



**HAL**  
open science

# Jonctions tunnel magnétiques et ferroélectriques : nouveaux concepts de memristors.

André Chanthbouala

► **To cite this version:**

André Chanthbouala. Jonctions tunnel magnétiques et ferroélectriques : nouveaux concepts de memristors.. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2013. Français. NNT: . tel-00932584

**HAL Id: tel-00932584**

**<https://theses.hal.science/tel-00932584>**

Submitted on 26 Jan 2014

**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 PIERRE ET MARIE CURIE - PARIS VI  
ÉCOLE DOCTORALE ED397  
PHYSIQUE ET CHIMIE DES MATÉRIAUX

# T H È S E

pour obtenir le titre de

**Docteur en sciences**

de l'Université Pierre et Marie Curie - Paris VI  
**Spécialité : SCIENCES DES MATÉRIAUX**

Présentée et soutenue par

André CHANTHBOUALA

**Jonctions tunnel ferroélectriques  
ou magnétiques : nouveaux  
concepts de memristors.**

Thèse dirigée par :

Agnès BARTHÉLÉMY, Julie GROLLIER  
et Jean-Claude MAGE

préparée à l'UMR 137 CNRS/Thales

**Jury :**

- Rapporteurs :* André THIAVILLE - Laboratoire de Physique du Solide  
(CNRS - Université Paris-Sud)
- Marty GREGG - Queen's University Belfast
- Directeur :* Agnès BARTHÉLÉMY - UMR CNRS/Thales (137)  
Université Paris-Sud XI
- Co-encadrant :* Julie GROLLIER - UMR CNRS/Thales (137)
- Jean-Claude MAGE - Thales
- Président :* Jérôme LESUEUR - CNRS - ESPCI
- Examineur :* Philippe LECOEUR - Institut d'Électronique Fondamentale  
(CNRS - Université Paris-Sud)

## Remerciements

En premier lieu je souhaite remercier Frédéric Nguyen Van Dau et Frédéric Petroff pour m'avoir accueilli dans leur laboratoire. Je remercie ma directrice de thèse, Agnès Barthélémy pour m'avoir accordé sa confiance. Merci à Julie pour le temps que tu m'as consacré pendant les manip, pour tout ce que tu m'as enseigné et pour être parvenue à me motiver en toutes circonstances. Tu m'as m'épaulé lors de la dernière année qui a été très difficile personnellement. J'ai pour toi une grande admiration et un profond respect. Merci également à Jean-Claude Mage, qui m'encadrerait du côté de Thales. Pardon et merci à Philippe Lecoeur pour le petit couac administratif et pour avoir accepté d'être dans mon jury de thèse.

Je remercie aussi toutes les personnes avec qui j'ai travaillé ou qui m'ont co-encadré, que ce soit l'équipe de *spin transfer* ou l'équipe oxyde. Vincent Garcia, j'ai beaucoup apprécié les nombreuses fois où nous sommes partis en conf' ensemble ainsi que nos discussions toujours autour d'un verre. Tu as su garder ton sang froid quand mes boulettes de programmation avaient ruiné une journée de manip'. En même temps, il faut voir la tête du programme! Merci à Manu, une vraie locomotive avec qui les choses avancent vite. Gare à ne pas faire dérailler le train cependant. Vincent X, tes conseils et ton côté débonnaire ont été importants et appréciés lors de mes premières simulations micromagnétiques. J'ai hâte de participer à ton prochain pot. Madjid, nous n'avons fait qu'une seule fois des mesures ensemble (mais si, les mesures temps-réel à l'oscillo...) et cela m'a permis de constater que tu n'es pas que cynique et décalé. Toute la période où nous avons travaillé ensemble, Rie, a été très agréable et productive. Peter, João, grâce à vous je commence à parler à l'oreille des parois de domaine. Les mesures en salle PFM ont souvent été animées par la présence de Steef, toujours avec une remarque pour chambrer, et Karim, la plus grande gueule de tout le labo. Étrangement cette salle de manip' critique en terme de vibration acoustique était la seule avec la musique qui jouait en boucle, allez chercher l'erreur...

La pratique régulière du badminton m'a apporté un équilibre remarquable au quotidien. Je remercie donc infiniment les trois mousquetaires avec qui j'ai sué sur les courts : Vincent X, Vincent Garcia et Eric. Dédicace à Lalok au passage qui passait de temps en temps nous montrer tout le chemin qui nous restait encore à parcourir. À ton contact Lalok, j'ai appris beaucoup de choses tant en physique qu'en électronique. J'ai aussi abordé les questions techniques et stratégiques du badminton qui m'ont permis d'améliorer mon jeu. Malgré cela, je ne t'ai toujours pas pris un seul set mais ça ne saurait

tarder! Je te souhaite une heureuse vie avec Laura et tout le bonheur que vous méritez. Julian, je tiens juste à dire que je suis content de te connaître. Puisse l'avenir te réserver plein de bonnes surprises. A l'occasion, on se refera des virées dans Paris avec Nicolas Reyren pour résoudre des énigmes tout en prenant des photos. Paolo et Voula, toujours prêts à prendre l'apéro autour de quelques hors-d'oeuvre concoctés minute. C'est très agréable de vous voir et je passerai dans votre nouvel appartement dès que possible. Merci à ma co-bureau Marie-Blandine, la personne la plus souriante que je connaisse, même quand cela ne va pas bien. Néanmoins, je crois qu'en ce moment le moral est plutôt au beau fixe et franchement, tu le mérites bien;). Merci à mon autre co-bureau Stéph, amatrice de musique électro qui participait aussi à l'ambiance musicale du bureau. Olivier, je crois qu'on n'a pas assez partagé de bières et de discussions *after work*. C'est toujours intéressant d'avoir ton point de vue sur à peu près n'importe quel sujet. Eva, la fille au rire inimitable, reste comme tu es, t'es géniale. Merci aussi à Sören et João, la paire dont l'humour est tellement décalé qu'il est difficile de toujours les comprendre. Un grand merci à Pierre qui me prenait régulièrement en co-voiturage (je t'ai permis de réduire ton empreinte carbone :D). Tu sais toujours trouver les mots pour remonter le moral. Je te remercie également Richard, toi qui comme moi, après quelques bières, a le visage qui s'illumine. Merci encore à Éric, jamais ta langue dans la poche mais jamais malveillant. Merci aussi aux anciens et nouveaux thésards du labo, Steven, Ryan, Édouard, Martha, Mathieu, Antoine, Arnaud, Bruno, Clément et Julie, ainsi qu'à tous les membres du labo qui contribuaient à établir une atmosphère agréable et détendue.

Enfin, je tiens particulièrement à remercier toute la bande de potes qui m'ont donné un coup de main lorsque j'en avais besoin, qui m'ont soutenu dans les moments critiques mais aussi avec qui nous avons partagé tant de franches rigolades. Un énorme merci à Elise et Mathilde pour m'avoir accueilli chez vous pendant une année et demie. C'était bel et bien la maison du bonheur. J'évitais de m'étendre ici sur tout ce que je vous dois, vous êtes tout simplement mes soeurs d'adoption. Merci à toi Oliv' pour avoir partagé avec moi quelques expériences psychadeliques. Sam, toujours là pour aider, parler ou taper la balle jaune. Grâce à toi, la pizza du Golfe de Naples est pour l'instant ma préférée;). Merci aussi à Raoul, le cri qui désaoule. Ben, éternelle globe-trotter avec qui c'est la discussion est toujours animée. Merci à toi, Fred, pour toutes ces parties de tennis où je prends toujours une raclée. Merci à Hélène, animatrice professionnelle du *dance floor*. Merci à Rich, snowboarder si véloce qu'il brûle la neige. Merci à Damien, ami de longue date qui me connaît bien.

À ma famille, à mes amis. À ma mère.



# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>1</b>
1.1	Motivations de l'étude . . . . .	1
1.2	Etat de l'art sur les memristors . . . . .	10
1.2.1	Memristor à oxydo-réduction . . . . .	11
1.2.1.1	Memristor bipolaire à commutation non-linéaire et conduction non localisée . . . . .	11
1.2.1.2	Memristor unipolaire : conduction localisée, filament métallique conducteur . . . . .	12
1.2.1.3	Memristor bipolaire à commutation linéaire et conduction localisée . . . . .	12
1.2.1.4	Memristor bipolaire : conduction localisée, filament métallique conducteur . . . . .	13
1.2.1.5	Memristor bipolaire : conduction uniforme, variation de barrière Schottky . . . . .	15
1.2.2	Memristor à changement de phase . . . . .	16
1.2.3	Memristor organique . . . . .	17
1.2.4	Memristor électronique . . . . .	18
1.2.4.1	1 <sup>er</sup> concept proposé : Memristor spintronique	19
1.2.4.2	2 <sup>eme</sup> concept proposé : Memristor ferroélectrique	21
<b>I</b>	<b>Memristor spintronique</b>	<b>23</b>
<b>1</b>	<b>Etat de l'art</b>	<b>24</b>
1.1	Propriétés des parois de domaine magnétique . . . . .	25
1.1.1	Types de paroi existantes . . . . .	25
1.1.2	Déplacement de paroi sous champ magnétique . . . . .	28
1.2	Notions de bases : Effet de transfert de spin dans une jonction tunnel . . . . .	29
1.3	Déplacement de paroi par transfert de spin . . . . .	34
1.3.1	Injection latérale « Current-In-Plane »(CIP) . . . . .	34
1.3.2	Injection verticale « Current-Perpendicular-to-Plane »(CPP) . . . . .	38
1.3.3	Comparaison CIP vs. CPP . . . . .	42
1.4	Effet de spin-diode . . . . .	43

<b>2</b>	<b>Résultats expérimentaux</b>	<b>48</b>
2.1	Détermination des couples de transfert de spin : mesures spin-diode . . . . .	48
2.1.1	Echantillons étudiés . . . . .	48
2.1.2	Montage expérimental . . . . .	50
2.1.3	Mesure et analyse des spectres . . . . .	51
2.1.3.1	Efficacité de redressement . . . . .	54
2.1.3.2	Extraction des couples de transfert de spin . . . . .	56
2.1.4	Discussion . . . . .	58
2.2	Déplacement de paroi en injection verticale . . . . .	59
2.2.1	Déplacement de paroi par courant DC . . . . .	59
2.2.1.1	Echantillons étudiés . . . . .	59
2.2.1.2	Courbes R(H) à faible tension : création de la paroi . . . . .	60
2.2.1.3	Mesure R(I) : déplacement de la paroi . . . . .	63
2.2.1.4	Efficacité du courant . . . . .	67
2.2.1.5	Simulations micromagnétiques . . . . .	72
2.2.1.6	Discussion . . . . .	73
2.2.2	Déplacement de paroi par impulsion de tension . . . . .	74
2.2.2.1	Echantillons étudiés . . . . .	74
2.2.2.2	Courbes R vs. Angle : création de la paroi . . . . .	75
2.2.2.3	Mesure en temps réel . . . . .	78
2.2.2.4	Vitesse de paroi . . . . .	79
2.2.2.5	Dépiégeage stochastique vs. déterministique : densité de courant critique . . . . .	81
2.2.2.6	Efficacité de transfert de spin . . . . .	84
2.2.2.7	Discussion . . . . .	85
<b>II</b>	<b>Memristor ferroélectrique</b>	<b>88</b>
<b>1</b>	<b>Etat de l'art</b>	<b>89</b>
1.1	Ferroélectricité : notions de base . . . . .	89
1.1.1	Définition . . . . .	89
1.1.2	Structure cristalline et ferroélectricité . . . . .	90
1.1.3	Un ferroélectrique modèle : BaTiO <sub>3</sub> . . . . .	90
1.1.4	Aperçus des théories de la ferroélectricité . . . . .	91
1.1.4.1	Théorie de Landau . . . . .	91
1.1.4.2	Approche <i>ab initio</i> . . . . .	95
1.1.5	Dynamique de renversement de polarisation électrique . . . . .	99
1.1.5.1	Kolmogorov-Avrami-Ishibashi . . . . .	100

1.1.5.2	Nucleation-limited-switching (NLS) . . . . .	102
1.1.6	Mesure de la ferroélectricité . . . . .	104
1.1.6.1	P(E) <i>loop</i> . . . . .	104
1.1.6.2	Microscopie à force piézoélectrique : spectroscopie . . . . .	105
1.1.6.3	Microscopie à force piézoélectrique : imagerie . . . . .	107
1.2	Ferroélectricité en couche ultra-mince . . . . .	108
1.2.1	Effet de taille : épaisseur critique . . . . .	108
1.2.2	Effet de la contrainte . . . . .	110
1.2.2.1	Stabilisation de la ferroélectricité . . . . .	110
1.2.2.2	Influence sur la polarisation et le champ coercitif . . . . .	113
1.2.3	Jonction tunnel ferroélectrique . . . . .	114
1.2.3.1	Principe . . . . .	114
1.2.3.2	Etat de l'art . . . . .	118
<b>2</b>	<b>Jonction tunnel ferroélectrique BaTiO<sub>3</sub></b> . . . . .	<b>121</b>
2.1	Structures étudiées . . . . .	121
2.2	Principe de mesure . . . . .	122
2.3	Performances des jonctions . . . . .	124
2.4	Origines du <i>resistive switching</i> . . . . .	127
2.4.1	Indications de transport en régime tunnel . . . . .	127
2.4.1.1	Produit RA . . . . .	127
2.4.1.2	Mesure I(V) . . . . .	128
2.4.2	Caractérisation ferroélectrique . . . . .	130
2.4.2.1	Stabilité de la piézoréponse . . . . .	130
2.4.2.2	Spectroscopie PFM à travers l'électrode . . . . .	131
2.4.2.3	Imagerie PFM à travers l'électrode . . . . .	133
2.5	Discussion . . . . .	136
<b>3</b>	<b>Memristor ferroélectrique BaTiO<sub>3</sub></b> . . . . .	<b>137</b>
3.1	Echantillons étudiés . . . . .	137
3.2	Comportement memristif . . . . .	137
3.2.1	Influence de l'amplitude des impulsions . . . . .	137
3.2.2	Influence de la durée des impulsions . . . . .	139
3.2.3	Evolution de la résistance : poids synaptique . . . . .	140
3.3	Interprétation : modèle de retournement de polarisation . . . . .	141
3.4	Discussion . . . . .	145

