnelle à la surface des piliers. Finalement, le champ Oersted qui est le champ local créé par le passage du courant dans le pilier, est d'autant plus important que la surface du pilier est grande. Il est donc nécessaire de fabriquer des nanopiliers pour valider la fonctionnalité des dispositifs à cette échelle là. C'est seulement dans cette configuration qu'un courant perpendiculaire au plan des couches peut être injecté dans la jonction pour faire un retournement de l'aimantation par transfert de spin. En plus de cela, la physique présente des aspects intéressants liés à la réduction des tailles latérales. Par exemple, l'approximation macrospin qui considère que l'aimantation est uniforme est largement utilisée pour modéliser les phénomènes de la dynamique de l'aimantation. Cette approximation est valable seulement pour des dimensions inférieures à la centaine de nanomètres.

Le processus de nanofabrication a été réalisé au sein du CEA - Grenoble dans la PTA (Plateforme de Technologie Amont). La salle blanche de la PTA correspond à une classe 10 000<sup>1</sup>. L'objectif de la nanofabrication est de mettre les jonctions tunnel magnétiques

<sup>1.</sup> Les salles blanches sont classifiées suivant le nombre de particules par unité de volume. Cette classification varie de 10 à 1 000 000 ce qui correspond au nombre de particules (avec une taille inférieure à  $0.5 \ \mu m^3$ ) par m<sup>3</sup>.

sous forme de nanopiliers et d'élaborer des contacts électriques qui relient les couches supérieures et inférieures pour ensuite faire passer un courant perpendiculaire au plan de la multicouche. Ce procédé consiste en une vingtaine d'étapes qui sont relativement délicates. L'optimisation du procédé a été préalablement développée au sein du laboratoire. Le détail de chaque étape est présenté dans l'Annexe A. La Figure 4.3 montre une photo de la plaque avec les nanopiliers magnétiques prête pour les tests électriques. On connecte les contacts correspondants aux électrodes supérieure et inférieure à l'aide de deux pointes en tungstène (une masse et un signal) pour faire passer le courant à travers la jonction tunnel.



FIGURE 4.3 – Plaque 100 mm après le procédé de nanofabrication. Le détail montre un motif avec 5 jonctions tunnel et les contacts des électrodes supérieure et inférieure.

## 4.3 Méthode d'estimation de la probabilité de retournement

Le retournement de l'aimantation est un processus stochastique. Par conséquent, plus l'expérience est répétée, plus la caractérisation du retournement est précise. En effet, en considérant que le retournement de l'aimantation suit une loi de Bernoulli<sup>2</sup>, l'erreur  $\sigma$  en fonction du nombre de tirages N et de la probabilité P est donnée par :

$$\sigma = \sqrt{\frac{P(1-P)}{N}} \tag{4.2}$$

Le maximum d'erreur correspond à une probabilité de retournement de 50%. Pour cette valeur de probabilité, il faut réaliser l'expérience au moins 100 fois pour avoir une erreur inférieure à 5%.

<sup>2.</sup> La loi de Bernoulli correspond à une expérience à deux issues, comme le tirage à pile ou face, qui sont en général non équiprobables.

Le principe classique de la mesure de retournement de l'aimantation par transfert de spin d'une jonction tunnel magnétique est le suivant :

- 1. Détermination des états de résistance dans la configuration parallèle  $R_P$  et antiparallèle  $R_{AP}$  grâce au cycle d'hystérésis de la résistance en fonction du champ appliqué;
- 2. Initialisation de la jonction dans un état parallèle ou antiparallèle;
- 3. Application d'une impulsion (contrôlée en tension ou en courant) sur la jonction tunnel;
- 4. Mesure de la résistance dans l'état final après l'impulsion. Pour un état initial parallèle (même raisonnement pour un état initial antiparallèle) :
  - si la résistance passe de  $R_P$  à  $R_{AP}$ , la cellule mémoire a été écrite;
  - si la résistance reste égale à  $R_P$ , la cellule mémoire n'a pas été écrite.

Cette procédure est répétée un certain nombre de fois pour estimer la probabilité de retournement P qui sera égale à :

$$P = \frac{\text{Nombre de fois où la cellule a été écrite}}{\text{Nombre d'essais}}$$
(4.3)

Cette méthode peut devenir lente si le nombre de tirage est important en raison du temps de transfert entre les différents appareils. Nous avons utilisé une méthode de mesure plus rapide qui consiste à utiliser le cycle d'hystérésis comme support pour initialiser la jonction et pour estimer la probabilité de retournement. Le protocole expérimental est illustré sur la Figure 4.4. Il consiste à appliquer une impulsion à un champ  $H_0$  qui correspond au centre du cycle d'hystérésis où les deux états de résistance sont possibles (région bi-stable). Si cette impulsion est suffisante pour faire basculer l'aimantation, on observe un saut de résistance à  $H_0$  qui n'est pas dû au champ appliqué mais à l'impulsion. Si l'impulsion n'est pas suffisante pour faire basculer l'aimantation, le cycle d'hystérésis est inchangé. Après l'application de l'impulsion, le champ magnétique permet de réinitialiser la jonction dans son état d'origine. En répétant cette opération un grand nombre des fois, on obtient une marche sur le cycle d'hystérésis de hauteur  $\Delta r$ . Chaque cycle de la Figure 4.4 est le résultat d'une moyenne de 64 cycles.



FIGURE 4.4 – Protocole expérimental permettant l'estimation de la probabilité de retournement lors de l'application d'une impulsion de tension fixe. Chaque cycle est le résultat de la moyenne de 64 cycles. Sur (a), aucune impulsion n'a retourné l'aimantation par transfert de spin et la probabilité vaut 0%, dans (b) la probabilité est de 26% et dans (c) toutes les impulsions appliquées sur la jonction ont retourné l'aimantation de la couche libre. La probabilité dans ce dernier cas vaut 100%.

La probabilité de retournement P en fonction de  $\Delta r$  et de l'amplitude  $\Delta R$  totale du cycle d'hystérésis est donnée par :

$$P = \frac{\Delta r}{\Delta R} \tag{4.4}$$

Sur la Figure 4.4a, les impulsions n'ont pas été suffisantes pour que l'aimantation de la couche libre soit retournée et la probabilité est donc de 0%. Dans la Figure 4.4b, la marche qui apparaît sur le cycle d'hystérésis correspond à une probabilité de retournement de 26%. Finalement, la Figure 4.4c montre que toutes les impulsions qui ont été appliquées sur la jonction ont provoqué le retournement de l'aimantation et la probabilité est donc de 100%.

Cette méthode permet d'appliquer les impulsions à champ nul ou à un autre champ, en général le champ de couplage de la couche libre. Il est possible également d'appliquer une impulsion à la fois sur la branche montante et descendante du cycle d'hystérésis et ainsi étudier le retournement dans le sens parallèle à antiparallèle et vice versa pour un sens de courant donné.

#### 4.4 Montage expérimental

Le montage expérimental utilisé pour les tests électriques est décrit par la Figure 4.5. Ce montage permet de mesurer la résistance et d'appliquer une impulsion avec une tension fixe dans la jonction tunnel. L'entrée AC du bias tee est connectée à un générateur d'impulsions. Ce générateur permet d'appliquer des impulsions de 50 ps à 10 ns avec des amplitudes jusqu'à 10 V. Le générateur est unipolaire, c'est-à-dire que les impulsions ne peuvent être appliquées sur la jonction que dans un sens (de l'électrode supérieure vers l'inférieure ou vice versa). Pour changer la polarité des impulsions, il faut changer la position des pointes sur le contact électrique des motifs de la plaque. L'entrée DC du bias tee est connectée à une source de courant. Un oscilloscope est relié en parallèle pour mesurer la résistance et permettre de faire les moyennes des cycles d'hystérésis lors de l'application des impulsions afin d'estimer la probabilité de retournement comme nous l'avons expliqué dans la section précédente. La sortie du bias tee (AC+DC) est reliée aux pointes qui sont connectées à la jonction tunnel. Le champ magnétique est généré par un courant qui passe dans une bobine située au-dessous de l'échantillon. La fréquence de balayage du champ magnétique est de 0,1 Hz et le temps d'intégration du signal pour la mesure de la résistance est de 10 ms.



FIGURE 4.5 – Montage expérimental utilisé pour tracer le cycle d'hystérésis et estimer la probabilité de retournement d'une jonction tunnel magnétique.

## 4.5 Polariseur perpendiculaire et jonction à base d'alumine

Dans cette section, les tests électriques des jonctions tunnel avec une barrière de  $Al_2O_3$ seront présentés. Nous avons élaboré des nanopiliers magnétiques par le procédé décrit précédemment sur deux plaques de 100 mm de diamètre. La première plaque consiste en une jonction tunnel magnétique à base de  $Al_2O_3$  avec un polariseur perpendiculaire. Les résultats de caractérisation magnétique et électrique sur l'échantillon pleine tranche (couche mince avant la nanostructuration) sont montrés dans le Paragraphe 3.3.2 du Chapitre 3. La deuxième plaque est une jonction tunnel magnétique avec une barrière tunnel également à base de  $Al_2O_3$  mais sans polariseur perpendiculaire. Cette deuxième plaque sert de référence à la première. L'épaisseur de la couche de Al qui a ensuite été oxydée par un processus d'oxydation naturelle varie d'environ 0,38 à 0,77 nm. Cela nous permet d'avoir un gradient sur la valeur du R×A de la barrière tunnel. Le détail des empilements est décrit ci-dessous :

#### Plaque avec polariseur perpendiculaire :

Polariseur perpendiculaire : Ta 3/Pt 5/[Co 0,5/Pt 0,4] $_{\times 5}$ /Co 1/Cu 0,3/Co 1 Couche séparatrice : Cu 3 Couche libre : Co<sub>60</sub>Fe<sub>20</sub>B<sub>20</sub> 2 Barrière tunnel : Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>  $\rightarrow$  Al de 0,38 à 0,77 nm + oxydation naturelle 300 secondes 160 mbar Couche de référence : Co<sub>60</sub>Fe<sub>20</sub>B<sub>20</sub> 3/Ru 0,9/Co 2/Ir<sub>80</sub>Mn<sub>20</sub> 7 (en nm) Recuit : 250°C - 90 minutes

Plaque de référence sans polariseur perpendiculaire :

Couche libre :  $Co_{60}Fe_{20}B_{20}$  2 Barrière tunnel :  $Al_2O_3$  (Al de 0,38 à 0,77 nm + oxydation naturelle 300 secondes 160 mbar Couche de référence :  $Co_{60}Fe_{20}B_{20}$  3/Ru 0,9/Co 2/Ir<sub>80</sub>Mn<sub>20</sub> 7 (en nm) Recuit : 250°C - 90 minutes

#### 4.5.1 Caractéristiques des nanopiliers

Avant de présenter les résultats électriques sur les nanopiliers, nous allons montrer la cartographie de la plaque en termes de résistance et de TMR afin d'évaluer des éventuels problèmes rencontrés lors de la fabrication. Cela nous permettra de comprendre les dispersions de la résistance et de possibles réductions de la TMR sur les nanopiliers. La Figure 4.6 montre la distribution de la TMR en fonction de la résistance minimale dans la configuration parallèle pour l'échantillon de référence sans polariseur perpendiculaire. Les points correspondent à une épaisseur fixe de la barrière de  $Al_2O_3$  à savoir 0,6 nm d'aluminium qui a été ensuite oxydé.



FIGURE 4.6 – Distribution de TMR en fonction de la résistance minimale (dans l'état parallèle) pour une épaisseur d'aluminium égale à 0,6 nm.

Le pic de la TMR autour de 30% correspond au cas où il n'y a aucune résistance parasite. La CIPT de la plaque avant la nanostructuration donne une TMR d'environ 30% et un R×A de 30  $\Omega.\mu m^2$ .