III Conclusion et perspectives	147
Bibliographie	151

# Liste des Abréviations

$T_{IP}$	Torque In-Plane
$T_{OOP}$	Torque Out-Of-Plane
AC	Alternating Current
AFM	Atomic Force Microscopy
BTO	BaTiO <sub>3</sub>
CIP	Current-In-Plane
CPP	Current-Perpendicular-to-Plane
DC	Direct Current
DW-STT-MRAM	Domain Wall Spin Transfer Torque Magnetic Random Access Memory
FTRAM	Ferroelectric Tunnel Random Access Memory
GIXRD	Grazing Incidence X-Ray Diffraction
GMR	Giant Magneto Resistance
IMA	In-plane Magnetic Anisotropy
JTM	Jonction Tunnel Magnétique
KAI	Kolmogorov-Avrami-Ishibashi
LCMO	La <sub>0.5</sub> Ca <sub>0.5</sub> MnO <sub>3</sub>
LSMO	La <sub>0.67</sub> Sr <sub>0.33</sub> MnO <sub>3</sub>
NGO	NdGaO <sub>3</sub>
NLS	Nucleation-limited-switching
PFM	Piezoresponse Force Microscopy
PMA	Perpendicular Magnetic Anisotropy
PZT	Pb(Zr, Ti)O <sub>3</sub>
RF	Radio Fréquence
RKKY	Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida
SRO	SrRuO <sub>3</sub>

STDP	Spike Timing Dependent Plasticity
STO	SrTiO <sub>3</sub>
STT-MRAM	Spin Transfer Torque Magnetic Random Access Memory
TER	Tunnel Electro Resistance
TMR	Tunnel Magneto Resistance

# CHAPITRE 1

## Introduction

---

### 1.1 Motivations de l'étude

Les premiers ordinateurs personnels sont apparus vers le début des années 70 et depuis, leur performance n'a cessé de croître en suivant la « loi de Moore ». Cette dernière « prédit » que le nombre de transistors d'un microprocesseur double tous les deux ans. De manière surprenante, cette prédiction empirique s'est révélée exacte et, à mesure que la technologie a évolué, les transistors ont diminué de taille et leur fréquence de fonctionnement a continuellement augmenté jusqu'au début des années 2000. On a alors commencé à rencontrer des problèmes majeurs, le plus important étant la densité de puissance à dissiper due à l'augmentation de la fréquence de fonctionnement conjuguée à la miniaturisation. C'est d'ailleurs pour cela que la fréquence de fonctionnement n'a guère augmenté depuis une dizaine d'années afin de limiter la puissance dynamique – charge/décharge capacitive – à dissiper. Une stratégie de type multi-coeur a permis de « respecter » la « Loi de Moore ». La puissance statique n'a pas été un problème majeur jusqu'aux récents niveaux d'intégration qui ont fait décoller les courants de fuite [Kim 2003]. Plusieurs stratégies ont été employées, d'autres étant encore au stade de recherche, afin de répondre aux problèmes induits par la miniaturisation. Parmi les plus répandues on trouve les matériaux *high- $\kappa$*  à forte constante diélectrique pour la grille de transistor MOSFET, le Fin-FET, le FD-SOI, le silicium contraint, le Spin-FET, etc.

À mesure que les problèmes physiques s'accumulent, un changement de paradigme pourrait aider l'industrie de l'électronique à franchir ces barrières. On parle maintenant de « Beyond CMOS » et de « More than Moore » [ITRS 2011] pour désigner, respectivement, les composants et micro-architectures émergents qui rompent avec la technologie actuelle, et l'intégration hétérogène de fonctions sur la même puce (par exemple partie graphique/vidéo et wifi dans les processeurs). Dans ce contexte actuel de rupture, malgré l'évolution prodigieuse des performances des ordinateurs conventionnels (d'architecture dite de type Von-Neumann), ces derniers sont toujours incapables d'exécuter certaines tâches aussi efficacement, tout en étant aussi économe en énergie, que le cerveau humain. Par exemple, nous savons reconnaître quasi instantanément

une personne à la vue de son visage et ce, avec un cerveau fonctionnant à 10 Hz et consommant un taux de glucose équivalant à 25 W de puissance électrique. Il serait donc intéressant de comprendre le fonctionnement du cerveau afin de s'en inspirer pour concevoir des réseaux de neurones artificiels.

La biologie nous apprend que le cerveau est un organe singulier qui s'organise autour de  $86 \times 10^9$  neurones en moyenne, chacun des ces neurones étant connecté avec jusqu'à  $10^4$  autres neurones *via* des synapses – au nombre total de  $10^{13}$  – selon une architecture donc massivement parallèle, c.f. figure 1.1.



FIGURE 1.1 – Quelques chiffres sur le cerveau humain. Source : <http://www.scientificamerican.com/article.cfm?id=mind-in-pictures-your-brain-by-the-numbers>

Le fonctionnement du cerveau est complexe et nous ne sommes encore qu'aux balbutiements de sa compréhension. Différentes techniques d'imagerie, c.f. figure 1.2, permettent de cartographier les zones où les neurones sont sollicités lorsque le cerveau effectue une tâche. Cependant l'activité électrique globale du cerveau est pour l'instant impossible à suivre dans le détail.

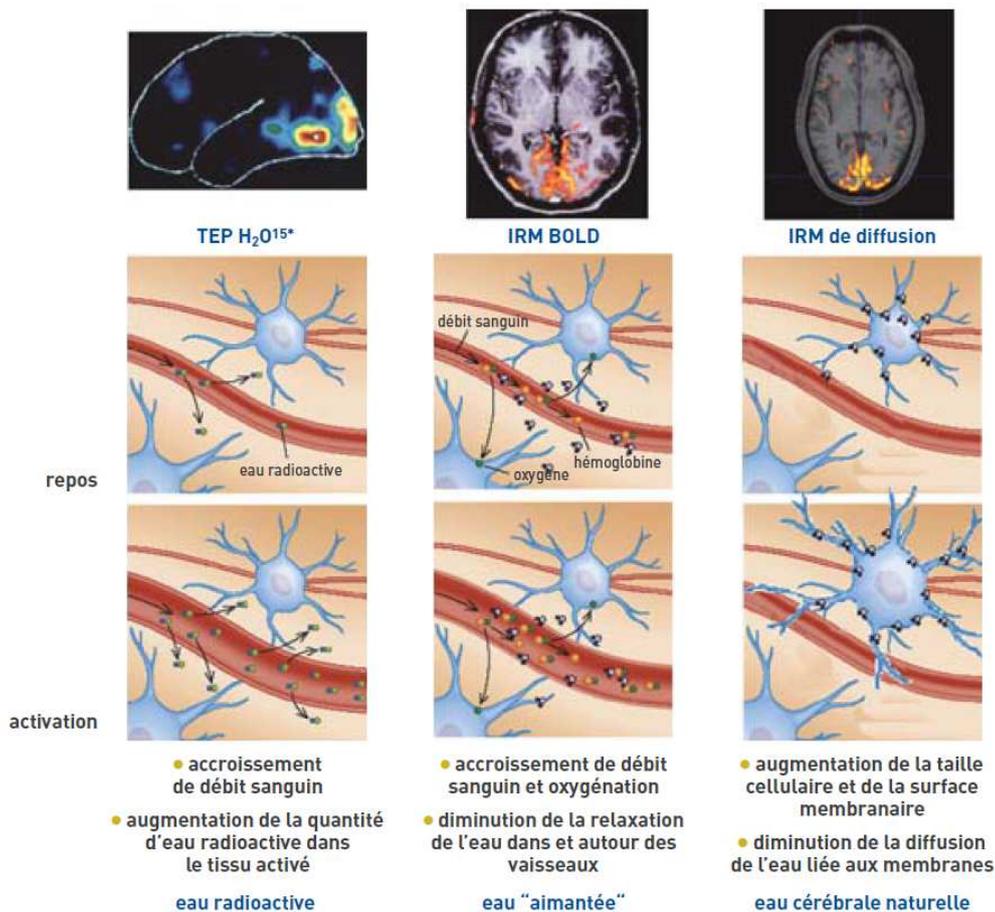


FIGURE 1.2 – Quelques techniques d'imagerie fonctionnelle : a) Technique de tomographie à émission de positon (TEP) en examinant l'augmentation du débit sanguin *via* un traceur radioactif ( $H_2O^{15}$ ). b) Suivi de la consommation d'oxygène *via* la variation de la concentration en fer dû à la déoxyhémoglobine. c) Suivi de la taille cellulaire et de la surface membranaire par mesure de la diffusion de l'eau. Figures reproduites de la référence [Hertz-Pannier 2007]

Malgré cela il a été possible d'isoler l'activité électrique d'un neurone unique grâce au branchement d'électrodes *in vitro* et *in vivo*. En sondant son activité électrique, il a été possible de comprendre quelques aspects de son

fonctionnement. Ainsi dans un modèle de neurone biologique simple, le neurone suit un schéma de type intégration/déclenchement. Lorsqu'il reçoit des messages, i.e. des impulsions électriques, venant d'autres neurones, il arrive un moment où son seuil de déclenchement est franchi et il envoie lui-même une impulsion électrique vers tous les autres neurones auxquels il est relié. Tandis que la forme de l'impulsion de tension est toujours la même, le train-séquence d'impulsions correspond à toute une panoplie de motifs [Izhikevich 2004] comme illustré en figure 1.4. Il existe beaucoup de modèles de neurones biologiques et actuellement, le plus complexe et proche de la réalité est celui d'Hodgkin-Huxley qui prend en compte les échanges des différentes espèces à travers les canaux ioniques.

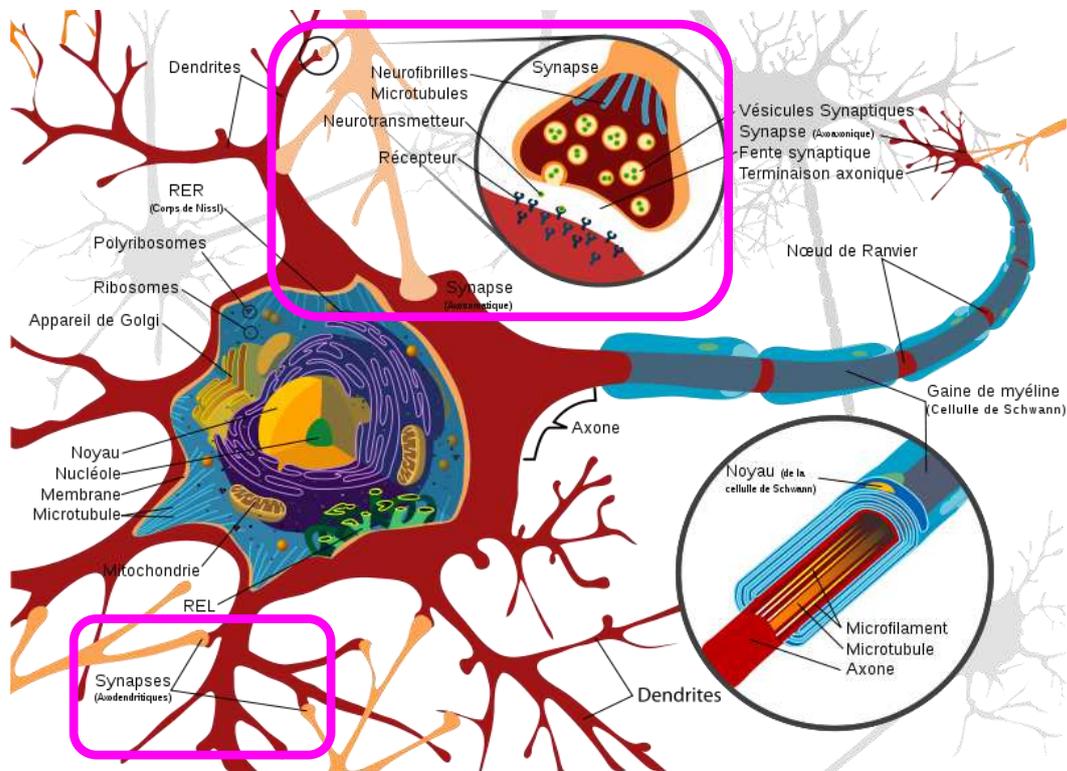


FIGURE 1.3 – Schéma d'un neurone avec ses connexions synaptiques vers d'autres neurones. En rouge, un neurone pré-synaptique et en beige un neurone post-synaptique. Les deux sont connectés par les synapses au niveau des dendrites. *Source : <http://www.cours-pharmacie.com/physiologie/systeme-nerveux.html>*

Nous avons vu que la synapse est la jonction entre un neurone pré-synaptique et un neurone post-synaptique. L'impulsion électrique provenant du neurone pré-synaptique se propage le long de son axone pour arriver à la

synapse qui le relie au neurone post-synaptique, c.f. figure 1.3. L'influx nerveux électrique y est converti en un signal chimique par la libération d'un neurotransmetteur dans la fente synaptique. Les récepteurs du neurone post-synaptique s'associent au neurotransmetteur et le signal chimique se transforme en une nouvelle impulsion électrique.

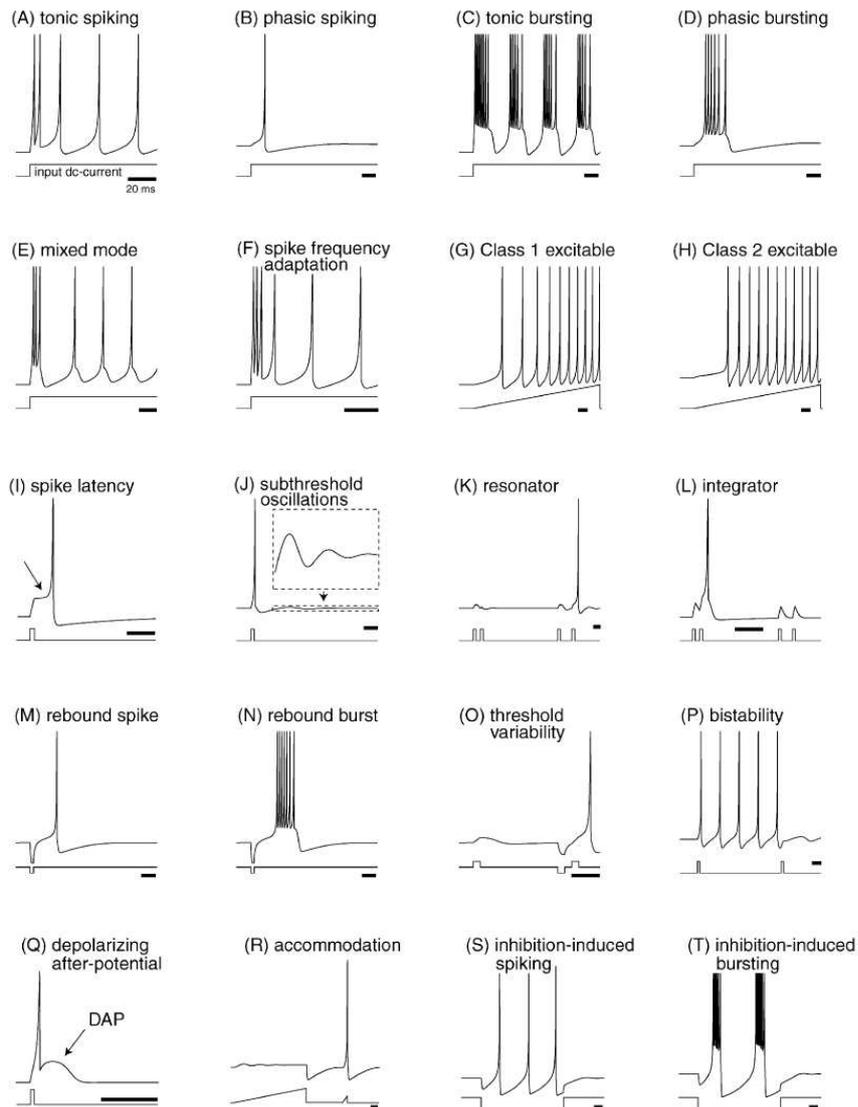


FIGURE 1.4 – Différents types de séquences d'impulsions. Figure reproduite de [Izhikevich 2004]

Si on fait l'analogie avec l'architecture classique des ordinateurs, les neurones assument le rôle d'unité élémentaire de calcul tandis que les synapses en constituent la mémoire. Une caractéristique essentielle réside dans le fait qu'elles sont plastiques : leur conductance est modulable et autorise la régulation de la transmission du signal électrique entre deux neurones. En pratique, cela signifie que le réseau neurones + synapses est flexible, le cerveau est ainsi capable d'apprendre, d'évoluer à mesure qu'il traite et enregistre des informations. Cette plasticité s'applique d'ailleurs dans un sens large comme le montrent les récentes découvertes concernant le comportement fonctionnel du cerveau [Doidge 2008]. Il a été par exemple rapporté un cas d'un danseur qui, à la suite d'un accident vasculaire cérébral, fut diagnostiqué hémiplégique sans chance de guérison. A force de rééducation intensive pendant un an, il recouvrit l'usage de ses jambes et put à nouveau danser. A sa mort, les examens médicaux ont permis de comprendre que ce fut l'adaptation de zones conventionnellement dédiées à d'autres tâches, qui ont fait retrouver au danseur sa motricité. La capacité à rendre une zone multifonctionnelle est aujourd'hui désignée comme la « suppléance corticale ». Ainsi, des expériences ont montré qu'il était possible par le biais du toucher, avec des électrodes stimulantes posées sur la langue par exemple, de littéralement « voir » des formes simples [Kaczmarek 2003, Sampaio 2001], de lire [Bliss 1970, Craig 1981, Loomis 1980] et de repérer dans l'espace [Jansson 1983, Lemaire 1999]. Tout ceci est possible grâce à la plasticité de la synapse.

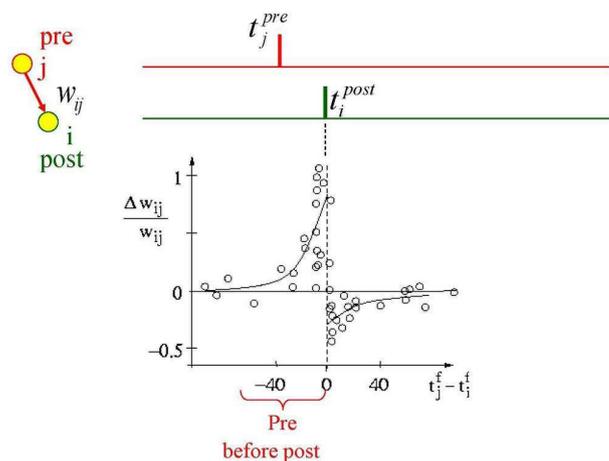


FIGURE 1.5 – Illustration de la règle *Spike Timing Dependent Plasticity*. L'impulsion post-synaptique sert de référence temporelle. L'axe des ordonnées indique l'amplitude du changement du poids synaptique  $w$ . Figure reproduite de <http://www.scholarpedia.org>

La règle *Spike Timing Dependent Plasticity* [Markram 1997, Bi 1998], une des lois d'apprentissage existantes, contrôle la conductivité d'une synapse de la manière suivante : les impulsions pré et post-synaptique modifient d'autant plus la conductivité qu'elles sont temporellement rapprochées. Si l'impulsion pré-synaptique arrive avant l'impulsion post-synaptique, la conductivité sera augmentée et on parle de potentialisation synaptique. L'inverse se produit si l'impulsion pré-synaptique parvient après l'impulsion post-synaptique et on parle alors de dépression synaptique.

En plus de la plasticité de la synapse, le cerveau est comme nous l'avons vu doté d'un niveau de « câblage » hautement parallèle, contrairement à l'ordinateur personnel qui traite l'information en série. Ce niveau de parallélisme est encore inégalé même pour les architectures spécialement conçues tel que le projet *Blue Gene* d'IBM [IBM 2004]. Outre la rapidité et la tolérance aux défauts, l'architecture massivement parallèle est particulièrement adaptée à certaines tâches, autrement plus ardues pour une architecture classique Von-Neumann, comme la reconnaissance de forme, le *data mining* – une projection en 2020 prévoit un volume mensuel de publication de 40 zettaoctets ( $40 \times 10^{21}$  !) de données sur internet [IDC-EMC 2013] – ou encore la recherche et la reconnaissance de motif/schéma pour la classification de données.

Dès le début des années 40 les chercheurs tentèrent ainsi de s'inspirer des performances de notre cerveau. Les réseaux de neurones artificiels ont donc été l'objet de recherches dans le domaine de l'algorithmie afin de trouver des méthodes d'apprentissage qui convergent vers la fonction voulue. Les composants et les architectures furent aussi étudiés afin de produire des réseaux de neurones artificiels mimant les caractéristiques que nous avons décrites concernant le cerveau humain.

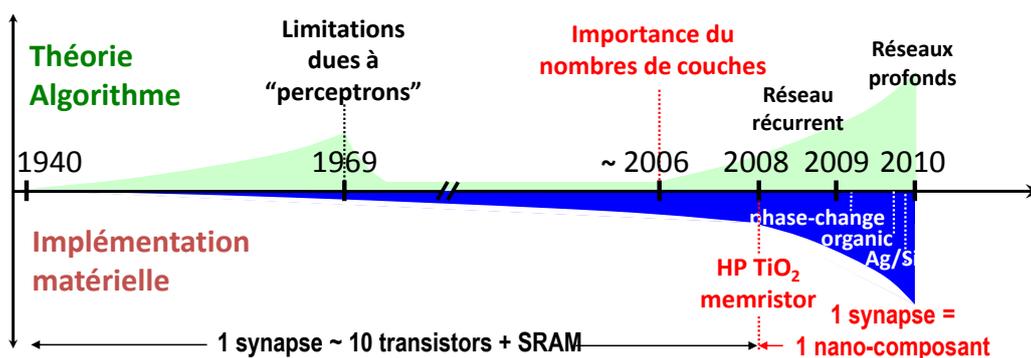


FIGURE 1.6 – Evolution de l'activité de recherche sur les réseaux de neurones artificiels dans les domaines de l'algorithmie et de l'implémentation matérielle

Comme le montre la figure 1.6, l'activité de recherche sur les algorithmes

d'apprentissage a été fortement ralentie après la publication en 1969 du livre « Perceptrons » par M. L. Minsky et S. A. Papert dans lequel ils stipulaient que cet algorithme à une seule couche, le perceptron, ne pouvait réaliser la fonction XOR. Cette prédiction a été incorrectement généralisée à tous les types de réseaux de neurones artificiels et ce n'est qu'en 2006 que l'importance des couches cachées, dans les réseaux à plusieurs niveaux, est mise en évidence et permet de relancer l'activité de la communauté scientifique dans le domaine de l'algorithme d'apprentissage. En parallèle, au niveau du composant, la synapse est émulée par de petits circuits comprenant une dizaine de transistors auxquels on adjoint de la mémoire qui contient le poids de la synapse, i.e. sa conductivité, et la manière dont il va évoluer, i.e. la règle qui régit sa plasticité. De part leur taille micrométrique, ces circuits ont une capacité d'intégration fortement limitée. Quant au neurone artificiel, il est aussi fabriqué à l'aide de quelques transistors dans un montage qui fonctionne comme un intégrateur et qui déclenche une impulsion de tension lorsque son seuil d'activation est atteint. De part la surabondance des synapses dans le cerveau par rapport aux neurones, c.f. figure 1.1, la conception d'un réseau de neurones artificiels dense bute sur la conception d'une synapse artificielle compacte. Une élégante réponse à ce défi technologique vient du travail de L. O. Chua qui prédit en 1971 [Chua 1971] l'existence d'un composant passif qu'il nomme memristor. Il est défini comme une résistance dont la valeur  $M(q)$  est fonction de la quantité de charges qui l'ont traversée. Ainsi la memristance  $M(q)$  s'exprime comme :

$$M(q) = \frac{d\Phi_m}{dq} = \frac{V(t)}{i(t)} \quad (1.1)$$

$\Phi_m$  est le flux magnétique,  $q$  la charge élémentaire,  $V(t)$  la tension aux bornes du memristor et  $i(t)$  le courant injecté à travers le composant. On donc peut changer sa conductivité en contrôlant le courant qu'on lui applique et ce comportement mime la plasticité synaptique. Cette catégorie de composant « *mem* » s'étend aussi aux autres composants fondamentaux : memcapacitance et meminductance.

Longtemps, l'identification du memristor a échappé à la communauté jusqu'au résultat du groupe de R. S. Williams qui démontre la fabrication du premier nanocomposant memristor identifié comme tel en 2008 [Strukov 2008]. On se rend alors compte que de nombreux systèmes anciennement étudiés se comportent comme des memristors et l'activité de recherche autour de ce thème explose [Lee 2011, Szot 2011, Nayak 2012, Hasegawa 2012, Jo 2010, Kuzum 2011, Erokhin 2008, Alibart 2010, Alibart 2012, Zakhidov 2010, Driscoll 2009, Jamaa 2009, Park 2010, Gergel-Hackett 2009, Kim 2009, Ohno 2011]. En pratique, la synapse artificielle peut maintenant se réaliser en un seul nanocomposant au lieu des 10 transistors + SRAM.