On remarque qu'il existe une dispersion des points sur le graphe sur les valeurs de résistance et de TMR. La première cause de la dispersion sur la résistance est liée aux différentes tailles des piliers. Plus la surface du pilier est grande, plus la résistance sera faible<sup>3</sup>. Cette dispersion ne doit pas affecter la TMR mesurée des dispositifs. L'autre partie des dispersions qui ne sont pas associées à la taille des piliers, est liée à la présence de résistances parasites qui apparaissent généralement lors du procédé de nanofabrication. Ces résistances provoquent une réduction de la TMR mesurée, la TMR intrinsèque de la barrière dû au transport tunnel à travers la barrière, ne change pas. Elles peuvent être des résistances en série ou en parallèle. Les résistances séries sont dues à des fines couches isolantes qui peuvent se former dans le nanopilier. Cela peut venir par exemple des traces de résine qui restent sur le pilier ou des fines couches métalliques qui s'oxydent. La couche de Ta qui sert d'électrode supérieure ou les lignes de conduction du courant peuvent aussi contribuer aux résistances en série. La résistance mesurée sera donc plus importante que

<sup>3.</sup> La résistance R d'un matériau est définie par  $R = \rho \cdot L / S$  où  $\rho$  est la résistivité du matériau, L sa longuer et S la section d'aire.

la résistance attendue pour la barrière tunnel. Les résistances en parallèle viennent de re-dépôts métalliques qui peuvent apparaître au niveau de la barrière tunnel lors des différentes gravures. Ces résistances ont tendance à réduire la résistance attendue pour la barrière tunnel. Si toutes les jonctions étaient idéales sans aucun défaut de fabrication, les points devraient se trouver au sommet du graphe avec une TMR maximale et une résistance correspondant à la taille du pilier. Il est important de noter que sur une même jonction, on peut avoir à la fois des résistances en série et en parallèle.

Les graphes de la Figure 4.7 montrent une cartographie du  $R \times A$  (a), de la TMR (b) et du champ de couplage de la couche libre (c) en fonction de l'épaisseur d'aluminium qui a été oxydée pour former la barrière tunnel. Ces graphes correspondent à la plaque de référence sans polariseur perpendiculaire.



FIGURE 4.7 – Distribution de la TMR en fonction de la résistance minimale (dans l'état parallèle) pour une épaisseur donnée de la barrière tunnel. Il s'agit d'une structure de référence sans polariseur perpendiculaire

Les comportements observés sont en accord avec des études déjà réalisés au laboratoire sur les barrières à base d'alumine [56]. Le gradient de l'épaisseur d'Al se traduit par un gradient de la valeur du R×A. Le R×A augmente avec l'épaisseur d'Al. Le graphe de la TMR en fonction de l'épaisseur montre un maximum de la TMR pour une épaisseur d'Al d'environ 0,6 nm. Pour les valeurs plus faibles que cette épaisseur, la TMR diminue ce qui correspond à une suroxydation de la barrière en raison de la faible épaisseur d'Al. Pour les épaisseurs plus importantes que 0,6 nm, la TMR décroît légèrement ce qui indique une barrière sous-oxydée probablement dû à une quantité d'oxygène insuffisante pour oxyder complètement la couche d'Al. Le champ de couplage de la couche libre est fortement augmenté pour les faibles épaisseurs d'Al indiquant que dans cette région, l'épaisseur est tellement faible que la couche libre et la couche piégée sont couplées probablement à cause de la présence de *pinholes*. Pour une épaisseur d'Al donnée, les dispersions observées à chaque épaisseur dans les trois graphes de la Figure 4.7 sont dus au fait que le procédé de nanofabrication n'est pas complètement homogène sur toute la plaque et également la présence de résistances parasites comme nous l'avons évoqué auparavant.

#### 4.5.2 Résultats électriques

Le cycle magnétique d'une jonction avec le polariseur perpendiculaire est montré sur la Figure 4.8. Le champ de couplage de la couche libre est d'environ 40 Oe. En tenant compte de la forme du cycle, le décalage du cycle vers la droite nous indique que l'état stable à champ nul est l'alignement parallèle. La couche libre et la couche de référence sont donc couplées par un couplage de Néel ou par couplage direct à travers des *pinholes*. La TMR est de 9,4 % et le R×A attendu est d'environ 20  $\Omega.\mu$ m<sup>2</sup> (basé sur des mesures CIPT faites sur l'échantillon avant la nanofabrication). La jonction est elliptique de dimension nominale 50 par 100 nm. Par contre, à cette taille, il faut ajouter un élargissement latéral de 40 nm dû à la gravure IBE. En connaissant le R×A de la jonction et sa taille, nous pouvons calculer la résistance attendue pour la jonction. L'application numérique nous donne une résistance de l'ordre de 2000  $\Omega$ . Ici la mesure est plutôt autour de 100  $\Omega$  ce qui nous indique la présence d'une résistance en parallèle due au ré-dépôt pendant le procédé de fabrication. La présence de ces résistances parasites s'accompagnent également d'une perte de TMR.



FIGURE 4.8 – Cycle d'hystérésis pour une jonction tunnel avec polariseur perpendiculaire.

Les tests d'écriture ont été réalisés en variant la durée et l'amplitude des impulsions pour la plaque avec le polariseur perpendiculaire. Les courbes de la Figure 4.9 montrent l'évolution du cycle d'hystérésis pour des gammes de durées d'impulsion jusqu'à 4,8 ns avec une amplitude de 0,87 V (a) et vers 5 ns à 1,28V (b) sur la même jonction tunnel. L'impulsion est appliquée à un champ égal à 40 Oe (ligne pointillée sur les graphes) sur la branche descendante et ascendante du cycle d'hystérésis ce qui permet d'analyser les transitions parallèle à antiparallèle et antiparallèle à parallèle respectivement comme expliqué dans le Paragraphe 4.3. Chaque cycle est le résultat d'une moyenne de 32 cycles. Pour les deux graphes, les électrons passent du polariseur vers la couche libre, donc par convention, le courant est appliqué dans le sens contraire. En ne tenant compte que de l'éffet du transfert de spin de la couche de référence sur la couche libre sans tenir compte du polariseur perpendiculaire, si l'état initial est parallèle, ce sens de courant favorise la transition vers l'état antiparallèle (cf. Paragraphe 1.2.6 au Chapitre 1). Si l'état initial est antiparallèle, ce sens de courant stabilise cet état initial.

Sur les deux graphes on voit une baisse de la résistance au fur et à mesure que la durée d'impulsion augmente et que l'amplitude est importante. Cette baisse de résistance traduit un claquage électrique de la barrière tunnel. Ce claquage est un claquage graduel de la barrière avec la durée des impulsions. La Figure 4.9a ne montre pas de retournement de l'aimantation avec les impulsions. En revanche, le graphe de la Figure 4.9b montre une probabilité de transition importante de l'état parallèle vers l'état antiparallèle. La probabilité de transition opposée est moins prononcée.



FIGURE 4.9 – Cycle de magnétorésistance durant lesquels ont été appliquées des impulsions à un champ égal à 40 Oe. Les courbes du graphe de gauche (a) correspondent à une tension de 0,87 V et des durées d'impulsion allant de 2,85 à 8,80 ns tandis que les courbes du graphe de gauche correspondent à une tension de 1,28 V et des durées d'impulsion allant de 5,25 à 5,85 ns.

Bien qu'il puisse y avoir des erreurs liées à l'estimation de la probabilité dues au claquage progressif de la barrière tunnel, nous avons tracé la probabilité de commutation en fonction de la tension de l'impulsion et de sa durée (Figure 4.10). Nous avons estimé la probabilité de retournement pour les deux transitions : parallèle (P) à antiparallèle (AP) (Figure 4.10a) et également antiparallèle (AP) à parallèle (P) (Figure 4.10b). Les tensions appliquées sont de 1 V, 1,35 V et 1,58 V ce qui correspond à des densités de courant d'environ 1,5 à  $3.10^8 \text{ A/cm}^2$  en tenant compte du niveau de résistance mesurée sur le cycle d'hystérésis et la taille de la jonction. Cette importante densité de courant n'a pu être appliquée dans la jonction qu'en raison d'une grande densité de pinholes dans la barrière (barrière partiellement claquée). Dans notre cas, les électrons viennent du polariseur vers la couche libre. Chaque point des graphes a été obtenu par un cycle magnétique moyenné 32 fois comme montré dans la Figure 4.9.



FIGURE 4.10 – Probabilité de retournement de l'aimantation en fonction de la durée d'impulsion pour différentes tensions et pour les transitions de l'état parallèle à antiparallèle (a) et antiparallèle à parallèle (b). Les électrons partent du polariseur perpendiculaire vers la couche libre.

Pour une impulsion de tension égale à 1,58 V et des durées plus grandes que 5 ns, la barrière tunnel a complètement claqué (pas de cycle magnétique). Cela explique l'absence des points à partir de 5 ns sur les graphes de la Figure 4.10.

D'abord, considérons la transition de l'état parallèle à antiparallèle (Figure 4.10a). Le déclenchement du retournement magnétique se fait pour des durées d'impulsions plus courtes lorsque la tension augmente. A 1,58 V, on remarque une légère réduction de la probabilité pour les impulsions plus longues. Dans cette région, la barrière est très abîmée en raison du claquage électrique, il est donc difficile de tirer des conclusions sur ce comportement. Néanmoins, la tendance générale est valable. Les oscillations de la probabilité de retournement n'ont pas été observées.

Le retournement de l'aimantation grâce au transfert de spin de la couche de référence est un processus activé thermiquement par des petites déviations de l'aimantation hors de sa position d'équilibre. Ces déviations sont générées par l'agitation thermique de l'aimantation lors du passage de l'impulsion. Il y a donc un temps de latence avant le retournement. Les durées typiques de l'impulsion afin de retourner l'aimantation par transfert de spin de la couche de référence vont de 2 à 10 ms [104]. Dans le cas d'un retournement précessionnel, cette durée doit être réduite car le mécanisme de retournement grâce au transfert de spin venant du polariseur perpendiculaire ne nécessite pas de déviation initiale de l'aimantation. Ici, nous avons une probabilité non nulle de commutation pour des impulsions de l'ordre de la centaine de picosecondes. Malgré le fait que des oscillations de la probabilité n'ont pas été mis en évidence, ce déclenchement ultra-rapide du retournement est peut-être dû à l'action du spin torque provenant du polariseur perpendiculaire. Néanmoins, il est possible que l'effet du transfert de spin venant de la couche de référence soit aussi présent. Au prochain paragraphe, nous allons voir que l'écriture précessionnelle a été plus clairement observée pour des systèmes avec une jonction tunnel à base de MgO.

Considérons maintenant la transition de l'état antiparallèle à parallèle (Figure 4.10b). Pour les tensions supérieures à 1,35 V, la probabilité de commutation est différente de zéro. Puisque le sens de courant stabilise l'état antiparallèle de départ, le fait d'avoir une probabilité différente de zèro est peut-être aussi une indication de l'action du polariseur perpendiculaire. Les résultats que nous venons de présenter étaient le seul exemple d'écriture sur une jonction tunnel à base d'alumine. Le problème rencontré sur les plaques avec et sans polariseur perpendiculaire était que la barrière tunnel claquait avant que l'écriture de la jonction ne soit réalisée. La Figure 4.11 montre la tension de claquage en fonction du R×A pour les plaques sans et avec polariseur perpendiculaire. Le R×A était donc encore trop important pour avoir des effets sur le retournement de l'aimantation par transfert de spin sans claquer la barrière. Sur l'exemple montré sur la Figure 4.9, on constate que l'écriture n'a pu être réalisée qu'une fois que la barrière a été partiellement claquée et par conséquent un courant plus important a pu être injecté dans la jonction.



FIGURE 4.11 – Tension de claquage pour les différentes valeurs de R×A pour la plaque de référence sans polariseur perpendiculaire (points bleus) et pour la plaque avec polariseur perpendiculaire (points rouges).