Les réseaux de neurones artificiels à haute densité deviennent envisageables et cela pourrait avoir un fort impact dans différents domaines scientifiques comme la biologie/neurologie ou le traitement de l'information. Nous avons vu que l'étude du fonctionnement du cerveau s'effectue par imagerie fonctionnelle – niveau macroscopique – et par l'étude du neurone et de la synapse individuelle – niveau microscopique –. A très long terme, les réseaux de neurones artificiels pourraient servir d'outil de recherche au niveau « mésoscopique » afin de progresser dans la compréhension de notre cerveau. A plus court terme, les réseaux de neurones artificiels permettraient de réaliser des tâches spécifiques en temps réel et de manière très économe en énergie, à l'image du cerveau. L'intégration de ces réseaux de neurones artificiels sur une puce unique mènerait vers des architectures hybrides où ils serviraient d'accélérateurs fonctionnels en parallèle avec une architecture classique Von-Neumann. En effet, en dépit des prouesses dont il est capable, notre cerveau ne calcule pas les milles premières décimales de  $\pi$  aussi rapidement qu'un ordinateur.

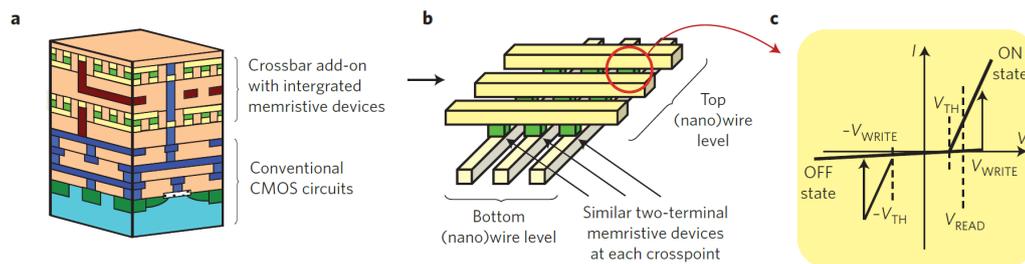


FIGURE 1.7 – a) Illustration d'un empilement 3D avec la couche du bas faite d'une technologie CMOS conventionnelle et les couches supérieures composés de memristors organisés en *crossbar array*. b) Dans une architecture *crossbar array*, les memristors sont situés aux croisements des électrodes supérieures et inférieures. L'écriture et la lecture d'un élément se fait idéalement par simple sélection des électrodes correspondantes. c) L'état de résistance d'un memristor code l'information et la lecture se fait par mesure du courant. Figures reproduites de [Yang 2012]

Du point de vue industriel, les memristors dans les réseaux de neurones artificiels constituent un marché de niche. En revanche, au même titre que les mémoires à changement de phase (PCRAM pour Phase Change Random Access Memory) et les mémoires magnétiques (STT-MRAM Spin Transfer Torque Random Access Memory), les mémoires à base de memristors font

partie de la classe des mémoires résistives, dite ReRAM (pour Resistive Random Access Memory). Cette classe désigne une mémoire non-volatile dont l'état de résistance code l'information et dont la lecture est non-destructrice : elle est donc prometteuse comme remplaçante de la mémoire vive. Au niveau de l'intégration, le but recherché est d'empiler les éléments en trois dimensions afin de diminuer les tailles et d'augmenter les performances (figure 1.7). Les memristors sont ainsi agencés en *crossbar array*. D'autre part, le memristor peut aussi servir d'élément de mémoire à plusieurs niveaux, ce qui permet de coder plusieurs bits dans la même jonction, d'où un fort potentiel pour le stockage de masse à haute densité de données [Jo 2009]). Le memristor peut aussi réaliser des fonctions logiques classiques en consommant peu d'énergie [Borghetti 2010, Kuekes 2005] car il sert aussi de mémoire non-volatile stockant le résultat de l'opération. Il a aussi été montré que le memristor pourrait améliorer les circuits intégrés de type FPGA (pour Field-Programmable Gate Array). Ce dernier est une unité de calcul reconfigurable beaucoup moins flexible que le processeur CPU (Central Processing Unit) – on doit le programmer afin qu'il effectue la fonctionnalité voulue – mais beaucoup plus rapide. La mémoire SRAM (Static Random Access Memory) du FPGA occupe beaucoup de place et son remplacement par des memristors intégrés en 3D permettraient de diminuer la taille du FPGA et réduire fortement la consommation d'énergie [Snider 2007] : on parle alors de FPNI (pour Field-Programmable Nanowire Interconnect).

Le composant memristor va bénéficier de l'effort industriel pour ses applications dans le domaine des mémoires et des composants logiques. Nous allons maintenant passer en revue les différentes classes de memristors existants, puis nous détaillerons les deux concepts originaux de memristor que nous avons choisis d'explorer durant cette thèse.

## 1.2 Etat de l'art sur les memristors

Toute structure dont la résistance varie en fonction d'une excitation (champ électrique, température, champ magnétique, etc.) constitue un memristor [Chua 2011]. Le classement des memristors existants peut s'organiser selon maintes manières et nous avons décidé de les trier en quatre catégories : les memristors fondés sur des réactions d'oxydo-réduction (thermochimiques), ceux basés sur des changements de phase (amorphe  $\Leftrightarrow$  cristallin), ceux utilisant des matériaux organiques et ceux exploitant des effets purement électro-niques.

### 1.2.1 Memristor à oxydo-réduction

Cette première catégorie rassemble une grande majorité de composants memristor, la plupart employant des oxydes binaires, qui présentent différents comportements dans leurs caractéristiques courant vs. tension. Les mécanismes en jeu sont complexes et dépendent principalement du champ électrique et de l'augmentation de la température induite par effet Joule. Généralement, si l'effet du champ électrique est dominant le memristor aura un fonctionnement bipolaire et si l'effet de la température domine, le comportement sera unipolaire. La famille de memristors à oxydo-réduction rassemble une grande variété de systèmes dont nous allons voir quelques exemples typiques.

#### 1.2.1.1 Memristor bipolaire à commutation non-linéaire et conduction non localisée

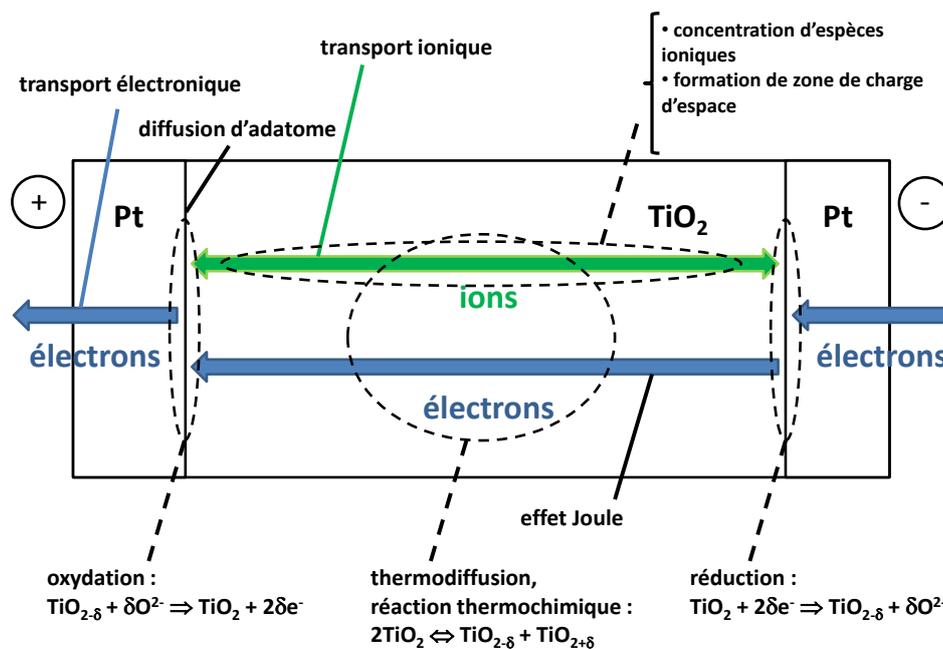


FIGURE 1.8 – Illustration des mécanismes physiques possiblement en jeu dans le memristor de HP.

Le premier memristor identifié comme tel fut celui du groupe de R. S. Williams des laboratoires Hewlett-Packard [Strukov 2008]. Leur système consiste en une jonction Pt/TiO<sub>2-x</sub>/TiO<sub>2</sub>/Pt, comme illustré sur la figure 1.8, qu'il faut « former » par une tension élevée afin d'obtenir une structure dont

la résistance peut être modulée. L'analyse de la mesure de courant vs. tension renseigne sur les phénomènes intervenant dans la modulation de la résistance. L'état de basse résistance présente un effet redresseur qui oriente l'interprétation vers une conduction à travers une barrière Schottky au niveau d'une des deux interfaces électrode/oxyde. Dans leur première interprétation, les auteurs décrivent une interface avec l'électrode inférieure riche en lacunes d'oxygène en raison du recuit sous vide avec une pression partielle de  $N_2$  tandis que l'interface avec l'électrode supérieure ne présente que peu de lacunes. L'interface riche en oxygène constitue un contact ohmique tandis que l'autre interface se comporte comme une barrière Schottky. L'application d'une tension fait dériver les lacunes d'oxygène et module l'épaisseur de la barrière Schottky [Yang 2008]. Par la suite, des comportements différents ont mis en avant la complexité de ce genre de système. Les observations suivantes révèlent la présence de filament conducteur et soulignent l'importance des conditions aux interfaces. Il n'existe donc pas de consensus

### 1.2.1.2 Memristor unipolaire : conduction localisée, filament métallique conducteur

Kwon *et al.* ont étudié la nature des filaments conducteur de leur système Pt/TiO<sub>2</sub>/Pt [Kwon 2010]. Après l'étape de « forming », ils localisent un filament et analysent sa structure par imagerie TEM à haute résolution HRTEM. La phase identifiée est un oxyde cristallin appelée *phase Magnéli* Ti<sub>4</sub>O<sub>7</sub> qui est conducteur dans le *bulk*. La caractérisation I(V) locale à l'aide d'un STM confirme le caractère conducteur du nanofilament. La modulation de résistance est attribué à la rupture des nanofilaments par effet Joule, le comportement est donc unipolaire contrairement au cas de [Yang 2008].

### 1.2.1.3 Memristor bipolaire à commutation linéaire et conduction localisée

Miao *et al.* ont étudié un système Pt/TaO<sub>x</sub>/Ta pour lequel une étape de « forming » est nécessaire afin d'obtenir une résistance modulable. En employant une technique de spectroscopie à modulation de conduction par pression, combinaison entre un AFM et une mesure de transport, les auteurs arrivent à localiser la zone dominante de conduction d'une jonction de 100  $\mu\text{m}$  de diamètre. L'examen de la coupe par faisceau focalisé d'ions (FIB) rend compte d'un filament conducteur d'une solution solide amorphe de Ta(O) entouré d'une phase cristalline de  $\alpha - Ta_2O_5$  [Miao 2011]. Le comportement memristif est interprété comme la modulation de la composition en oxygène du filament, la phase  $\alpha - Ta_2O_5$  servant alors de réservoir d'oxygène.

M.-J. Lee *et al.* ont étudié un système Pt/Ta<sub>2</sub>O<sub>5-x</sub>/TaO<sub>2-x</sub>/Pt [Lee 2011] pour lequel la couche Ta<sub>2</sub>O<sub>5-x</sub> est isolante et TaO<sub>2-x</sub> est un mauvais conducteur. Ils montrent entre autre que la bonne sélection des propriétés des couches Ta<sub>2</sub>O<sub>5-x</sub> et TaO<sub>2-x</sub> aboutit à une endurance record  $> 10^{12}$  cycles grâce aux faibles courants d'écriture. Leur étude met en évidence la formation de filaments métalliques de tantale qui permettent de commuter la résistance de la structure. En concevant une double jonction tête-bêche, les auteurs parviennent à limiter fortement les courants de fuites et proposent un schéma de sélection de cellule qui permet de s'affranchir de transistor de sélection ou de diode. Ils mettent ainsi l'accent sur la fonctionnalité de mémoire RAM non volatile de leur système et ils démontrent un fort potentiel d'intégration en structure matricielle *crossbar array*.

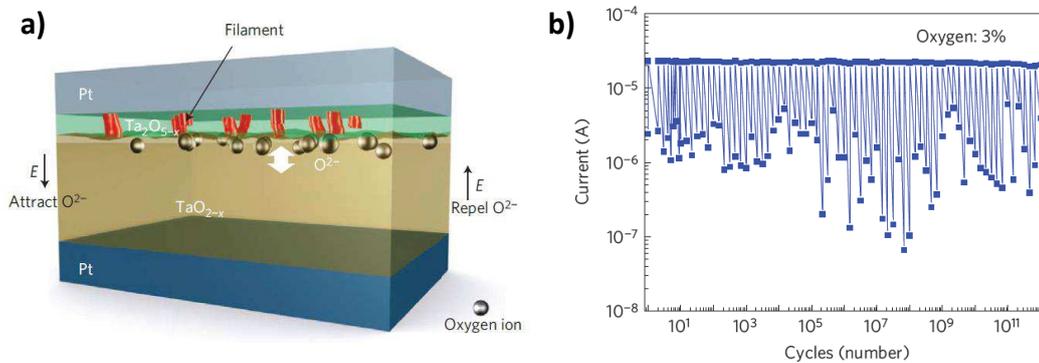


FIGURE 1.9 – Figure extraite de [Lee 2011]. a) La différence de résistivité entre Ta<sub>2</sub>O<sub>5-x</sub> et TaO<sub>2-x</sub> est conçue de sorte que le champ soit principalement appliqué dans la région Ta<sub>2</sub>O<sub>5-x</sub>. En rouge, les filaments métalliques de tantale sont responsable de la modulation de résistance. b) L'endurance démontrée pour un échantillon de 30 x 30 μm<sup>2</sup> fabriqué sous 3 % de pression partielle d'oxygène

#### 1.2.1.4 Memristor bipolaire : conduction localisée, filament métallique conducteur

Ce type de memristor, aussi appelé *conductive bridging RAM (CBRAM)* ou *atomic switch*, a besoin d'une étape de « forming » mais la principale différence avec les memristors précédemment décrits est qu'il exploite une électrode active. Des composés métalliques à base de cuivre [Nayak 2012] ou d'argent [Hasegawa 2012] composent l'électrode active tandis que la contre-électrode est électrochimiquement inerte – souvent du platine ou du tungstène par exemple –. Un isolant électronique sert d'électrolyte solide, c.f. 1.10(A).