## 4.6 Polariseur perpendiculaire dans une jonction à base de MgO

Dans cette section, nous allons présenter les résultats électriques des jonctions avec une barrière tunnel à base de MgO. Nous avons fabriqué des nanopiliers sur une plaque de 100 mm de diamètre avec une structure qui intègre un polariseur perpendiculaire avec une jonction à base de MgO [105]. L'empilement est constitué d'un polariseur perpendiculaire synthétique. La couche libre est également synthétique ainsi que la couche piégée. Le couplage à travers chaque couche de Ru de l'empilement est antiferromagnétique. Les caractérisations magnétiques et électriques de la structure avant la nanofabrication sont montrés dans le Paragraphe 3.3.3 du Chapitre 3. Avant la nanofabrication de la plaque, les mesures CIPT montrent une TMR autour de 80% et un R×A égal à 15  $\Omega.\mu$ m<sup>2</sup>. Le détail de l'empilement est donné ci-dessous :

#### Plaque avec polariseur perpendiculaire :

Polariseur perpendiculaire : Ta 3/Pt 5/[Co 0,5/Pt 0,4] $_{\times 5}$ /Co 0,5/Ru 0,9/ Pt 0,2/[Co 0,5/Pt 0,4] $_{\times 3}$ /Co 0,5/Co<sub>60</sub>Fe<sub>20</sub>B<sub>20</sub> 1 Couche séparatrice : Cu 3 Couche libre : Co<sub>60</sub>Fe<sub>20</sub>B<sub>20</sub> 1,3/Ru 0,9/Co<sub>60</sub>Fe<sub>20</sub>B<sub>20</sub> 1,17 Barrière tunnel : Mg 0,8 + oxydation naturelle 10 s 160mbar/Mg 0,5 Couche de référence :  $Co_{60}Fe_{20}B_{20}$  3/Ru 0,9/Co 2/Ir<sub>80</sub>Mn<sub>20</sub> 7 (en nm) Recuit : 300°C - 90 minutes

La Figure 4.12 montre le cycle de magnétorésistance de la couche libre en fonction du champ appliqué pour une jonction de forme elliptique de 80 par 270 nm (diamètre des axes principaux) en tenant compte de l'élargissement de la taille latérale de 40 nm dû à la gravure IBE. Dans la suite de ce paragraphe toutes les jonctions testées ont cette même taille.



FIGURE 4.12 – Cycle d'hystérésis d'une jonction tunnel avec polariseur perpendiculaire sous forme de nanopilier.

Le champ de couplage de la couche est de 65 Oe. Vu la forme du cycle et son décalage vers la droite, la configuration la plus stable à champ nul est l'antiparallèle ce qui nous indique que la couche libre et la couche de référence sont couplées par couplage dipolaire. Les aimantations des couches qui composent la couche de référence ne sont pas complètement compensées ce qui peut entraîner également un petit champ de fuite au niveau de la couche libre. Des études sont à réaliser pour compenser les aimantations de la couche de référence afin de réduire le champ de fuite. Sur tous les tests, un champ extérieur est donc appliqué pour compenser le champ de couplage de la couche libre lors de l'application des impulsions.

La résistance attendue pour l'état parallèle est d'environ 1300  $\Omega$  en considérant que le R×A de la jonction vaut 15  $\Omega.\mu m^2$  (donné par la mesure CIPT) et la taille de la jonction. Or, ici la résistance dans l'état parallèle vaut 800  $\Omega$ . Il y a donc des résistances en parallèle dues au re-dépôt pendant la gravure IBE du pilier magnétique. Cela explique également la légère réduction de la TMR mesurée sur les nanopiliers (TMR≈60%) en comparaison avec la plaque pleque pleine tranche (TMR≈80%). Toutes les jonctions testées dans ce paragraphe ont la même forme de cycle d'hystérésis avec un champ de couplage autour de 60 Oe et avec une TMR pratiquement constante autour

#### de 60%.

Lors de l'application des impulsions sur la jonction tunnel avec la méthode présentée dans la Section 4.3, des marches correspondant à la probabilité de retournement apparaissent très clairement sur les cycles (résultat de la moyenne d'un certain nombre des cycles). Contrairement à la barrière à base d'alumine, les niveaux de résistances sont stables et il n'y a pas de claquage graduel de la barrière lors de l'application des impulsions. Pour illustrer cela, la Figure 4.13 montre le cycle d'hystérésis lors de l'application d'une impulsion de 900 ps avec une tension de 1,48 V. Les impulsions sont appliquées à un champ égal à 50 Oe (ligne pointillé sur le graphe) sur la branche descendante et ascendante du cycle. Le cycle correspond à une moyenne de 32 cycles de magnétorésistance. La probabilité de transition de l'état parallèle vers l'état antiparallèle est de 73% tandis que pour la transition antiparallèle à parallèle la probabilité vaut 0%.



FIGURE 4.13 – Cycle correspondant à une moyenne de 32 cycles. Les impulsions sont appliquées à un champ égal à 50 Oe. La marche sur le cycle correspond à une probabilité de retournement de la transition parallèle à antiparallèle de 73%. Pour la transition opposée, la probabilité vaut 0%

#### 4.6.1 Electrons de la couche libre vers le polariseur

Nous avons appliqué des impulsions sur les dispositifs afin que les électrons arrivent de la couche de référence et traversent toute la structure vers le polariseur perpendiculaire. Les électrons qui arrivent dans le polariseur perpendiculaire et qui n'ont pas la même orientation en spin que la couche perpendiculaire, sont réfléchis dans la couche libre. Il existe donc des électrons réfléchis qui ont une composante hors du plan mais dans le sens opposé de l'aimantation du polariseur perpendiculaire. Ces électrons avec une aimantation perpendiculaire sont responsables du couple exercé dans la couche libre pour la faire précesser.

En considérant maintenant le transfert de spin qui provient de la couche de référence, si l'état initial est l'état antiparallèle, ce sens de courant favorise la commutation de la couche libre vers l'état parallèle (cf. Figure 1.10 du Paragraphe 1.2.6). En revanche, si l'état initial est l'état parallèle, le courant doit stabiliser cet état initial. La Figure 4.14 montre la probabilité de retournement de l'aimantation de la couche libre en fonction de la durée d'impulsion. Chaque point correspond à une moyenne de 64 points obtenus par la méthode décrite dans le Paragraphe 4.3. La tension de l'impulsion est égale à 1,48 V ce qui correspond à une densité de courant de 9.10<sup>6</sup> A/cm<sup>2</sup>.



FIGURE 4.14 – Probabilité de retournement de l'aimantation de la couche libre en fonction de la durée d'impulsion pour la transition parallèle à antiparallèle (points noirs) et pour la transition antiparallèle à parallèle (points rouges). L'amplitude de l'impulsion est de 1,48 V.

Considérons d'abord la transition parallèle à antiparallèle (points noirs). Deux pics de la probabilité sont observés vers 690 ps et 1700 ps. Cela correspond à une période d'environ 1000 ps et donc une fréquence de précession de 1 GHz. L'ordre de grandeur de la fréquence des précessions hors du plan trouvée par des simulations numériques réalisées par Lee et al. sur les systèmes avec un polariseur perpendiculaire et une couche libre planaire est d'environ 1 à 20 GHz [99]. Nos résultats sont donc en bon accord avec les simulations numériques. La valeur de la fréquence trouvée correspond aussi à celle observée pour des systèmes entièrement métalliques avec un polariseur perpendiculaire pour des applications du type mémoire [53] et également pour les oscillateurs radiofréquences [24]. On rappelle que cette transition n'est pas favorisée par le transfert de spin qui vient de la couche de référence. Le retournement observé dans ce cas est donc probablement dû aux effets de spin torque provenant du polariseur perpendiculaire. Cela est confirmé par le fait que des oscillations de la probabilité apparaissent clairement en fonction de la durée d'impulsion.

Maintenant, considérons la transition antiparallèle à parallèle (points rouges). En

tenant compte seulement de l'effet du transfert de spin de la couche de référence, c'est cette transition qui est favorisée par le sens du courant. On remarque que la probabilité de retournement est non nulle. En revanche, il est difficile d'affirmer que la probabilité de retournement oscille en fonction de la durée des impulsions car il y a une seule demioscillation visible avec un retour de la probabilité à 50%. L'absence d'oscillations ou l'incohérence des oscillations si elles existent, n'est pas encore bien comprise. En effet, nous nous attendions à ce que dans ce cas, le transfert de spin venant de la couche de référence favorise le retournement de la couche de libre qui serait en principe declenché grâce au polariseur perpendiculaire.

Pour des durées plus longues que 2000 ps, la probabilité des deux transitions tend vers 50%. Nous attribuons cet effet à une perte de cohérence des oscillations. Cela peut venir du fait que, pour les plus longues impulsions, l'agitation thermique devient plus importante. Cela induit des petites déviations de l'aimantation qui peuvent changer la fréquence des précessions. Sur la base de cette hypothèse, l'erreur cumulée de la fréquence lorsque l'aimantation a déjà réalisée deux ou trois tours est plus grande. Par conséquence, à partir d'une certaine durée d'impulsion, la probabilité que l'état final de l'aimantation soit parallèle ou antiparallèle par rapport à la couche de référence sont identiques.

La Figure 4.15 montre la probabilité de retournement pour une autre jonction. Les électrons vont toujours de la couche libre vers le polariseur. Chaque point correspond à une moyenne de 32 cycles de magnétorésistance. Pour une tension de 1,48 V (Figure 4.15a), le pic de la probabilité n'est pas bien défini. En revanche pour une tension plus importante de 1,88 V, un premier pic de la probabilité apparaît autour de 600 ps pour la transition parallèle à antiparallèle. Pour cette tension, une probabilité de 100% a été observée pour une durée de 600 ps. Contrairement à la jonction montrée dans la Figure 4.14, un deuxième pic de probabilité n'a pas été observé sur la plage de durées étudiées mais le comportement des deux jonctions est similaire.



FIGURE 4.15 – Probabilité de retournement de l'aimantation de la couche libre en fonction de la durée d'impulsion pour la transition parallèle à antiparallèle (points noirs) et pour la transition antiparallèle à parallèle (points rouges). Deux amplitudes de tension ont été étudiées : 1,48 V (a) et 1,88V (b).

#### 4.6.2 Electrons du polariseur vers la couche libre

Maintenant, la polarité du courant est telle que les électrons passent du polariseur perpendiculaire vers la couche libre. Les électrons qui passent par le polariseur sont polarisés perpendiculairement au plan. Quand ils arrivent dans la couche libre, ils exercent un couple sur l'aimantation de celle-ci pour la faire précesser hors du plan. En considérant uniquement les effets de transfert de spin de la couche de référence, si l'état initial est la configuration parallèle, le sens de courant favorise maintenant la transition vers l'état antiparallèle. En revanche, si l'état initial est antiparallèle, ce sens de courant stabilise la configuration initiale.

Le graphe de la Figure 4.16 montre la probabilité de retournement de l'aimantation de la couche libre en fonction de la durée d'impulsion pour deux valeurs de tension différentes : 1,18 V et 1,48 V. Ces tensions correspondent à des densités de courant égales à 7,37 et 9,25.10<sup>6</sup> A/cm<sup>2</sup> respectivement. Chaque point correspond à une probabilité de retournement moyenné sur 64 essais.



FIGURE 4.16 – Probabilité de retournement de l'aimantation de la couche libre en fonction de la durée d'impulsion pour la transition parallèle à antiparallèle (points noirs) et pour la transition antiparallèle à parallèle (points rouges). Deux amplitudes de tension ont été étudiées : 1,18 V (a) et 1,48V (b).

Pour la transition parallèle à antiparallèle (points noirs), un retournement avec des impulsions très courtes est observé. Une probabilité de retournement de 100% est atteinte pour des impulsions de 800 ps et 1,18 V, et aussi pour des impulsions de 500 ps avec une tension égale à 1,48 V. Pour cette transition, trois pics de la probabilité de retournement apparaissent avec une période d'environ 1150 ps pour 1,18 V et avec une période d'environ 1000 ps pour 1,48 V. Comme pour l'autre sens de courant, la fréquence des oscillations est en accord avec les valeurs observées dans la littérature pour les simulations numériques [99] et pour des systèmes entièrement métalliques [24, 53].

La fréquence de précession augmente avec la densité de courant ce qui est un signe caractéristique des oscillations hors du plan [99]. En effet, la fréquence f des oscillations est directment proportionnellle à la densité de courant [99, 106] :

$$f \propto \frac{\gamma}{2\pi} \left[ \frac{\hbar}{2e} \frac{g(\eta)}{M_s t} \right] \frac{J}{\alpha}$$
(4.5)

où  $\gamma$  est le facteur gyromagnétique,  $\hbar$  la constante de Planck réduite, e la charge de l'électron, g l'éfficacité de la polarisation en spin,  $\eta$  la polarisation en spin,  $M_s$  l'aimantation à la saturation, t l'épaisseur de la couche, J la densité de courant et  $\alpha$  le coefficient d'amortissement.

Le déclenchement des oscillations est plus rapide lorsque la tension augmente. Pour une tension de 1,48 V, la probabilité de retournement est non nulle dès 100 ps. Le temps de latence est donc très faible comparé à des jonctions planaires classiques sans polariseur perpendiculaire [107]. En effet, le couple lié au transfert de spin est proportionnel à  $\vec{M} \times (\vec{P} \times \vec{M})$  où  $\vec{M}$  est l'aimantation et  $\vec{P}$  le vecteur polarisation (cf. Section 1.1.5). Dans le cas des jonctions aux aimantation planaires,  $\vec{M}$  et  $\vec{P}$  sont colinéaires et donc leur produit vectoriel est nul. C'est l'agitation thermique qui induit des petites déviations de l'aimantation permettant d'activer le retournement. Ce processus est caractérisé par un temps de latence [107]. Dans le cas d'un retournement avec polariseur perpendiculaire, cette durée doit être réduite car le mécanisme de retournement grâce au transfert de spin venant du polariseur perpendiculaire ne nécessite pas de déviation initiale de l'aimantation puisque le vecteur  $\vec{M}$  et  $\vec{P}$  sont initiallement perpendiculaires. Les oscillations dans la probabilité sont clairement dues à un retournement précessionnel généré grâce au spin torque qui provient du polariseur perpendiculaire. En fonction de la durée d'impulsion, l'aimantation réalise soit une demi-précession (ou des multiples) ce qui correspond à une probabilité de retournement maximale, soit une précession entière (ou des multiples) pour revenir à l'état initial ce qui correspond à une probabilité de retournement minimale.

En revanche, pour la transition antiparallèle vers parallèle et pour une tension égale à 1,18 V, la probabilité de retournement augmente avec la durée mais n'y a pas d'oscillation de probabilité dans la plage des durées étudiées. Pour une tension de 1,48 V, il est possible de distinguer deux pics de probabilité à 1100 ps et à 2000 ps. Par contre ils sont beaucoup moins prononcés en comparaison avec l'autre transition.

Pour les deux transitions, les oscillations sont amorties pour des durées plus longues et la probabilité tend vers 50% pour 1,48 V probablement en raison d'une perte de la cohérence de la rotation de l'aimantation. Cela a été observé également pour l'autre sens de courant.

Pour cette polarité de courant avec les électrons venant du polariseur perpendiculaire vers la couche libre, les oscillations de la probabilité de retournement sont plus marquées en comparaison avec la polarité contraire (vérifié également sur d'autres jonctions). Ce point sera discuté plus en détail dans le Paragraphe 4.6.4.

#### 4.6.3 Comportement général

Les oscillations de la probabilité de retournement sont un phénomène reproductible sur un grand nombre des jonctions sur la plaque (environ 70% sur une cinquantaine de jonctions testées) pour une plage de durée de 50 à 5000 ps et des tensions de 1,2 à 2 V. Pour les jonctions où les oscillations n'ont pas été observées, la probabilité de retournement augmente en fonction de la durée des impulsions mais un niveau de probabilité égale à 100% n'est pas atteint. Les résultats présentés précédemment correspondent à des jonctions différentes pour chaque sens de courant. Pour compléter les résultats, nous allons voir le comportement d'une même jonction pour une gamme plus large de tensions et pour les deux sens de courant. Ce comportement traduit la tendance générale de la majorité des jonctions que nous avons testées. Ces mesures ont été possibles grâce à l'acquisition d'un nouveau générateur d'impulsions permettant l'application des impulsions avec un pas en tension plus fin et la possibilité d'application d'impulsions bipolaires. Cela n'était pas possible avec le générateur d'impulsions utilisé pour les tests présentés dans les paragraphes précédents. Les résultats sont présentés sur la Figure 4.17. Les deux sens de courant ont été testés pour des tensions variant de 1,14 à 1,89 V. La densité de courant correspondante va de 7,6.10<sup>7</sup> à 1,2.10<sup>8</sup> A/cm<sup>2</sup>. La durée d'impulsion va de 100 à 3000 ps. Chaque point correspond à une probabilité de retournement mesurée sur 30 essais.



FIGURE 4.17 – Probabilité de retournement de l'aimantation de la couche libre en fonction de la durée d'impulsion pour la transition parallèle à antiparallèle (points noirs) et pour la transition antiparallèle à parallèle (points rouges). Tests réalisées pour des tensions allant de 1,14 à 1,89 V. Les électrons passent de la couche libre vers le polariseur pour les graphes de la colonne (a) et du polariseur vers la couche libre pour les graphes de la colonne (b).

Considérons d'abord la colonne de gauche correspondant aux électrons qui partent de la couche libre vers le polariseur perpendiculaire (Figure 4.17a). La probabilité de retournement de la transition parallèle vers antiparallèle (points noirs; transition **non favorisée** par le transfert de spin de la couche de référence) est non nulle dès une tension égale à 1,14 V. Jusqu'à 1,51 V, les oscillations de la probabilité ne sont pas présentes. Une fois que la probabilité de retournement atteint 100%, elle reste autour de cette valeur même pour des durées d'impulsion plus longues. Ce régime ressemble au comportement observé sur des jonctions tunnel magnétiques avec polariseur perpendiculaire où un retournement ultra-rapide a été observé mais les oscillations de la probabilité n'ont pas été clairement mises en évidence [102, 103]. Finalement à partir de 1,7 V, les oscillations de la probabilité de retournement sont observées. Pour l'autre transition antiparallèle à parallèle (points rouges; transition **favorisée** par le transfert de spin de la couche de référence), le retournement de l'aimantation commence à apparaître pour des tensions à partir de 1,7 V mais les oscillations ne sont pas explicitement visibles.

Maintenant, considérons la colonne de droite qui correspond aux électrons partant du polariseur perpendiculaire vers la couche libre (Figure 4.17b). On constate l'apparition progressive des oscillations de la probabilité de retournement quand la tension des impulsions augmente. Pour la transition de l'état parallèle vers l'état antiparallèle (points noirs; transition **favorisée** par le transfert de spin de la couche de référence), les oscillations de la probabilité de retournement commencent à se manifester dès 1,32 V. En revanche, pour la transition antiparallèle à parallèle (points rouges; transition **non favorisée** par le transfert de spin de la couche de spin de la couche de référence), les oscillations de la probabilité de retournement pour les deux transitions apparaissent plus tard pour une tension égale à 1,7 V. Pour 1,89 V, nous avons des oscillations de la probabilité de retournement pour les deux transitions a été observée également pour des systèmes métalliques avec un polariseur perpendiculaire synthétique [53].

Nous avons construit un diagramme de phase de la probabilité de retournement en fonction de la durée d'impulsion et de la densité de courant pour la transition parallèle à antiparallèle pour un sens de courant correspondant aux électrons allant de la couche libre vers le polariseur Figure 4.18a et pour le sens opposé Figure 4.18b. Les diagrammes sont en accord avec des simulations micromagnétiques (cf. Figure 4.20). On voit clairement sur le diagramme de la Figure 4.18b que pour une densité de courant fixe, des oscillations de la probabilité apparaissent lorsque la durée des impulsions augmente.



FIGURE 4.18 – Diagramme de phases de la probabilité en fonction de la densité de courant et de la durée des impulsions pour les deux sens de courant.

#### 4.6.4 Discussions

#### Sens du courant et oscillations

Les oscillations sont plus marquées dans le cas où les éléctrons traversent d'abord le polariseur perpendiculaire vers la couche libre en comparaison avec l'autre sens de courant. L'origine de cet effet est probablement la couche de cuivre qui sépare la couche libre du polariseur perpendiculaire. Pour expliquer ce phénomène, considérons deux électrodes magnétiques séparées par une couche de cuivre. Lorsque que les électrons traversent la couche de cuivre, le coefficient de transmission est plus important que le coefficient de réflexion [108]. Par conséquence, dans notre cas, lorsque que les électrons traversent d'abord la couche perpendiculaire, la densité d'électrons qui arrivent dans la couche libre (polarisés perpendiculairement au plan grâce au polariseur) est plus importante que dans le cas où les électrons arrivent de l'électrode supérieure vers le polariseur. Dans ce dernier cas, les électrons polarisés perpendiculairement au plan sont les électrons réfléchis par le polariseur moins nombreux que dans le cas précédant. Cela explique pourquoi l'efficacité du transfert de spin du polariseur perpendiculaire est plus importante pour les électrons qui passent d'abord par le polariseur. Il est important de noter que si la couche qui sépare le polariseur et la couche libre était une barrière tunnel (cas de doubles barrières étudiées dans le Paragraphe 3.2), cette asymétrie par rapport au sens de courant serait, sur la base de cette hypothèse, moins importante. En effet, pour une barrière tunnel, le coefficient de transmission et de réflexion sont du même ordre de grandeur d'après les travaux en cours au laboratoire [109]. Par conséquent, pour les deux sens de courant, nous nous attendons à observer les mêmes effets de transfert de spin provenant du polariseur perpendiculaire dans le cas d'une double barrière.

## Transition parallèle vers antiparallèle favorisée indépendamment du sens de courant

Deux cas ont été observés :

- Electrons du polariseur perpendiculaire vers la couche libre : les oscillations sont plus marquées pour la transition parallèle à antiparallèle. Cette transition est **favorisée** par le transfert de spin provenant de la couche de référence.
- Electrons de la couche libre vers le polariseur perpendiculaire : les oscillations sont aussi plus marquées pour la transition parallèle à antiparallèle. Cette transition n'est pas favorisée par le transfert de spin qui provient de la couche de référence. L'état initial qui devrait être stabilisé par le courant (en considérant le transfert de spin de la couche de référence), est pourtant celui qui va être retourné plus facilement en comparaison à l'autre transition.

Donc, indépendamment du sens de courant, la transition parallèle vers antiparallèle est toujours favorisée par rapport à la transition opposée. Une piste pour expliquer ce phénomène est de supposer l'effet du *field-like term* sur nos systèmes. Rappelons l'équation qui traduit le couple du transfert de spin (Paragraphe 1.2.6 du Chapitre 1) :

$$\vec{\Gamma} = a_j \vec{M} \times \left(\vec{P} \times \vec{M}\right) + b_j \vec{M} \times \vec{P}$$
(4.6)

où  $\stackrel{\rightarrow}{M}$  est l'aimantation et  $\stackrel{\rightarrow}{P}$  le vecteur polarisation.

Le premier terme correspond à la composante longitudinale du transfert de spin tandis que le deuxième terme correspond à la composante perpendiculaire, aussi appelé *fieldlike torque*. Le deuxième terme, négligeable dans un système complètement métallique, ne l'est plus pour les jonctions tunnel magnétiques. Cela a été vérifié par des calculs numériques [26, 27, 28] et ensuite expérimentalement [29, 30, 31]. Le *field-like torque* a une dépendance quadratique avec la tension appliquée. C'est-à-dire pour les deux sens de courant, l'effet du couple perpendiculaire est le même. Par contre, cette approximation est valable seulement pour une jonction symétrique (les deux couches en contact avec la barrière sont identiques).

Oh et al. ont montré théoriquement et expérimentalement que, pour une jonction non symétrique, une dépendance linéaire du *field-like torque* avec la tension se rajoute à la dépendance quadratique [110]. Par conséquence, pour un sens du courant, les effets de la composante perpendiculaire sont plus prononcés en comparaison à l'autre sens du courant. La Figure 4.19 montre la probabilité de retournement pour les différentes transitions. On constate que le *field-like torque* peut influencer différemment chaque transition. La transition antiparallèle à parallèle est beaucoup plus perturbée par la composante perpendiculaire du couple de transfert de spin en comparaison à l'autre transition.