L'application d'un champ électrique permet de dissoudre l'élément métallique (Cu ou Ag) de l'électrode active par oxydation thermoactivée selon les réactions :



Sous l'effet du champ électrique, l'ion métallique dérive vers la contre-électrode 1.10(B) sur laquelle il est réduit et cristallise en formant un germe 1.10(C). A partir de celui-ci, un filament métallique se propage préférentiellement en direction de l'électrode active et la conductance augmente progressivement. Enfin le filament connecte électriquement les deux électrodes et la résistance sature à un niveau bas 1.10(D). L'application d'une tension négative permet de redissoudre électrochimiquement le filament 1.10(E).

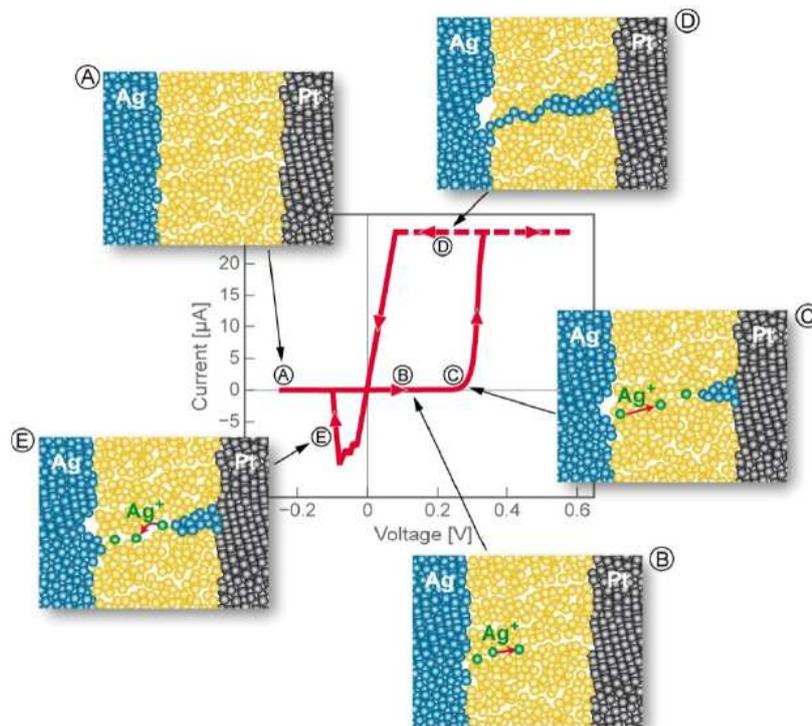


FIGURE 1.10 – Mesure de courant vs. tension d'une CBRAM avec composé à base d'argent. Figure reproduite de [Valov 2011]

Du point de vue des réseaux de neurones artificiels, un règle d'apprentissage prévoit un changement de poids synaptique sur le court et long terme.

Il s'avère que les CBRAM reproduisent directement ces deux formes de changement de conductivité car tant que le filament n'a pas rejoint la contre-électrode, sans application de tension les atomes vont lentement réagir pour reformer le composé d'origine : c'est la potentiation à court terme. A l'inverse, lorsque le filament court-circuite les électrodes, le changement produit une potentiation à long terme 1.11. Une remise à zéro de la conductivité – donc du poids synaptique – est possible par dissolution du filament.

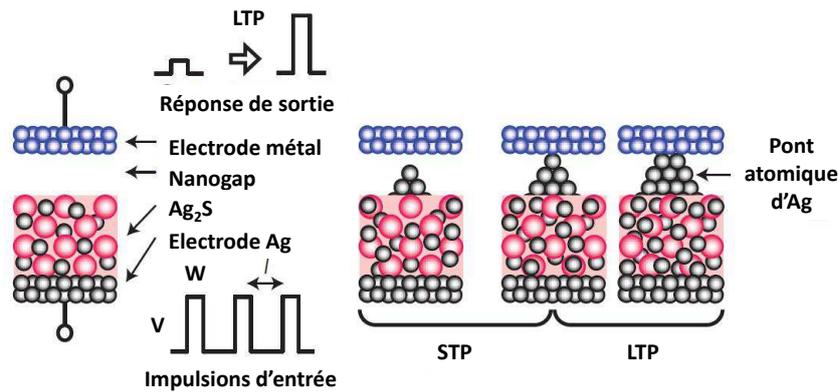


FIGURE 1.11 – Illustration d'une CBRAM à base d'argent décrivant le changement du poids synaptique à court et à long terme par la progression du filament métallique. Figure reproduite à partir de [Ohno 2011].

### 1.2.1.5 Memristor bipolaire : conduction uniforme, variation de barrière Schottky

Jo *et al.* adoptent une approche qui consiste à doper l'isolant d'une structure de métal/isolant/métal avec un mélange d'argent et de silicium dont le gradient de concentration est dirigé selon l'axe de croissance [Jo 2010]. Le comportement memristif est ainsi assuré par le contrôle du gradient lors du dépôt des matériaux et leur structure ne requiert donc pas d'étape de « forming ».

La zone de dopage peut être divisée en une région richement dopée et l'autre pauvrement (c.f. figure 1.12), les deux zones étant séparées par un front uniforme  $W$ . Sous le champ créé par l'application d'une tension, le front va se déplacer en fonction de la polarité de la tension et la jonction verra son conductivité augmenter ou diminuer (figure 1.13a). Ce groupe a non seulement mis clairement en évidence le comportement memristif de leur synapse artificielle mais, implanté dans un réseau dense de type *cross-bar array* avec des neurones pré et post-synaptique, il a mis en évidence la plasticité de leur synapse en régime d'excitation STDP [Jo 2010].

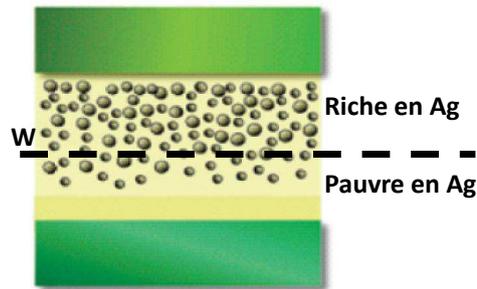


FIGURE 1.12 – Illustration du gradient de concentration d’argent et silicium. La frontière W sépare la zone richement et faiblement dopée.

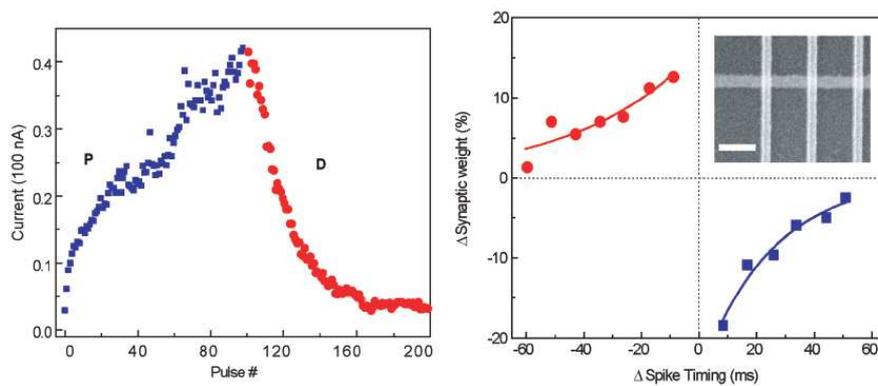


FIGURE 1.13 – a) Mesure du courant pour une tension de lecture constante. En bleu, variation du courant en fonction du nombre d’impulsions positives identiques (durée et amplitude). En rouge, à partir du dernier état, variation du courant en fonction du nombre d’impulsions négatives identiques (durée et amplitude). b) Variation du poids synaptique (conductivité) en fonction du décalage temporel  $\Delta t$  entre l’impulsion pré et post-synaptique. Ce comportement hyperbolique est typique de la STDP.

### 1.2.2 Memristor à changement de phase

Les matériaux à changement de phase sont utilisés depuis longtemps dans le domaine du stockage de données (CD, DVD, Blue Ray, etc.) où ils servent de support optique d’enregistrement. On exploite ainsi les modifications des propriétés optiques selon que le matériau est en phase amorphe ou cristalline. Plus récemment, des matériaux de type chalcogénure (typiquement  $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ )

sont très étudiés afin de concevoir une brique de base pour une mémoire non-volatile dont la conductivité dépend de la phase du matériau. La résistance de la jonction est basse pour la phase cristalline et haute pour la phase amorphe.

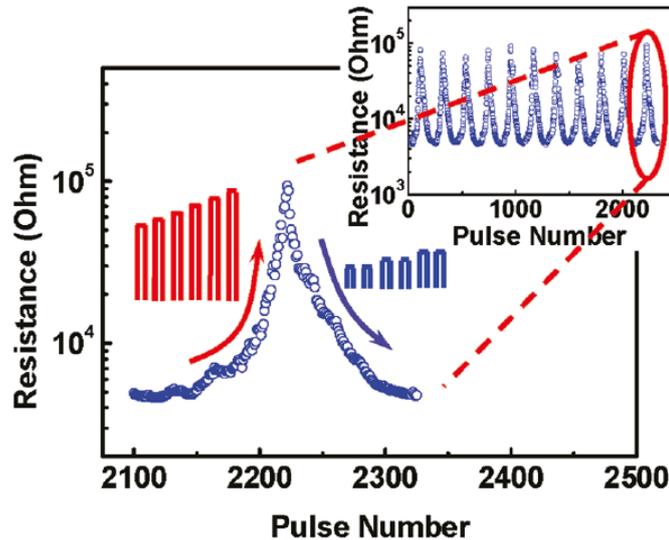


FIGURE 1.14 – Fonctionnement unipolaire d'un memristor avec matériau à changement de phase.

Le changement d'état amorphe  $\Leftrightarrow$  cristallin s'opère par la fusion du matériau *via* effet Joule puis par le contrôle de la vitesse de refroidissement. Ainsi, le passage amorphe  $\Rightarrow$  cristallin est réalisé par une longue et faible impulsion de courant, alors que le passage cristallin  $\Rightarrow$  amorphe se fait par l'application d'une impulsion de courant brève et de forte intensité. Deux remarques apparaissent directement : le temps de refroidissement a une limite inférieure irréductible pour bien faire cristalliser le matériau, cela implique une limitation au temps de commutation ; l'effet Joule est indépendant de la polarité du courant, le fonctionnement est donc unipolaire. Le comportement memristif apparaît en trouvant les amplitudes et les durées caractéristiques adéquates pour les impulsions de tension [Kuzum 2011]. Le memristor à changement de phase est déjà implémenté dans des circuits fonctionnels d'analyse d'image en temps réel [Suri 2012].

### 1.2.3 Memristor organique

Les matériaux organiques (Nanoparticule Organic memory Field Effect Transistor, Carbon NanoTube Field Effect Transistor, Polyaniline, etc.) utilisés pour les memristors apportent de nombreux avantages en terme de facilité

de fabrication (auto-assemblage, coût de dépôt, densité) et de fonctionnalité (interaction avec la lumière par exemple). Alibart *et al.* utilisent un transistor à effet de champ dont le canal de pentacene semi-conducteur est inscrué de nanoparticules d'or auto-assemblées [Alibart 2010].

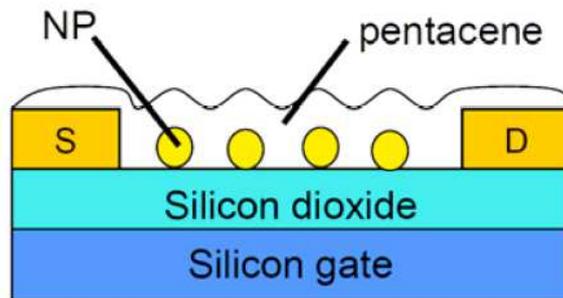


FIGURE 1.15 – Alibart

La conductance du transistor est modulée par la quantité de charges piégées dans les nanoparticules d'or qui sont contrôlées par la tension de grille. Leur dispositif reproduit très bien le changement du poids synaptique mais le comportement plastique n'est que de courte durée, car la rétention des charges piégées dans les nanoparticules d'or est inférieure à quelques milliers de seconde ( $<1$  h).