FIGURE 4.19 – Probabilité de retournement en fonction de la tension appliquée pour la transition antiparallèle à parallèle (a) et parallèle à antiparallèle (b). Extrait de [110].

Dans notre cas, la transition de l'état antiparallèle vers l'état parallèle est aussi défavorisée. Par contre, cette hypothèse nous donne juste une piste pour comprendre nos résultats. Une analyse plus approfondie est nécessaire surtoût en raison de la complexité de notre système avec des effets de transfert de spin qui peuvent venir du polariseur perpendiculaire et de la couche de référence.

#### Polariseur perpendiculaire synthétique

Dans d'autres systèmes reportées dans la littérature intégrant un polariseur perpendiculaire et une jonction tunnel, les oscillations n'ont pas été clairement observées [102, 103]. Il est possible que l'apparition des oscillations dans nos échantillons soit en grande partie attribuée à la structure synthétique du polariseur perpendiculaire. L'utilisation d'un polariseur perpendiculaire synthétique réduit les champs rayonnées par la couche perpendiculaire sur la couche libre en comparaison avec un polariseur non synthétique [89]. Vaysset et al. ont montré par des simulations micromagnétiques que ces champs rayonnées induisent la formation d'un état vortex de l'aimantation de la couche libre et par conséquent, le retournement de la couche libre devient moins cohérent [53]. La Figure 4.20 montre les résultats des ces simulations pour un système avec un polariseur perpendiculaire synthétique (Figure 4.20a) et non synthétique (Figure 4.20b). On constate qu'un polariseur perpendiculaire synthétique permet d'obtenir les oscillations de l'aimantation plus cohérentes comparées au cas non synthétique.



FIGURE 4.20 – En haut : probabilité de retournement en fonction de la durée des impulsions et du courant pour un polariseur synthétique (a) et non synthétique (b). Les carrés blancs correspondent à une probabilité égale à 100% tandis que les carrés noirs correspondent à une probabilité égale à 0%. La zone grise correspond à un état vortex de l'aimantation. Les graphes du bas montrent la composante  $M_x$  de l'aimantation lors de l'application de l'impulsion. Extrait de [53].

#### Couche libre synthétique

Nous avons utilisé une structure synthétique pour la couche libre en raison d'une incompatibilité d'une couche unique de CoFeB avec la couche de Cu qui sépare la couche libre du polariseur perpendiculaire (cf. Paragraphe 3.3.3). Néanmoins, il est possible que les effets de transfert de spin observés soient aussi liés à la structure synthétique de la couche libre. Cette structure synthétique pourrait contribuer à la cohérence des précessions observées. La réduction de champs rayonnés sur les autres couches grâce au bouclage des lignes de champ à l'intérieur de la couche libre pourrait avoir aussi des effets sur le transfert de spin. Firastrau et al. ont montré par des simulations macrospin, que des oscillations hors du plan sont présentes pour un système intégrant un polariseur perpendiculaire et une couche libre synthétique avec un couplage RKKY antiferromagnétique à travers une couche de Ru. [111]. Dans notre cas, il serait important de mieux comprendre l'influence de la structure synthétique de la couche libre sur les effets de transfert de spin observés.

#### 4.7 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons montré les tests électriques sur les piliers magnétiques des dispositifs qui ont été optimisés dans le chapitre précédent. Deux types de jonctions intégrant un polariseur perpendiculaire ont été testés : à base d'alumine et à base de MgO. La couche séparatrice entre le polariseur perpendiculaire et la couche libre est le cuivre.

Le principal problème rencontré sur les jonctions d'alumine était le  $\mathbb{R}\times\mathbb{A}$  de la barrière trop important (supérieur à 20  $\Omega.\mu m^2$ ). Le retournement par transfert de spin a été observé pour seulement une jonction avec polariseur perpendiculaire après claquage partiel de la jonction ce qui a permis l'injection d'un courant plus important dans la jonction. Le sens du courant est tel que les électrons partent du polariseur perpendiculaire pour aller vers la couche libre. Un retournement très rapide inférieur à 500 ps a été observé pour la transition parallèle à antiparallèle. Des oscillations de la probabilité de retournement en fonction de la durée des impulsions n'ont pas été observées.

Les tests électriques sur les jonctions de MgO ont montré clairement un retournement précessionnel de l'aimantation de la couche libre dû au polariseur perpendiculaire. Un retournement de l'aimantation ultra-rapide inférieur à 500 ps pour la transition parallèle à antiparallèle et inférieur à 1200 ps pour la transition opposée a été observé avec une probabilité de retournement égale à 100%. Des oscillations de la probabilité de retournement en fonction de la durée des impulsions sont présentes pour les deux sens de courant. Dans le cas où les électrons passent d'abord par le polariseur perpendiculaire pour aller vers la couche libre, les oscillations sont plus prononcées en comparaison au sens de courant contraire. Cela peut être expliqué par une asymétrie des électrons transmis et réfléchis par la couche de cuivre qui sépare le polariseur de la couche libre. Pour le cuivre, le coefficient de transmission est plus important que celui de réflexion ce qui expliquerait une efficacité plus importante du polariseur perpendiculaire lorsque les électrons passent d'abord par la couche perpendiculaire. Indépendamment du sens de courant, la transition de l'état parallèle vers l'état antiparallèle semble être favorisée en comparaison à l'autre transition. Cela peut être dû à des effets de *field-like torque* non négligeable dans le cas des jonctions tunnels.

La réussite de l'intégration d'un polariseur perpendiculaire dans une jonction à base de MgO et la validation de l'écriture précessionnelle ont eu lieu à la fin des ces travaux de thèse. Il reste donc des tests complémentaires à faire pour aider à la compréhension des phénomènes observés :

- Elargir la gamme des durées des impulsions : pour étudier les différentes régimes d'écriture, il sera intéressant d'élargir la gamme des durées des impulsions jusqu'à quelques dizaines de nanosecondes. Cela nous permettra de distinguer le régime précessionnel valable pour les courtes durées d'impulsion, typiquement inférieures à 5 ns, du régime d'écriture activé thermiquement et dominé par le transfert de spin de la couche de référence pour des durées d'impulsion plus longues.

- Test électrique sur un échantillon de référence sans polariseur perpendiculaire : des plaques sans polariseur ont été préparées en même temps que les plaques avec polariseur perpendiculaire. Par contre, en raison des problèmes rencontrés lors de la gravure du pilier magnétique pendant le procédé de nanofabrication, ces plaques ont été endommagées et les tests électriques n'ont pas pu être réalisés. Des nouvelles plaques sont en cours de préparation ce qui nous permettra de les comparer avec les résultats déjà obtenus sur les jonctions tunnel avec polariseur perpendiculaire.
- Réduction du R×A de la jonction tunnel : les jonctions tunnel magnétiques avec un produit R×A plus faible permettront l'application d'un courant continu à travers la jonction tunnel sans claquage de la barrière. Ce type de mesure permettra l'étude des propriétés dynamiques des dispositifs. En réduisant la résistance de la barrière, les dispositifs pourront aussi être utilisés en tant qu'oscillateurs radiofréquences où un courant continu est appliqué pour induire des oscillations entretenues.
- Simulations magnétiques tenant compte du transfert de spin des différentes couches : cela permettra de mieux comprendre le rôle joué par le transfert de spin du polariseur perpendiculaire et de la couche de référence. Les simulations magnétiques aideront aussi à la compréhension des effets de transfert de spin en utilisant une couche libre synthétique.
## Conclusions générales et perspectives

L'objectif de cette thèse de doctorat était l'élaboration d'une jonction tunnel magnétique standard à aimantation planaire qui intègre un polariseur à anisotropie perpendiculaire. Grâce au transfert de spin venant du polariseur perpendiculaire, il est possible d'indure des oscillations hors du plan de l'aimantation de la couche libre. L'idée est d'utiliser ces précessions ultra-rapides (de l'ordre de la centaine de picosecondes) comme mode d'écriture dans une cellule MRAM. Le deuxième objectif de cette thèse était donc la validation du concept d'écriture précessionnelle sur les structures optimisées.

La première partie de ces travaux a été consacrée à l'optimisation de la barrière tunnel. Nous avons optimisé deux types de barrière tunnel à base de MgO la première préparée par pulvérisation cathodique radio-fréquence (MgO RF) et la deuxième préparée par un processus d'oxydation d'une couche de magnésium (MgO oxydation naturelle). Pour les barrières à base de MgO RF, nous avons montré l'importance des insertions métalliques de Mg dans la région de faible  $R \times A$ . Nous avons aussi optimisé la température de recuit en tenant compte des propriétés électriques et magnétiques des jonctions. Pour les barrières à base de MgO oxydation naturelle, nous avons montré qu'une insertion métallique de Mg sur la barrière tunnel permet d'augmenter considérablement le signal de TMR en comparaison à un échantillon sans insertion. Le temps d'oxydation et la pression ont été optimisés. Ces optimisations ont permis d'atteindre un R×A égal à 15  $\Omega.\mu m^2$  avec une TMR d'environ 90%. Les niveaux de R×A atteints ont été compatibles avec les densités de courant nécessaires à l'observation des effets de transfert de spin sur nos échantillons sans claquage de la barrière tunnel. Toutefois, des efforts restent à faire pour réduire encore le  $R \times A$  de la barrière. Cela permettrait d'injecter un courant continu à des densités importantes, condition nécessaire à l'étude de la dynamique de l'aimantation de nos dispositifs.

Ensuite nous avons intégré un polariseur perpendiculaire dans une jonction tunnel magnétique. Deux configurations ont été testées. La première consiste à utiliser deux barrières tunnel (double barrière) : une entre la couche libre et la couche de référence et l'autre servant de séparateur entre la couche libre et le polariseur perpendiculaire. Sur ce type de structure, deux problèmes majeurs ont été rencontrés : le couplage entre la couche libre et la couche de référence est trop grand et le  $R \times A$  est fortement augmenté. Par conséquence, nous avons utilisé d'autres solutions d'intégration. Néanmoins, il serait important de reprendre des tests d'intégration afin d'estimer l'efficacité du transfert de

spin venant du polariseur perpendiculaire à travers une couche d'oxyde. Comme alternative aux doubles barrières, nous avons utilisé une couche séparatrice à base de cuivre entre le polariseur perpendiculaire et la couche libre. Avec ce type de structure, nous avons réussi à intégrer le polariseur perpendiculaire dans une jonction tunnel magnétique à base de MgO tout en gardant de bonnes caractéristiques magnétiques et électriques. La structure optimale est originale car le polariseur perpendiculaire, la couche libre et la couche de référence ont une structure synthétique avec un couplage antiferromagnétique à travers une couche de ruthénium.

Nous avons réalisé des tests électriques en appliquant des impulsions de courant sur les nanopiliers des structures optimisées. Ces tests sur des jonctions à base de MgO ont permis d'observer un retournement précessionnel de l'aimantation de la couche libre dû au polariseur perpendiculaire. Un retournement de l'aimantation inférieur à 500 ps pour la transition parallèle à antiparallèle et inférieur à 1200 ps pour la transition opposée ont été observés avec une probabilité égale à 100%. Des oscillations de la probabilité de retournement en fonction de la durée des impulsions sont présentes pour les deux sens de courant. Cela est un signe caractéristique du retournement précessionnel, ce qui nous a permis de valider ce mode d'écriture et d'atteindre ainsi les objectifs fixés au début de cette thèse.

Des améliorations sur les caractérisations électriques restent à faire, notamment pour les tests de retournement en temps réel et les tests dynamiques. Ces derniers ne seront possibles que pour un niveau de R×A encore plus faible que les valeurs actuelles (quelques  $\Omega.\mu m^2$ ) ce qui permettra l'application d'un courant continu suffisamment important pour observer des oscillations.

Le système que nous avons développé est assez complexe avec trois couches synthétiques. L'utilisation d'une structure synthétique en couche libre était au départ liée à un problème de croissance de la couche de CoFeB sur le séparateur en cuivre. Il est possible que les résultats de transfert de spin observés soient aussi liés à la structure synthétique de la couche libre. Une étude plus approfondie sur le rôle joué par la structure de cette couche est nécessaire afin de mieux comprendre les effets de transfert de spin observés. L'élaboration de systèmes avec d'autres types de couche libre (synthétique avec un couplage ferromagnétique ou couche de CoFeB unique) permettront peut-être d'apporter des réponses à nos questions.

Avec la validation expérimentale de l'écriture précessionnelle, les simulations magnétiques en tenant compte de la composition exacte des nos structures pourront aider à la compréhension des phénomènes observées comme par exemple l'influence du "field-like term" sur la transition de l'état antiparallèle à l'état parallèle, les asymétries de la probabilité de retournement pour les différentes transitions en fonction du sens de courant ou encore les effets liés aux structures synthétiques utilisées.

Les résultats de ces travaux sont importants pour le développement des mémoires magnétiques à écriture ultra-rapide permettant au MRAM de concurrencer les SRAM. Ils constituent aussi une piste pour le développement des oscillateurs radio-fréquence qui utilisent les précessions hors du plan. La structure que nous avons optimisée et la validation de l'écriture précessionnelle ouvrent des portes à la compréhension des mécanismes physiques du transport tunnel et de la dynamique de l'aimantation.

## Annexe A

# Procédé de nanofabrication des piliers magnétiques

L'objectif de la nanofabrication est la fabrication des jonctions tunnels magnétiques de taille nanométrique et des connexions associées qui nous permettent de faire circuler un courant perpendiculaire au plan des couches. Les étapes de nanofabrication sont les suivantes :



Etape 1 : Les couches magnétiques sont déposées sur une couche de CuN de 30 nm d'épaisseur. Cette couche constitue l'électrode inférieure qui servira à faire le contact électrique de la jonction tunnel. Sur la jonction tunnel, un masque dur est déposé constitué d'une épaisse couche de Ta de 170 nm. Une couche de 10 nm d'Al est déposée entre le masque dur et la jonction tunnel. Cette couche servira de couche d'arrêt à la gravure du Ta comme nous verrons dans la suite. Une couche de résine PMMA 2% sensible aux faisceau d'électrons est étalée sur le masque dur. La partie de la résine exposée aux faisceau d'électrons lors de la prochaine étape devient soluble en présence d'un développeur.



**Etape 2 :** Les piliers sont définis par lithographie électronique. Cette litographie très précise permet la fabrication de motifs de l'ordre de la dizaine de nanomètres. Différentes tailles des piliers sont définies : des formes circulaires allant de 50 à 500 nm de diamètre et des ellipses avec des facteurs de forme allant de 2 (50 par 100 nm) jusqu'à 8 (100 par 800 nm).



**Etape 3 :** Une couche de 20 nm de Pt est déposée sur la plaque par une technique d'évaporation d'une cible de Pt.



**Etape 4 :** La résine PMMA qui reste sur la plaque est enlevée par une technique dit *lift-off.* Cela consiste à tremper l'échantillon dans l'acétone. La PMMA part avec la couche de Pt qui est sur la résine. Il reste seulement du Pt à l'endroit qui définit la taille du nanopilier.

**Etape 5** : Une gravure dite Gravure Ionique Réactive ou RIE pour *Reactive Ion Etching* permet de graver toute l'épaisseur du tantale. Cette technique est sélective, c'est-à-dire qu'un plasma, ici à base de  $SF_6$ , réagit chimiquement avec certains éléments. Dans notre cas, le plasma va réagir avec le tantale et non pas avec le Pt ni avec l'Al. Par conséquent, la couche de Pt protège le pilier du plasma formant ainsi un nanopilier sur la jonction tunnel. La gravure s'arrête au niveau de la couche d'Al qui protège la jonction tunnel et sert de couche d'arrêt à la gravure RIE.



**Etape 6 :** La jonction magnétique est gravée par une technique dite Usinage Ionique ou IBE pour *Ion Beam Etching.* Au contraire de la gravure RIE, la gravure IBE n'est pas sélective. Le plasma, dans notre cas constitué d'argon, grave toutes espèces présentes à la superficie de la plaque. Lors de la gravure, la couche de Ta (très épaisse en comparaison aux autres couches) protège la jonction située au-dessous de celle-ci. Seulement une partie de la couche de Ta sera gravée. On arrête la gravure sous la barrière tunnel au niveau du polariseur perpendiculaire. Le contrôle des couches gravées se fait par détection de spectroscopie de masse à ions secondaires (SIMS pour *Secondary Ion Mass Spectroscopy*) où on distingue les éléments qui sont en train d'être gravés grâce à leur masse atomique. La gravure est faite sous un angle de -45° par rapport à la normale pour éviter les redépôts des matériaux gravés dans la jonction tunnel. La Figure A.1 montre une image de microscopie électronique à balayage où on peut voir les piliers après gravure IBE. Pour un pilier circulaire d'initialement 50 nm de diamètre, il y a un élargissement du pilier d'environ 35 nm sur le diamètre après la gravure IBE. La présence d'un pied de gravure en bas du pilier est dû à l'ombrage fait par le Ta pendant cette gravure sous angle.



FIGURE A.1 – Image de microscopie électronique à balayage d'un réseau des piliers après gravure IBE.







**Etape 8 :** Gravure IBE des matériaux magnétiques restants et de la couche de CuN jusqu'au substrat de SiO<sub>2</sub>. La résine AZ 1512 protège le pilier magnétique. Elle est ensuite enlevée de la plaque grâce à une gravure RIE avec un plasma d'oxygène suivi d'un bain à l'acétone.



**Etape 9 :** Etalement et recuit du polymère planarisant Accuflo avec une épaisseur d'environ 400 nm. Ce polymère servira à isoler électriquement les deux électrodes. Ensuite la résine AZ 1512 est à nouveau étalée sur la plaque pour la prochaine étape de lithographie optique.



**Etape 10 :** Etape de lithographie optique et développement dans le but de définir une zone d'isolation autour du pilier.



**Etape 11 :** L'accuflo qui a été dégagé pendant la lithographie optique est gravé par RIE avec un plasma d'oxygène. Les parties de la plaque recouvertes de la résine AZ 1512 ne sont pas gravées lors de cette étape.



**Etape 12 :** La résine est enlevée dans un bain d'acétone avec des ultrasons. Pour connecter le pilier magnétique à l'électrode supérieure, l'épaisseur d'accuflo est diminuée jusqu'à ce que le haut du point mémoire soit découvert. Cet amincissement est effectué par gravure RIE. Cette étape est très délicate car il est important de bien dégager le haut des piliers tout en gardant une bonne isolation de l'électrode inférieure. Ce contrôle est fait grâce à un profilomètre capable de mesurer le relief de la plaque.



**Etape 13 :** La résine AZ 1512 est étalée sur la plaque pour la prochaine étape de lithographie optique qui définira l'électrode supérieure.



**Etape 14 :** Etape de lithographie optique. Le masque utilisé définit l'électrode supérieure et il reprend aussi le contact sur l'électrode inférieure.



**Etape 15 :** Dépôt par évaporation de 300 nm d'Al. L'épaisseur importante est nécessaire pour la prise de contact à l'aides des pointes qui feront les contacts électriques entre les électrodes.



**Etape 16 :** La résine est enlevée par *lift-off*. La couche d'Al sur la résine part pendant le bain à l'acétone avec des ultrasons. C'est la dernière étape de la nanofabrication.

Grâce à cette procédure, on obtient un pilier magnétique connecté via des électrodes métalliques.

# Bibliographie

- [1] E. Du Trémolet de Lacheisserie. *Magnétisme*, *Tome 1 : Fondements (Coll. Grenoble sciences)*. EDP Sciences, 2000.
- [2] W. Gerlach and O. Stern. Das magnetische moment des silberatoms. Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei, 9:353, 1922.
- [3] S.T. Purcell, M.T. Johnson, N.W.E. McGee, W.B. Zeper, and W. Hoving. Spatially resolved magneto-optical investigation of the perpendicular anisotropy in a wedgeshaped ultrathin epitaxial Co layer on Pd(111). *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 113 :257, 1992.
- [4] M.T. Johnson, P.J.H. Bloemen, F.J.A. den Broeder, and J.J. de Vries. Magnetic anisotropy in metallic multilayers. *Reports on Progress in Physics*, 59 :1409, 1996.
- [5] E.C. Stoner and E.P. Wohlfarth. A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A*, *Mathematical and Physical Sciences*, 240:599, 1948.
- [6] O. Fruchart. Couches minces et nanostructures magnétiques (partie 1). http://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/electronique-photoniqueth13/electronique-ti350/couches-minces-et-nanostructures-magnetiques-partie-1e2150/, Mis en ligne le 10 février 2007, consulté le 27 avril 2011.
- [7] L. Néel. Théorie du traînage magnétique des ferromagnétiques en grains fins avec application aux terres cuites. *Annales de Géophysique*, 5 :99, 1949.
- [8] W.F. Brown. Thermal fluctuations of a single-domain particle. *Physical Review*, 130 :1677, 1963.
- M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas. Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices. *Physical Review Letters*, 61:2472, 1988.
- [10] G. Binasch, P. Grunberg, F. Saurenbach, and W. Zinn. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange. *Physical Review B*, 39 :4828, 1989.
- [11] B. Dieny, V.S. Speriosu, S.S.P. Parkin, B.A. Gurney, D.R. Wilhoit, and D. Mauri. Giant magnetoresistive in soft ferromagnetic multilayers. *Physical Review B*, 43 :1297, 1991.

- [12] W.F. Egelhoff, P.J. Chen, C.J. Powell, M.D. Stiles, R.D. McMichael, J.H. Judy, K. Takano, and A.E. Berkowitz. Oxygen as a surfactant in the growth of giant magnetoresistance spin valves. *Journal of Applied Physics*, 82 :6142, 1997.
- [13] M. Julliere. Tunneling between ferromagnetic films. *Physics Letters A*, 54 :225, 1975.
- [14] T. Miyazaki and N. Tezuka. Giant magnetic tunneling effect in Fe/Al2O3/Fe junction. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 139 :L231, 1995.
- [15] J.S. Moodera, Lisa R. Kinder, Terrilyn M. Wong, and R. Meservey. Large magnetoresistance at room temperature in ferromagnetic thin film tunnel junctions. *Physical Review Letters*, 74 :3273, 1995.
- [16] S. Ikeda, J. Hayakawa, Y. Ashizawa, Y.M. Lee, K. Miura, H. Hasegawa, M. Tsunoda, F. Matsukura, and H. Ohno. Tunnel magnetoresistance of 604% at 300 K by suppression of Ta diffusion in CoFeB/ MgO/ CoFeB pseudo-spin-valves annealed at high temperature. *Applied Physics Letters*, 93 :082508, 2008.
- [17] J.C. Slonczewski. Current-driven excitation of magnetic multilayers. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 159 :L1, 1996.
- [18] L. Berger. Emission of spin waves by a magnetic multilayer traversed by a current. *Physical Review B*, 54 :9353, 1996.
- [19] J.A. Katine, F.J. Albert, R.A. Buhrman, E.B. Myers, and D.C. Ralph. Currentdriven magnetization reversal and spin-wave excitations in Co/Cu/Co pillars. *Phy*sical Review Letters, 84 :3149.
- [20] Y. Huai, F. Albert, P. Nguyen, M. Pakala, and T. Valet. Observation of spin-transfer switching in deep submicron-sized and low-resistance magnetic tunnel junctions. *Applied Physics Letters*, 84 :3118, 2004.
- [21] G.D. Fuchs, N.C. Emley, I.N. Krivorotov, P.M. Braganca, E.M. Ryan, S.I. Kiselev, J.C. Sankey, D.C. Ralph, R.A. Buhrman, and J.A. Katine. Spin-transfer effects in nanoscale magnetic tunnel junctions. *Applied Physics Letters*, 85 :1205, 2004.
- [22] S.I. Kiselev, J.C. Sankey, I.N. Krivorotov, N.C. Emley, M. Rinkoski, C. Perez, R.A. Buhrman, and D.C. Ralph. Current-Induced nanomagnet dynamics for magnetic fields perpendicular to the sample plane. *Physical Review Letters*, 93 :036601, 2004.
- [23] Q. Mistral, Joo-Von Kim, T. Devolder, P. Crozat, C. Chappert, J.A. Katine, M.J. Carey, and K. Ito. Current-driven microwave oscillations in current perpendicular-to-plane spin-valve nanopillars. *Applied Physics Letters*, 88 :192507, 2006.
- [24] D. Houssameddine, U. Ebels, B. Delaet, B. Rodmacq, I. Firastrau, F. Ponthenier, M. Brunet, C. Thirion, J.-P. Michel, L. Prejbeanu-Buda, M.-C. Cyrille, O. Redon, and B. Dieny. Spin-torque oscillator using a perpendicular polarizer and a planar free layer. *Nature Materials*, 6 :447, 2007.
- [25] I.N. Krivorotov, D.V. Berkov, N.L. Gorn, N.C. Emley, J.C. Sankey, D.C. Ralph, and R. A. Buhrman. Large-amplitude coherent spin waves excited by spin-polarized current in nanoscale spin valves. *Physical Review B*, 76 :024418, 2007.