Erokhin *et al.* [Erokhin 2008] ont conçu une structure planaire de type métal/Polyaniline (PANI)/métal avec une micro-piste d'oxyde de polyéthylène dopée au perchlorate de lithium (PEO). Cette dernière sert d'électrolyte pour les réactions d'oxydation et de réduction de la polyaniline qui, selon son état, subit des changements drastiques de conductivité. La rétention dans ce dispositif est excellente ( $> 10$  ans) de par la cinétique lente de la thermochimie des formes réduites et oxydées.

#### 1.2.4 Memristor électronique

Les types de memristors électroniques sont peu nombreux mais particulièrement attrayants car ils sont fondés sur des effets purement électroniques, promettant de bonnes performances en terme d'endurance et de rapidité. Pickett *et al.* ont conçu un memristor utilisant un isolant de Mott et ils ont réussi à développer un neuristor, analogue électronique du neurone, en utilisant deux memristors [Pickett 2012]. Chen *et al.* ont étudié les matériaux désordonnés, verre ou cristal isolant avec diverses fractions d'inclusions métalliques, dont l'état isolant est expliqué par la « localisation d'Anderson » [Anderson 1958].

Une transition métallique est possible proche des seuils de percolation mais aussi lorsque les dimensions du systèmes sont inférieures à une certaine « longueur de diffusion ». Pour des systèmes dont cette longueur est proche des dimensions du système, il est possible d'induire graduellement la transition métallique par l'application d'une tension [Chen 2011].

Les deux types de memristors que nous avons étudiés sont fondés sur les concepts de mémoires binaires STT-MRAM (Spin Transfer Torque Random Access Memory), en développement commercial, et de FTJRAM (Ferroelectric Tunnel Junction Random Access Memory), concept très prometteur de mémoire émergente. A chaque fois, l'idée est d'exploiter la configuration en domaine des couches actives [Wang 2009b, Grollier 2010, Bibes 2010] afin d'atteindre un continuum de niveaux intermédiaires de résistance entre les états ON et OFF.

#### 1.2.4.1 1<sup>er</sup> concept proposé : Memristor spintronique

Le memristor spintronique utilise la brique élémentaire de la STT-MRAM, la jonction tunnel magnétique (JTM), qui consiste en une couche mince isolante prise en sandwich entre deux couches minces ferromagnétiques. Le transport se fait par effet tunnel et, en fonction de l'orientation relative des aimantations des deux électrodes, la résistance sera haute pour la configuration anti-parallèle (AP) ou basse pour la configuration parallèle (P). L'information est donc codée dans l'état d'aimantation.

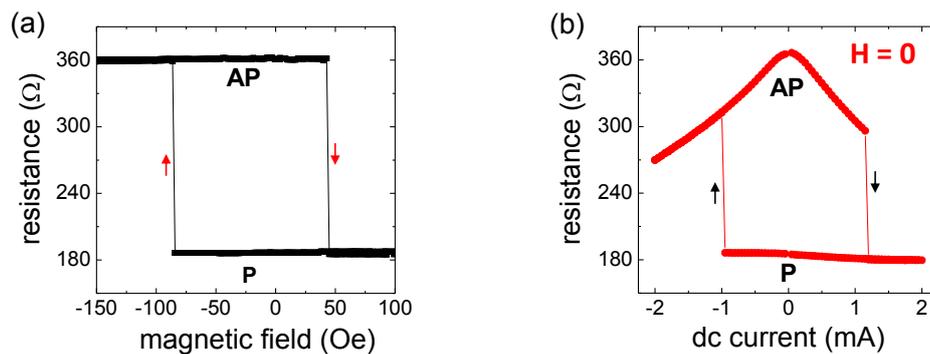


FIGURE 1.16 – a) Mesure résistance vs. champ magnétique. b) Mesure résistance vs. courant DC. La TMR est d'environ 90 %

Classiquement l'orientation des aimantations des électrodes est contrôlable par l'application d'un champ (figure 1.16a), mais l'effet de transfert de spin au-

torise cette manipulation par l'injection d'un courant (figure 1.16b). S'affranchir de l'utilisation d'un champ magnétique permet de réduire de nombreux problèmes comme la consommation, diaphonie, intégration, etc. On définit la magnétorésistance tunnel (TMR en anglais pour Tunnel MagnetoResistance) comme :

$$TMR = \frac{R_{AP} - R_P}{R_P} \quad (1.4)$$

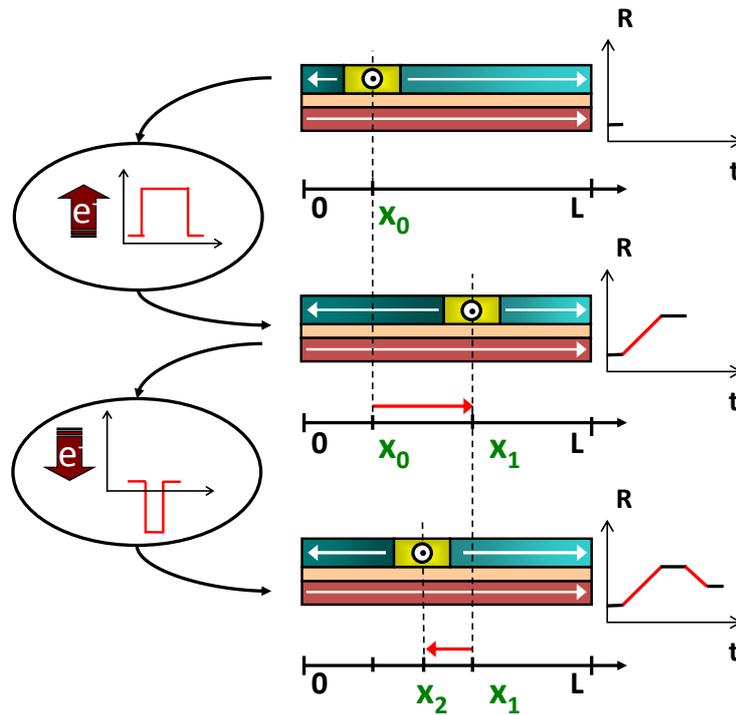


FIGURE 1.17 – Schéma de concept : la résistance de la structure dépend de la position de la paroi qui est initialement stabilisée à la position  $x_0$ . Le déplacement de la position  $x_0$  vers  $x_1$  induit une augmentation de la résistance. A l'inverse, le déplacement dans l'autre sens de la position  $x_1$  vers la position  $x_2$  induit une baisse de résistance. L'effet memristif est alors obtenu en contrôlant la position de la paroi

$R_{AP}$  est la résistance dans l'état anti-parallèle et  $R_P$  est la résistance dans l'état parallèle. En soit, une JTM constitue un memristor à deux niveaux. Les niveaux intermédiaires de résistance entre  $R_{AP}$  et  $R_P$  sont accessibles en créant une configuration magnétique non uniforme dans l'électrode libre, i.e. une structure d'aimantation multi-domaine. Un domaine magnétique est

une région dans laquelle l'aimantation est uniforme. Une paroi de domaine magnétique est la zone de transition entre deux domaines.

Le schéma 1.17 représente une structure magnétorésistive vue de côté. L'électrode de référence, en rouge dans le schéma, a une aimantation fixe. L'électrode du haut, en bleu/vert sur le schéma, contient une paroi de sorte que la résistance de la jonction s'exprime simplement comme :

$$R = R_P + (R_{AP} - R_P) \frac{x}{L} \quad (1.5)$$

$x$  est la position de la paroi,  $R_P$  et  $R_{AP}$  sont les résistances dans les états d'aimantations uniformes respectivement parallèle et antiparallèle, et  $L$  est la longueur de la structure. L'effet de transfert de spin permet aussi de déplacer une paroi magnétique [Grollier 2003, Klaui 2003]. Le sens de déplacement dépend de la polarité du courant  $i$  et la distance parcourue dépend du temps  $\Delta t$  d'application du courant, c.f. figure 1.17. Lorsque la paroi se déplace, un domaine s'agrandit et l'autre se réduit de sorte que la modification de la proportion des régions parallèle et antiparallèle entraîne un changement de résistance  $\Delta R$  suivant 1.5. La variation de résistance dépend de la quantité de charges injectées dans la structure :  $\Delta x \propto \Delta R \propto i \Delta t \propto q$ , quantité de charges injectées. On obtient donc par définition un memristor avec :  $V(t) = R_{spin}(q)i(t)$ .

#### 1.2.4.2 2<sup>eme</sup> concept proposé : Memristor ferroélectrique

Le memristor ferroélectrique repose aussi sur l'utilisation d'une jonction tunnel mais, à la différence du memristor spintronique pour lequel la couche active est l'électrode magnétique, on utilise ici une barrière tunnel ferroélectrique comme couche active comme illustré sur la figure 1.18. Un matériau ferroélectrique présente une polarisation électrique spontanée qui peut être manipulée à l'aide d'un champ électrique. Si les électrodes sont asymétriques, la résistance tunnel peut varier de plusieurs ordres de grandeur selon l'orientation de la polarisation électrique [Garcia 2009, Gruverman 2009] comme illustré sur la figure 1.26b) : c'est l'effet d'électrorésistance tunnel ou TER (pour Tunnel ElectroResistance en Anglais). L'amplitude de l'effet de TER est définie par :

$$TER = \frac{R_{OFF} - R_{ON}}{R_{ON}} \quad (1.6)$$

$R_{OFF}$  est la résistance haute et correspond à la polarisation saturée pointant vers une électrode.  $R_{ON}$  est la résistance basse et correspond à la polarisation saturée pointant vers l'autre électrode. Comme pour le memristor spintronique, le concept de memristor ferroélectrique tire partie de la structure multi-domaine de sa couche active, ici la barrière ferroélectrique. Comme les

parois de domaines ferroélectriques sont bien plus petites que les parois magnétiques, typiquement de l'ordre de grandeur de quelques mailles atomiques, le comportement memristif est obtenu en retournant progressivement la polarisation électrique par nucléation et/ou expansion de plusieurs nano-domaines (c.f. figure 1.18b). On accède ainsi aux niveaux intermédiaires de résistance entre les deux états uniformes de polarisation OFF et ON. La variation de résistance est une fonction de l'amplitude  $V$  de l'impulsion de tension et de sa durée  $\Delta t$  d'application. La résistance est alors une fonction de la quantité  $q$  de charges injectées :  $V(t) = R_{ferro}(q)i(t)$

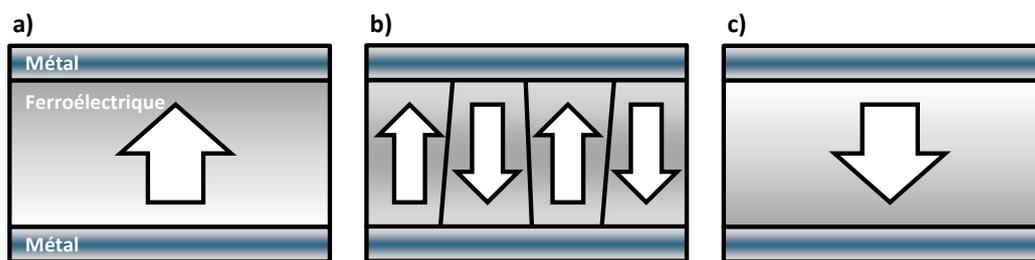


FIGURE 1.18 – Schéma de concept : Etat de polarisation saturé vers le haut (a) ou vers le bas (c). Les états intermédiaires sont obtenus grâce à la configuration multidomaines (b).

Ce manuscrit est divisé en deux parties traitant séparément le memristor spintronique puis le memristor ferroélectrique. Chaque partie fera l'objet d'un bref rappel des notions de base indispensables puis nous présenterons les résultats expérimentaux et nous discuterons de leur interprétation. Nous détaillerons enfin les voies à explorer afin de finaliser de véritables composants memristors.

Première partie

Memristor spintronique

# CHAPITRE 1

## Etat de l'art

---

Dès 1936, N. F. Mott suggère que les propriétés de transport des métaux de transition ferromagnétique devraient dépendre du spin des électrons injectés [Mott 1936]. Par la suite, l'intuition de Mott a été démontrée expérimentalement et décrite théoriquement [Fert 1968, Loegel 1971, Fert 1971, Fert 1976]. Plus tard, il a été montré que la résistance d'une couche mince de permalloy, dont l'aimantation est uniforme, change en fonction de l'angle entre l'aimantation et la direction d'injection du courant [McGuire 1975] : c'est l'effet de magnétorésistance anisotrope ou AMR (pour Anisotropic Magneto-Resistance en anglais). La variation de résistance est très faible mais en 1988, grâce aux avancées dans le domaine de la nanofabrication, il a été possible de concevoir des hétérostructures avec des épaisseurs compatibles avec l'ordre de grandeur des longueurs de diffusion de spin. Cela a permis la co-découverte de l'effet de Magnétorésistance Géante ou GMR en anglais (pour Giant Magneto-Resistance) par Albert Fert [Baibich 1988] et Peter Grünberg [Binasch 1989]. En plus de débloquent un verrou technologique dans le domaine du stockage de données, un champ entier de recherche s'ouvre : c'est la naissance de la spintronique. Les composants actuels exploitent encore un autre type d'effet magnétoresistif appelé magnétorésistance tunnel ou TMR (en anglais pour Tunnel MagnetoResistance) dont l'amplitude est plus forte que celle de la GMR. La structure classique GMR ou TMR la plus simple consiste en un empilement de deux couches minces magnétiques séparées par une couche mince métallique (dans le cas d'une jonction type GMR qu'on appelle aussi vanne de spin) ou par une couche mince isolante (dans le cas d'une jonction tunnel magnétique TMR). Les propriétés de transport dans ces jonctions tunnel sont très variées et leur étude approfondie dépasse le cadre de ce travail. Des références exhaustives pourront être trouvées dans le livre [Tsymbal 2011] ou la revue [Swagten 2008] par exemple.