- [26] A. Kalitsov, I. Theodonis, N. Kioussis, M. Chshiev, W.H. Butler, and A. Vedyayev. Spin-polarized current-induced torque in magnetic tunnel junctions. *Journal of Applied Physics*, 99 :08G501, 2006.
- [27] I. Theodonis, N. Kioussis, A. Kalitsov, M. Chshiev, and W.H. Butler. Anomalous bias dependence of spin torque in magnetic tunnel junctions. *Physical Review Letters*, 97 :237205, 2006.
- [28] M. Chshiev, I. Theodonis, A. Kalitsov, N. Kioussis, and W.H. Butler. Voltage dependence of spin transfer torque in magnetic tunnel junctions. *IEEE Transactions* on Magnetics, 44 :2543, 2008.
- [29] J.C. Sankey, Y.T. Cui, J.Z. Sun, J.C. Slonczewski, R.A. Buhrman, and D.C. Ralph. Measurement of the spin-transfer-torque vector in magnetic tunnel junctions. *Nature Physics*, 4:67, 2008.
- [30] H. Kubota, A. Fukushima, K. Yakushiji, T. Nagahama, S. Yuasa, K. Ando, H. Maehara, Y. Nagamine, K. Tsunekawa, D.D. Djayaprawira, N. Watanabe, and Y. Suzuki. Quantitative measurement of voltage dependence of spin-transfer torque in MgO-based magnetic tunnel junctions. *Nature Physics*, 4:37, 2008.
- [31] A.M. Deac, A. Fukushima, H. Kubota, H. Maehara, Y. Suzuki, S. Yuasa, Y. Nagamine, K. Tsunekawa, D.D. Djayaprawira, and N. Watanabe. Bias-driven high-power microwave emission from MgO-based tunnel magnetoresistance devices. *Nature Physics*, 4 :803, 2008.
- [32] L. Landau and E. Lifshitz. On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies. *Phys. Z. Sowjetunion*, 8:101, 1935.
- [33] T.L. Gilbert. A phenomenological theory of damping in ferromagnetic materials. *IEEE Transactions on Magnetics*, 40 :3443, 2004.
- [34] J.Z. Sun. Spin-current interaction with a monodomain magnetic body : A model study. *Physical Review B*, 62 :570, 2000.
- [35] C. Baraduc, M. Chshiev, and U. Ebels. Introduction to spin transfert torque. World Scientific Publishing, 2009.
- [36] D. Houssameddine. Dynamique de l'aimantation de nano-oscillateurs micro-ondes spin. Université Grenoble Ι \_ Joà transfert de 2009. seph Fourier, Thèse. Disponible sur http ://tel.archivesouvertes.fr/docs/00/46/66/37/PDF/PhD Houssameddine.pdf.
- [37] M.A. Ruderman and C. Kittel. Indirect exchange coupling of nuclear magnetic moments by conduction electrons. *Physical Review*, 96:99, 1954.
- [38] T. Kasuya. A theory of metallic ferro-and antiferromagnetism on Zener's model. Progress of theoretical physics, 16:45, 1956.
- [39] K. Yosida. Magnetic properties of Cu-Mn alloys. *Physical Review*, 106:893, 1957.
- [40] S.S.P. Parkin and D. Mauri. Spin engineering : Direct determination of the Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida far-field range function in ruthenium. *Physical Review B*, 44 :7131, 1991.

- [41] J. Nogués and I.K. Schuller. Exchange bias. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 192 :203, 1999.
- [42] L. Néel. C. R. Hebd. Seances Acad. Sci., 255 :1545, 1962.
- [43] L. Néel. C. R. Hebd. Seances Acad. Sci., 255 :1676, 1962.
- [44] A. Fert, J.M. George, H. Jaffrès, R. Mattana, and P. Seneor. The new era of spintronics. *Europhysics News*, 34 :227, 2003.
- [45] L. Savtchenko. Method of writing to scalable magnetoresistance random access memory element, 2003. US Patent 6545906 B1.
- [46] M. Durlam, D. Addie, J. Akerman, B. Butcher, P. Brown, J. Chan, M. DeHerrera, BN Engel, B. Feil, G. Grynkewich, et al. A 0.18 μm 4Mb toggling MRAM. In 2003 International Electron Devices Meeting, Washington, DC, page 995, 2003.
- [47] I.L. Prejbeanu, W. Kula, K. Ounadjela, R.C. Sousa, O. Redon, B. Dieny, and J.P. Nozieres. Thermally assisted switching in exchange-biased storage layer magnetic tunnel junctions. *IEEE Transactions on Magnetics*, 40 :2625, 2004.
- [48] M. Kerekes, R.C. Sousa, I.L. Prejbeanu, O. Redon, U. Ebels, C. Baraduc, B. Dieny, J.P. Nozières, P.P. Freitas, and P. Xavier. Dynamic heating in submicron size magnetic tunnel junctions with exchange biased storage layer. *Journal of Applied Physics*, 97 :10P501, 2005.
- [49] B. Dieny and O. Redon. Magnetic device with magnetic tunnel junction, memory array and read/write methods using same, 2002. US Patent App. 10/495,637.
- [50] J.P. Nozieres, B. Dieny, O. Redon, R.C Sousa, and I. L. Prejbeanu. Magnetic memory with a magnetic tunnel junction written in a thermally assisted manner, and method for writing the same, 2006. US Patent 7,411,817.
- [51] I.L. Prejbeanu, M. Kerekes, R.C. Sousa, H. Sibuet, O. Redon, B. Dieny, and J.P. Nozières. Thermally assisted MRAM. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 19 :165218, 2007.
- [52] F. Tabrizi. http://www.flashmemorysummit.com/English/Collaterals/ Proceedings/2009/20090813\_ThursPlenary\_Tabrizi.pdf, Présentation du 13 août 2009, consulté le 29 avril 2011.
- [53] A. Vaysset, C. Papusoi, L.D. Buda-Prejbeanu, S. Bandiera, Marins de Castro, M., Y. Dahmane, J.C. Toussaint, U. Ebels, S. Auffret, R. Sousa, L. Vila, and B. Dieny. Improved coherence of ultrafast spin-transfer-driven precessional switching with synthetic antiferromagnet perpendicular polarizer. *Applied Physics Letters*, 98 :242511, 2011.
- [54] D. Wang, C. Nordman, J.M. Daughton, Z. Qian, and J. Fink. 70% TMR at room temperature for SDT sandwich junctions with CoFeB as free and reference layers. *Magnetics, IEEE Transactions on*, 40 :2269, 2004.
- [55] H.X. Wei, Q.H. Qin, M. Ma, R. Sharif, and X.F. Han. 80% tunneling magnetoresistance at room temperature for thin alŰo barrier magnetic tunnel junction with CoFeB as free and reference layers. *Journal of Applied Physics*, 101 :09B501, 2007.

- [56] S. Bandiera, R.C. Sousa, C. Ducruet, C. Portemont, S. Auffret, I.L. Prejbeanu, and B. Dieny. Off-axis deposition of Al layer for low resistance tunnel barrier. *Journal* of Applied Physics, 107 :09C715, 2010.
- [57] W.H. Butler, X.G. Zhang, T.C. Schulthess, and J.M. MacLaren. Spin-dependent tunneling conductance of Fe/MgO/Fe sandwiches. *Physical Review B*, 63 :054416, 2001.
- [58] J. Mathon and A. Umerski. Theory of tunneling magnetoresistance of an epitaxial fe/mgo/fe(001) junction. *Physical Review B*, 63 :220403, 2001.
- [59] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki, and K. Ando. Giant roomtemperature magnetoresistance in single-crystal Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions. *Nature Materials*, 3 :868, 2004.
- [60] S.S.P. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P.M. Rice, B. Hughes, M. Samant, and S.H. Yang. Giant tunnelling magnetoresistance at room temperature with MgO (100) tunnel barriers. *Nature Materials*, 3:862, 2004.
- [61] X.G. Zhang and W.H. Butler. Large magnetoresistance in bcc Co/MgO/Co and FeCo/MgO/FeCo/ tunnel junctions. *Physical Review B*, 70 :172407, 2004.
- [62] S. Yuasa and D.D. Djayaprawira. Giant tunnel magnetoresistance in magnetic tunnel junctions with a crystalline MgO (001) barrier. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 40 :R337, 2007.
- [63] Ph. Mavropoulos, N. Papanikolaou, and P.H. Dederichs. Complex band structure and tunneling through ferromagnet /insulator /ferromagnet junctions. *Physical Review Letters*, 85 :1088, 2000.
- [64] J.P. Velev, K.D. Belashchenko, D. A. Stewart, M. van Schilfgaarde, S. Jaswal, and E.Y. Tsymbal. Negative Spin Polarization and Large Tunneling Magnetoresistance in Epitaxial CoSrTiO<sub>3</sub>/Co Magnetic Tunnel Junctions. *Physical Review Letters*, 95 :216601, 2005.
- [65] H. Maehara, K. Nishimura, Y. Nagamine, K. Tsunekawa, T. Seki, H. Kubota, A. Fukushima, K. Yakushiji, K. Ando, and S. Yuasa. Tunnel magnetoresistance above 170% and resistance area product of 1 ω.μm<sup>2</sup> attained by in situ annealing of ultrathin MgO tunnel barrier. *Applied Physics Express*, 4 :033002, 2011.
- [66] D.C. Worledge and P.L. Trouilloud. Magnetoresistance measurement of unpatterned magnetic tunnel junction wafers by current-in-plane tunneling. *Applied Physics Letters*, 83:84, 2003.
- [67] D.C. Worledge. Reduction of positional errors in a four-point probe resistance measurement. Applied Physics Letters, 84 :1695, 2004.
- [68] J.G. Simmons. Electric tunnel effect between dissimilar electrodes separated by a thin insulating film. *Journal of Applied Physics*, 34 :2581, 1963.
- [69] W. Wulfhekel, M. Klaua, D. Ullmann, F. Zavaliche, J. Kirschner, R. Urban, T. Monchesky, and B. Heinrich. Single-crystal magnetotunnel junctions. *Applied Physics Letters*, 78 :509, 2001.

- [70] M.M.C. Souza, R.C. Sousa, C. Ducruet, S. Auffret, and B. Dieny. Metallic Mg insertion in rf deposited MgO barrier. *Journal of Applied Physics*, 107 :09C702, 2010.
- [71] K. Tsunekawa, D.D. Djayaprawira, M. Nagai, H. Maehara, S. Yamagata, N. Watanabe, S. Yuasa, Y. Suzuki, and K. Ando. Giant tunneling magnetoresistance effect in low-resistance CoFeB/MgO(001)/CoFeB magnetic tunnel junctions for read-head applications. *Applied Physics Letters*, 87 :072503, 2005.
- [72] Y. Lu, C. Deranlot, A. Vaurès, F. Petroff, J.M. George, Y. Zheng, and D. Demailles. Effects of a thin mg layer on the structural and magnetoresistance properties of Co-FeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions. *Applied Physics Letters*, 91 :222504, 2007.
- [73] S. Yuasa, Y. Suzuki, T. Katayama, and K. Ando. Characterization of growth and crystallization processes in CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junction structure by reflective high-energy electron diffraction. *Applied Physics Letters*, 87 :242503, 2005.
- [74] J.Y. Bae, W.C. Lim, H.J. Kim, T.D. Lee, K.W. Kim, and T.W. Kim. Compositional change of MgO barrier and interface in CoFeB/MgO/CoFeB tunnel junction after annealing. *Journal of Applied Physics*, 99 :08T316, 2006.
- [75] J. Hayakawa, S. Ikeda, Y. M. Lee, F. Matsukura, and H. Ohno. Effect of high annealing temperature on giant tunnel magnetoresistance ratio of CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions. *Applied Physics Letters*, 89 :232510, 2006.
- [76] D.K. Schreiber, Y.S. Choi, Y. Liu, A.N. Chiaramonti, D.N. Seidman, and A.K. Petford-Long. Enhanced magnetoresistance in naturally oxidized mgo-based magnetic tunnel junctions with ferromagnetic cofe/cofeb bilayers. *Applied Physics Letters*, 98 :232506, 2011.
- [77] L. Néel. Anisotropie magnétique superficielle et surstructures d'orientation. Journal de Physique et le Radium, 15 :15, 1954.
- [78] P. Bruno. Tight-binding approach to the orbital magnetic moment and magnetocrystalline anisotropy of transition-metal monolayers. *Physical Review B*, 39 :865, 1989.
- [79] K. Kyuno, J.G. Ha, R. Yamamoto, and S. Asano. Theoretical study on the strain dependence of the magnetic anisotropy of X/Co(X=Pt, Cu, Ag, and Au) metallic multilayers. *Journal of Applied Physics*, 79 :7084, 1996.
- [80] P.F. Carcia, A.D. Meinhaldt, and A. Suna. Perpendicular magnetic anisotropy in Pd/Co thin film layered structures. *Applied Physics Letters*, 47 :178, 1985.
- [81] P.F. Carcia. Perpendicular magnetic anisotropy in Pd/Co and Pt/Co thin-film layered structures. *Journal of Applied Physics*, 63:5066, 1988.
- [82] F.J.A. den Broeder, D. Kuiper, A.P. van de Mosselaer, and W. Hoving. Perpendicular magnetic anisotropy of co-au multilayers induced by interface sharpening. *Physical Review Letters*, 60 :2769, 1988.

- [83] B. Rodmacq, V. Baltz, and B. Dieny. Macroscopic probing of domain configurations in interacting bilayers with perpendicular magnetic anisotropy. *Physical Review B*, 73 :092405, 2006.
- [84] L.E. Nistor, B. Rodmacq, S. Auffret, and B. Dieny. Pt/Co/oxide and oxide/Co/Pt electrodes for perpendicular magnetic tunnel junctions. *Applied Physics Letters*, 94 :012512, 2009.
- [85] E.M. Pugh. Hall effect and the magnetic properties of some ferromagnetic materials. *Physical Review*, 36 :1503, 1930.
- [86] F. Delille, A. Manchon, N. Strelkov, B. Dieny, M. Li, Y. Liu, P. Wang, and E. Favre-Nicolin. Thermal variation of current perpendicular-to-plane giant magnetoresistance in laminated and nonlaminated spin valves. *Journal of Applied Physics*, 100 :013912, 2006.
- [87] Y. Dahmane, S. Auffret, U. Ebels, B. Rodmacq, and B. Dieny. Perpendicular Magnetic Anisotropy induced at Co/Metal and Metal/Co interfaces, 2008. Joint European Magnetic Symposia JEMS MR015.
- [88] B. Rodmacq, A. Manchon, C. Ducruet, S. Auffret, and B. Dieny. Influence of thermal annealing on the perpendicular magnetic anisotropy of Pt/Co/AlOx trilayers. *Physical Review B*, 79 :024423, 2009.
- [89] S. Bandiera, R.C. Sousa, Y. Dahmane, C. Ducruet, C. Portemont, V. Baltz, S. Auffret, I.L. Prejbeanu, and B. Dieny. Comparison of synthetic antiferromagnets and hard ferromagnets as reference layer in magnetic tunnel junctions with perpendicular magnetic anisotropy. *IEEE Magnetics Letters*, 1 :3000204, 2010.
- [90] G. Feng, S. van Dijken, and J.M.D. Coey. Influence of annealing on the bias voltage dependence of tunneling magnetoresistance in MgO double-barrier magnetic tunnel junctions with CoFeB electrodes. *Applied Physics Letters*, 89 :162501, 2006.
- [91] A. Reinartz, J. Schmalhorst, and G. Reiss. Influence of annealing temperature and thickness of a CoFeB middle layer on the tunnel magnetoresistance of MgO based double barrier magnetic tunnel junctions. *Journal of Applied Physics*, 105 :014510, 2009.
- [92] S. Tegen, I. Mönch, J. Schumann, H. Vinzelberg, and C.M. Schneider. Effect of Néel coupling on magnetic tunnel junctions. *Journal of Applied Physics*, 89 :8169, 2001.
- [93] Pierre-Yves Clément. Etude des doubles jonctions tunnel magnétiques à barrière Mg0, 2011. Rapport de Master 2, Université de Grenoble.
- [94] K. Tsumekawa, DD Djayaprawira, M. Nagai, H. Maehara, S. Yamagata, and N. Watanabe. Effect of capping layer material on tunnel magnetoresistance in Co-FeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions, 2005. Digests of the IEEE Int. Magnetics Conf. (Intermag, Nagoya, Japan) HP-08.
- [95] J.C. Slonczewski. Electronic Device using magnetic components, 1997. US Patent 5695864.

- [96] O. Redon, D. Dieny, and B. Rodmacq. Magnetic spin polarization and magnetization rotation device with memory and writing process using such a device, 2003. US Patent US6,532,164 B2.
- [97] Kent A., B. Özyilmaz, and G.E. Gonzalez. High speed low power magnetic devices based on current induced spin-momentum transfer, 2009. US2008112094.
- [98] A. D. Kent, B. Özyilmaz, and E. del Barco. Spin-transfer-induced precessional magnetization reversal. Applied Physics Letters, 84 :3897, 2004.
- [99] K. J. Lee, O. Redon, and B. Dieny. Analytical investigation of spin-transfer dynamics using a perpendicular-to-plane polarizer. *Applied Physics Letters*, 86 :022505, 2005.
- [100] O.J. Lee, V.S. Pribiag, P.M. Braganca, P.G. Gowtham, D.C. Ralph, and R.A. Buhrman. Ultrafast switching of a nanomagnet by a combined out-of-plane and in-plane polarized spin current pulse. *Applied Physics Letters*, 95 :012506, 2009.
- [101] C. Papusoi, B. Delaet, B. Rodmacq, D. Houssameddine, J.-P. Michel, U. Ebels, R. C. Sousa, L. Buda-Prejbeanu, and B. Dieny. 100 ps precessional spin-transfer switching of a planar magnetic random access memory cell with perpendicular spin polarizer. *Applied Physics Letters*, 95 :072506, 2009.
- [102] H. Liu, D. Bedau, D. Backes, J.A. Katine, J. Langer, and A.D. Kent. Ultrafast switching in magnetic tunnel junction based orthogonal spin transfer devices. *Applied Physics Letters*, 97 :242510, 2010.
- [103] G.E. Rowlands, T. Rahman, J.A. Katine, J. Langer, A. Lyle, H. Zhao, J.G. Alzate, A.A. Kovalev, Y. Tserkovnyak, Z.M. Zeng, H.W. Jiang, K. Galatsis, Y.M. Huai, P. Khalili Amiri, K.L. Wang, I.N. Krivorotov, and J.P. Wang. Deep subnanosecond spin torque switching in magnetic tunnel junctions with combined in-plane and perpendicular polarizers. *Applied Physics Letters*, 98 :102509, 2011.
- [104] J.M. Lee, C.M. Lee, L.X. Ye, J.P. Su, and T.H. Wu. Switching properties for mgo-based magnetic tunnel junction devices driven by spin-transfer torque in the nanosecond regime. *IEEE Transactions on Magnetics*, 47 :629, 2011.
- [105] M. Marins de Castro, R.C. Sousa, S. Bandiera, C. Ducruet, S. Auffret, C. Papusoi, I.L. Prejbeanu, U. Ebels, C. Portemont, B. Rodmacq, V. Vila, and B. Dieny. Precessional spin-transfer switching in a magnetic tunnel junction with a synthetic antiferromagnetic perpendicular polarizer, 2011. accepté.
- [106] U. Ebels, D. Houssameddine, I. Firastrau, D. Gusakova, C. Thirion, B. Dieny, and L.D. Buda-Prejbeanu. Macrospin description of the perpendicular polarizer-planar free-layer spin-torque oscillator. *Physical Review B*, 78 :024436, 2008.
- [107] T. Devolder, J. Hayakawa, K. Ito, H. Takahashi, S. Ikeda, P. Crozat, N. Zerounian, Joo-Von Kim, C. Chappert, and H. Ohno. Single-shot time-resolved measurements of nanosecond-scale spin-transfer induced switching : Stochastic versus deterministic aspects. *Physical Review Letters*, 100 :057206, 2008.

- [108] M.D. Stiles and A. Zangwill. Anatomy of spin-transfer torque. *Physical Review B*, 66 :014407, 2002.
- [109] M. Chshiev, A. Manchon, A. Kalitsov, A. Vedyayev, W.H. Butler, and B. Dieny. Analytical description of ballistic spin transport in magnetic tunnel junctions, 2011. en cours de préparation.
- [110] S.C. Oh, S.Y. Park, A. Manchon, M. Chshiev, J.H. Han, H.W. Lee, J.E. Lee, K.T. Nam, Y. Jo, Y.C. Kong, B. Dieny, and Lee K.J. Bias-voltage dependence of perpendicular spin-transfer torque in asymmetric MgO-based magnetic tunnel junctions. *Nature Physics*, 5 :898, 2009.
- [111] I. Firastrau, U. Ebels, D. Gusakova, M.C. Cyrille, C.B. Cizmas, and L.D. Buda-Prejbeanu. State diagram of a perpendicular polarizer - saf free-layer spintorque oscillator. *Digest Journal of Nanomaterials and Biostructures*, 6 :13, 2011.

### Résumé

Cette thèse est consacrée à l'intégration d'un polariseur à anisotropie perpendiculaire dans une jonction tunnel magnétique aux aimantations planaires. Par effet du transfert de spin venant du polariseur perpendiculaire, il est possible d'induire des oscillations de l'aimantation de la couche libre. Ces oscillations ultra-rapides de l'ordre de la picosenconde, peuvent être utilisées comme mode d'écriture dans une cellule magnétique MRAM. Ce type d'écriture est appelée écriture précessionnelle. Nous avons optimisé des structures fonctionnelles tout en gardant des bonnes qualités électriques et magnétiques. Les tests d'écriture sur des nanopiliers ont permis de valider le concept d'écriture précessionnelle ouvrant ainsi une porte à la compréhension des différents phénomènes liés au transport tunnel et à la dynamique de l'aimantation.

Mots clés : écriture précessionnelle, polariseur perpendiculaire, MRAM, transfert de spin, jonction tunnel magnétique

#### Abstract

This thesis is dedicated to the integration of a polarizer with out-of-plane anisotropy in a classical planar magnetic tunnel junction. The spin transfer torque from the perpendicular polarizer induces a large angle precessional motion of the free layer magnetization. These ultrafast oscillations below the nanosecond-scale can be used as writing technique, also called precessional switching in MRAM cells. We optimized a functional memory device with both good electric and magnetic properties. The concept of processional writing was validated by electric tests on patterned nanopillars structures opening the way to investigate different phenomenon's regarding both tunneling transport and magnetization dynamics.

**Keywords** : precessional switching, perpendicular polarizer, MRAM, spintransfer torque, magnetic tunnel junction