En pratique, nous avons vu qu'une JTM présente une résistance haute ou basse en fonction de l'orientation relative de l'aimantation de ses deux électrodes magnétiques. La manipulation de l'aimantation requiert classiquement l'application d'un champ magnétique et pose donc de nombreux problèmes (*cross-talk*, consommation, intégration limitée, etc.) en terme d'applications lorsqu'on tente d'employer ce genre de jonctions comme éléments de mémoire. En revanche, elles font d'excellents détecteurs de champ magnétique et servent

ainsi dans la tête de lecture des disques durs. L'intégration du memristor spintronique dans des réseaux de neurones artificiels denses nécessite un contrôle de l'aimantation sans champ magnétique. Suivant notre concept de memristor spintronique, il est alors nécessaire de déplacer une paroi magnétique à l'aide d'un courant. C'est pourquoi nous allons d'abord nous attarder sur une brève description de la paroi magnétique puis, nous nous concentrerons sur l'effet de transfert de spin qui nous autorise à manipuler ces petits objets magnétiques.

## 1.1 Propriétés des parois de domaine magnétique

En préambule, nous faisons remarquer que nous utiliserons parfois indifféremment les termes d'aimantation (pour indiquer le moment magnétique) et spin (pour indiquer le moment de spin) afin de ne pas alourdir le texte. Les deux définitions sont équivalentes mais il convient de rappeler que le vecteur de moment magnétique  $\vec{M}$  est défini comme le moment magnétique par unité de volume et qu'il est de sens opposé au spin local :

$$\vec{M} = -\gamma \frac{\hbar}{a^3} \vec{S} \quad (1.1)$$

$\hbar$  est la constante réduite de Planck,  $a$  le paramètre de maille et  $\gamma$  le rapport gyromagnétique et  $\vec{S}$  le spin local.

### 1.1.1 Types de paroi existantes

Nous avons vu qu'une paroi est la zone de transition entre deux domaines magnétiques, ces derniers étant définis comme les régions où l'aimantation est uniforme. Dans un barreau en couche mince d'un matériau ferromagnétique comme le permalloy, l'aimantation des domaines est souvent contrainte dans le plan de la couche et le long de la plus grande dimension. L'aimantation des domaines peut soit pointer vers la paroi, on parle alors de paroi *head-to-head* comme indiqué sur la figure 1.1a, soit pointer dans l'autre sens, on parle alors de paroi *tail-to-tail*, c.f. figure 1.1b, ou encore pointer dans le même sens, on parle alors de paroi à  $360^\circ$ , c.f. figure 1.1c.

La rotation de l'aimantation, i.e. la structure micromagnétique de la paroi, s'effectue de manière continue et correspond à des schémas bien connus [McMichael 1997, Nakatani 2005]. Ainsi, on distingue deux types de structures : la paroi vortex et la paroi transverse (c.f. figure 1.2). La rotation de l'aimantation peut s'opérer dans différents plans suivant les matériaux utilisés et le type de structures élaborées.

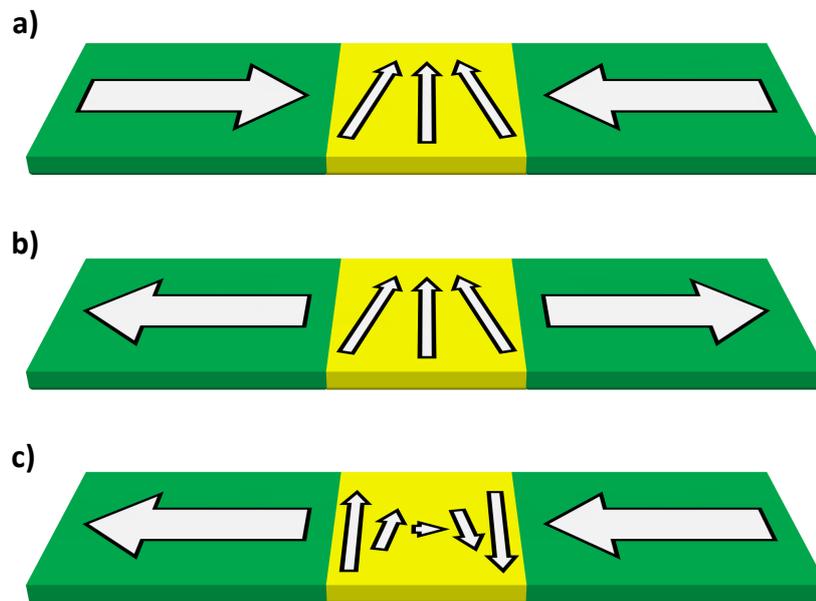


FIGURE 1.1 – Schémas des types de paroi de domaine magnétique pour un matériau à aimantation planaire. a) Paroi *head-to-head* b) Paroi *tail-to-tail* c) Paroi à  $360^\circ$

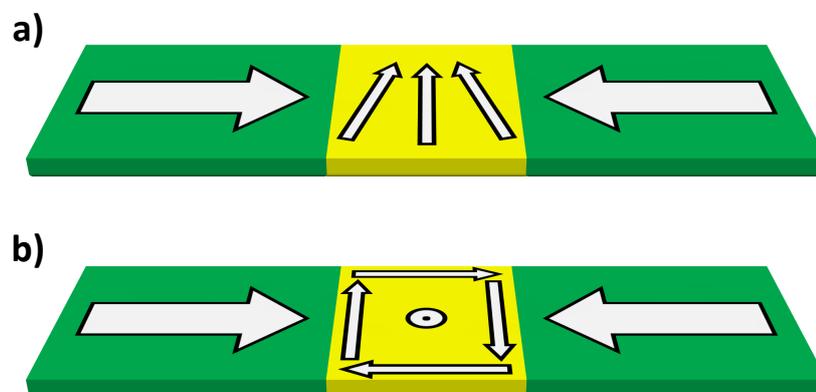


FIGURE 1.2 – Schémas des structures internes de paroi *head-to-head* pour un matériau à aimantation planaire. a) Paroi transverse de Néel : L'aimantation tourne dans le plan qui contient l'aimantation des deux domaines. b) Paroi vortex : L'aimantation s'enroule sur elle-même dans le plan. Au niveau du centre de la paroi l'aimantation est perpendiculaire au plan qui contient les aimantations des deux domaines.

Comme illustré sur la figure 1.2 pour un matériau à anisotropie planaire

(IMA pour In-plane Magnetic Anisotropy), une paroi transverse de Néel voit ses moments magnétiques locaux tourner dans le plan de la couche mince. Une paroi de Bloch voit ses moments magnétiques locaux tourner dans le plan perpendiculaire mais cette configuration est souvent impossible dans une couche mince en raison du fort champ démagnétisant qui serait induit. Quant à la paroi vortex, elle voit ses moments magnétiques locaux s'enrouler, dans le plan, autour d'une singularité – le coeur du vortex – pour laquelle l'aimantation pointe perpendiculairement au plan. Les parois de Bloch ne sont présentes que dans le matériau massif, alors que dans les couches minces, en raison du champ démagnétisant, seuls les parois transverse de Néel et les parois vortex peuvent se stabiliser. Les mêmes types de parois se retrouvent pour les matériaux à anisotropie perpendiculaire (PMA pour Perpendicular Magnetic Anisotropy) mais leurs largeurs sont généralement moindre pour ces matériaux.

Dans un barreau rectangulaire magnétique, la configuration stable de paroi est déterminée par l'épaisseur  $t$  et la largeur  $w$ , c.f. figure 1.3 qui représente le diagramme des structures de paroi pour le permalloy. Pour une couche suffisamment épaisse, la paroi de type vortex est souvent la plus configuration la plus stable car elle minimise les champs dipolaires, grâce à l'aimantation qui s'enroule autour du coeur du vortex. En diminuant l'épaisseur, la paroi transverse devient plus stable. Puisque notre étude porte uniquement sur les parois transverses de type Néel dans le permalloy, dorénavant toute référence à une paroi magnétique, sauf indiqué autrement, est entendu pour une paroi transverse de type Néel.

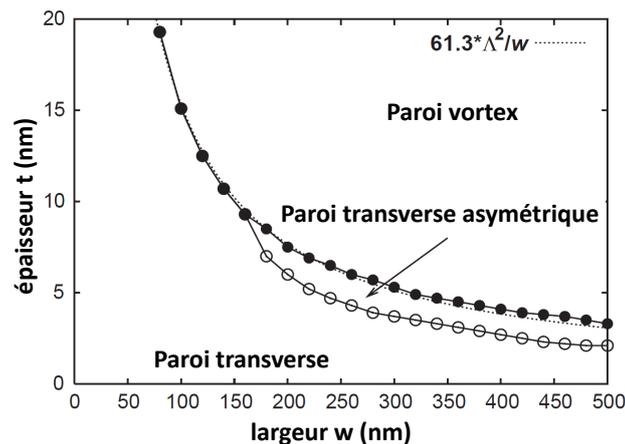


FIGURE 1.3 – Diagramme de phase des structures de paroi pour un barreau de permalloy de largeur  $w$  et d'épaisseur  $t$ . *Source* : [Nakatani 2005]

La largeur de la paroi dans le permalloy est nécessairement finie car elle résulte de la compétition entre l'interaction d'échange, qui tend à aligner parallèlement les spins, et l'interaction magnétostatique due aux différents champs d'anisotropies dans la structure. Ainsi l'énergie due à l'interaction d'échange s'exprime comme :

$$E_{ch} = -2J\vec{s}_1 \cdot \vec{s}_2 \quad (1.2)$$

$J$  est la constante d'interaction d'échange qui est positive et favorise un couplage parallèle entre deux spins voisins  $\vec{s}_1$  et  $\vec{s}_2$ .  $E_{ch}$  est minimisée pour une paroi de forte largeur en raison du produit scalaire entre deux spins voisins. A l'opposé, le coût énergétique dû à l'interaction magnétostatique est minimisé pour une faible largeur de paroi car cela permet de réduire la contribution de l'énergie d'anisotropie due à la forme (champ démagnétisant avec ses coefficients  $N_d$ ). La largeur de la paroi  $\Delta$  peut être évaluée en exprimant et en minimisant l'énergie totale due à l'échange et au magnétostatique correspondant à  $n$  pas de rotation des spins effectuant un total de  $180^\circ$ . On trouve ainsi  $\Delta = w/\pi$  pour un barreau de largeur  $w$  et pour une paroi transverse de Bloch. La situation peut se compliquer d'avantage si d'autres sources d'énergie interviennent comme l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya qui tend rendre les spins non-colinéaire. Les systèmes présentant cette interaction produisent alors des distributions d'aimantation complexes et très variées [Mühlbauer 2009].

### 1.1.2 Déplacement de paroi sous champ magnétique

Lorsqu'on applique un champ magnétique dans le plan du barreau, sous l'action du couple  $-m \times H$  les spins de la paroi sont inclinés hors du plan et l'accumulation de charges magnétiques induit un fort champ démagnétisant  $H_d$  perpendiculaire au plan de la couche, c.f. figure 1.4. Les spins de la paroi amorce une précession rapide autour de  $H_d$  et retourne dans le plan de la couche. Dans le régime stationnaire, les spins de la paroi ont une composante hors-plan et sous l'action du champ démagnétisant, ils s'inclinent à la manière d'une rangée de dominos (en flèches vertes sur la figure 1.4). Le domaine parallèle à la direction d'application du champ s'agrandit tandis que le domaine anti-parallèle rétrécit. L'étude détaillée de la dynamique de déplacement de paroi fait apparaître des régimes non-linéaires (*creep*, *Walker breakdown*, inertie, etc.) mais sort du cadre de ce travail. Ces aspects sont traités dans de nombreux travaux, dont [Thiaville 2006].

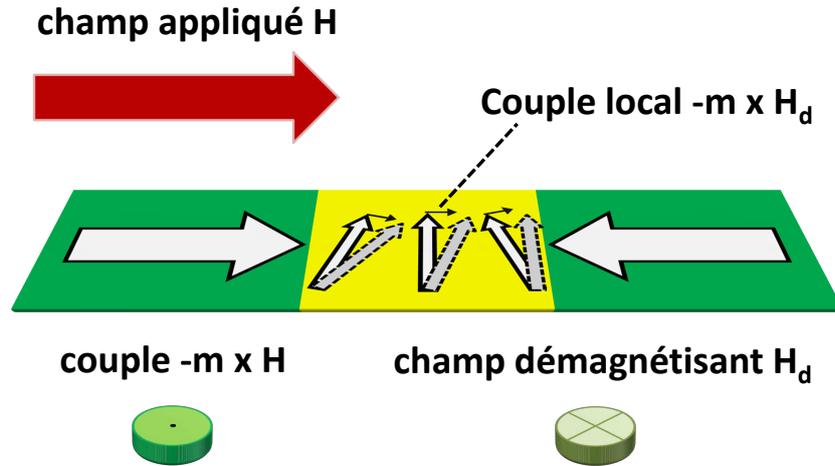


FIGURE 1.4 – Schéma du mécanisme de déplacement de paroi induit par champ magnétique externe. Les spins de la paroi présentent une composante hors-plan sous l'action du champ magnétique externe. Le champ démagnétisant induit une rotation de l'ensemble des spins de sorte que la paroi se déplace de manière à agrandir le domaine parallèle à la direction d'application du champ.

Nous venons de voir comment un champ magnétique peut induire le déplacement d'une paroi, nous allons maintenant nous attarder sur l'effet de transfert de spin qui permet le contrôle d'une aimantation et notamment le déplacement d'une paroi à champ nul.

## 1.2 Notions de bases : Effet de transfert de spin dans une jonction tunnel

En 1996, Slonczewski et Berger prédisent indépendamment qu'il est possible de contrôler l'aimantation d'un matériau ferromagnétique par l'injection d'un courant polarisé en spin [Slonczewski 1996, Berger 1996]. Afin de décrire simplement ce phénomène, intéressons nous à une tricouche ferromagnétique/non magnétique/ferromagnétique (FM1/NM/FM2) en approximation macrospin, i.e. les aimantations sont considérées uniformes. Le vecteur d'aimantation  $\vec{M}_2$  de l'électrode FM2 est dans la direction  $\vec{u}_y$  et le vecteur d'aimantation  $\vec{M}_1$  de l'électrode FM1 est dans le plan  $\widehat{yOz}$ . Les aimantations sont non-colinéaires et elles décrivent un angle  $\theta$  comme illustré sur la figure 1.5a. On s'intéresse au sort d'un flux d'électrons qui traversent la structure de FM1 vers FM2 selon la direction  $\vec{u}_x$ , i.e. perpendiculairement au plan des aim-

tations (CPP pour Current-Perpendicular-to-Plane). Au sein des électrodes FM1 et FM2, le moment magnétique des électrons est aligné selon la direction de l'aimantation locale sous l'interaction  $s - d$ . Au milieu de la couche non magnétique, le moment magnétique  $\vec{m}_{ref}$  des électrons a évolué et il est donc orienté dans une direction intermédiaire à  $\vec{M}_1$  et  $\vec{M}_2$ , c.f. figure 1.5b. En arrivant dans l'électrode FM2, les électrons cèdent la composante transverse de leur moment magnétique, en pointillé noir sur la figure 1.5b, directement à l'aimantation  $\vec{M}_2$ . Par conservation du moment total, un couple  $T_{IP}$  s'exerce sur l'aimantation selon la direction  $\vec{u}_z$ . De la même manière, en sortant de l'électrode FM1, les électrons gagnent la composante transverse en pointillé rouge sur la figure 1.5b, qui est cédée par l'aimantation  $\vec{M}_1$ . Par conséquent, un couple  $T'_{IP}$  s'exerce sur l'aimantation  $M_1$ .

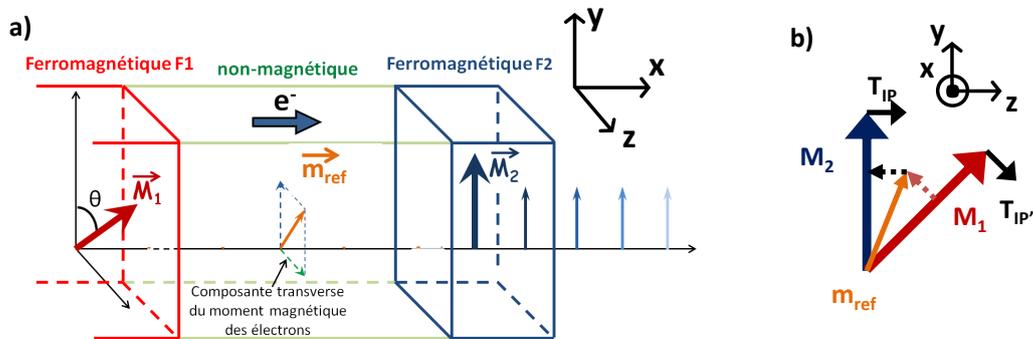


FIGURE 1.5 – a) Schéma d'une hétérostructure avec illustration de l'évolution du moment magnétique des électrons injectés. b) Etat du moment magnétique de l'électron (en orange) lorsqu'il est dans la couche non magnétique à mi-chemin entre les couches de référence (en rouge) et libre (en bleu).

Ces couples  $T_{IP}$  et  $T'_{IP}$ , dit de transfert de spin, résident dans le plan des aimantations. Si les volumes magnétiques du système sont suffisamment réduits, ces couples peuvent changer la direction des aimantations lorsque la densité de courant critique est atteinte. Le phénomène est symétrique et il n'est donc possible de manipuler indépendamment les aimantations que par introduction d'une asymétrie, comme des épaisseurs et/ou des matériaux d'électrodes différents par exemple. Dans le domaine industriel, des stratégies plus complexes et performantes sont employées à partir d'antiferromagnétiques synthétiques (SAF pour Synthetic AntiFerromagnet en anglais) afin de bloquer une électrode tandis que l'autre reste libre. Cette électrode bloquée sert de référence et elle est souvent appelée couche polarisatrice. Sous l'effet de transfert de spin, la dynamique d'aimantation de l'électrode libre est décrite par l'équa-

tion modifiée de Landau-Lifshitz-Gilbert :

$$\dot{M} = \underbrace{-\gamma_0 M \times H_{eff}}_{precession} + \underbrace{\frac{\alpha}{M_s} M \times \dot{M}}_{amortissement} - \underbrace{\frac{u}{t} M \times (M \times m_{ref})}_{T_{IP}} - \underbrace{\xi \frac{u}{t} M \times m_{ref}}_{T_{OOP}} \quad (1.3)$$

$$u = \frac{P j g \mu_B}{2e M_s} \quad (1.4)$$

$M$  est le vecteur d'aimantation de la couche libre,  $t$  est son épaisseur,  $M_s$  est son aimantation à saturation,  $g$  est le facteur de Landé,  $\mu_B$  est le magnéton de Bohr,  $\gamma_0$  est le rapport gyromagnétique,  $H_{eff}$  est le champ effectif (somme des différentes contributions : anisotropies, magnétostatique, champ externe.),  $\alpha$  est le coefficient d'amortissement.  $\xi$  est le rapport du couple  $T_{OOP}$  sur le couple  $T_{IP}$ .  $P$  est le taux de polarisation en spin du courant,  $j$  est la densité de courant injecté,  $e$  la charge élémentaire, et  $m_{ref}$  est le moment magnétique des électrons polarisés en spin par l'électrode de référence.

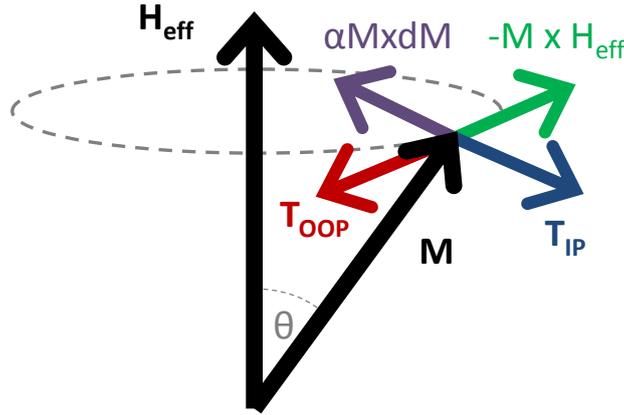


FIGURE 1.6 – Illustration des forces de l'équation 1.3 régissant la dynamique d'aimantation avec transfert de spin.

Le premier terme de l'équation 1.3 correspond au couple dû au champ effectif  $H_{eff}$  et il a pour effet de faire précesser l'aimantation autour de  $H_{eff}$  (figure 1.6). Le deuxième terme correspond à l'amortissement de Gilbert et traduit les phénomènes de relaxation qui ramènent progressivement l'aimantation vers la direction de  $H_{eff}$ .

Le troisième terme de 1.3 représente la composante du couple de transfert de spin  $T_{IP}$  qui réside dans le plan des aimantations. Si on considère un électron incident, avec un spin  $\vec{S}_i$ , qui entre dans l'électrode libre ferromagnétique de spin  $\vec{S}$ , on constate qu'il précesse autour du champ effectif local

avant d'adopter son état de spin final  $\vec{S}_o$  au-delà de la longueur de précession de Larmor  $\lambda_L$  (figure 1.7a).

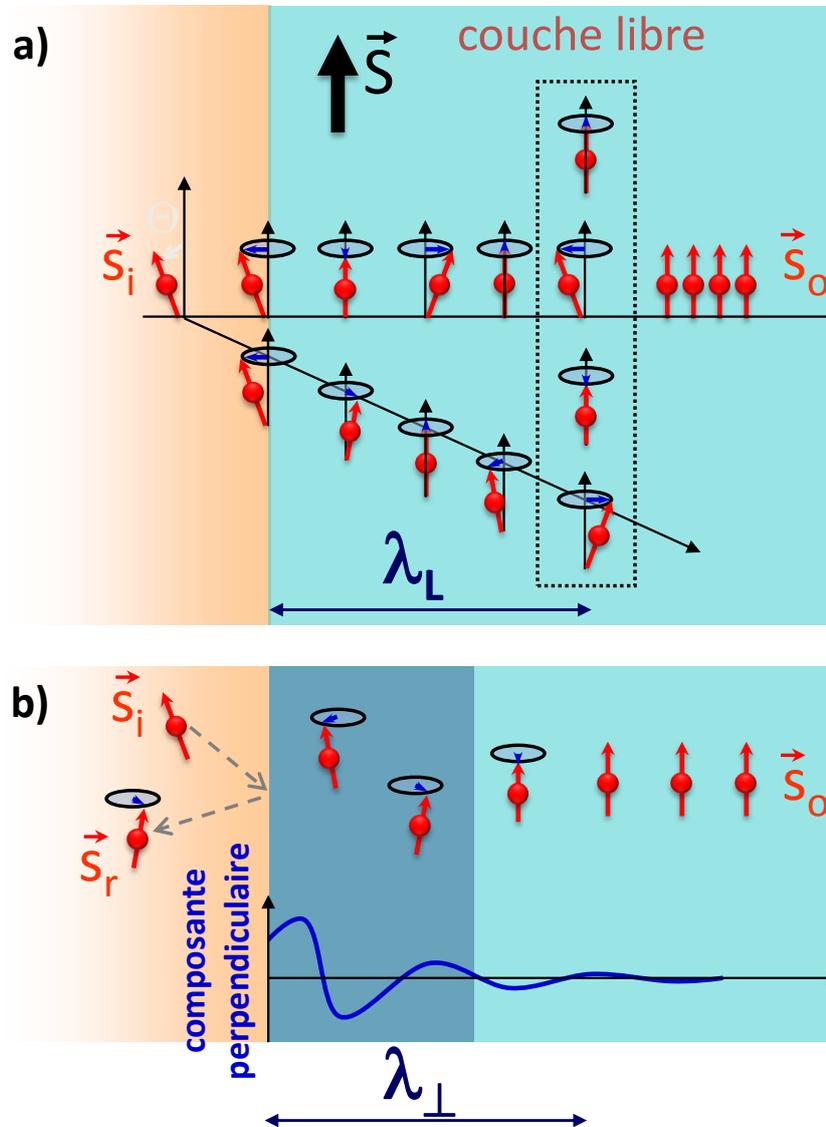


FIGURE 1.7 – a) Illustration de l'origine du couple  $T_{IP}$ . Au delà de la longueur de précession de Larmor, les spins  $\vec{S}_o$  sortant sont alignés selon la direction de spin local  $\vec{S}$ . b) Illustration des mécanismes produisant le couple  $T_{OOP}$ . La barrière tunnel transmet principalement les électrons aux vecteurs d'onde perpendiculaire. La précession des spins des électrons est cohérente sur la longueur  $\lambda_{\perp}$ .

L'absorption du courant de spin transverse sur cette longueur crée le

couple  $T_{IP}$ . Il se comporte comme un terme d'amortissement ou de contre-amortissement, son effet est donc respectivement de stabiliser ou déstabiliser l'état d'aimantation de la couche libre.

Le quatrième terme de 1.3 décrit la composante du couple de transfert de spin  $T_{OOP}$  qui est perpendiculaire au plan qui contient les aimantations. Dès 1989, Slonczewski étudie le couplage d'échange intercouche dans une jonction tunnel et propose déjà l'existence d'un tel couple [Slonczewski 1989]. Selon 1.3, le couple  $T_{OOP}$  est équivalent à un champ magnétique local orienté selon  $m_{ref}$ , d'où l'appellation *field-like* qu'on lui donne parfois. On peut comprendre son origine en analysant les sources de courant de spin dans une approche de type réflexion/transmission (c.f. figure 1.7b). Le bilan des moments de spin donne pour un électron unique :  $T_{STT} = -\Delta S = S_i + S_r - S_o$ . Lorsque l'électron  $\vec{S}_i$  arrive à l'interface, il peut soit être réfléchi ou transmis. La réflexion modifie le spin car l'électron précesse à l'interface sous l'influence de l'électrode ferromagnétique, l'électron va donc participer à la proportion de courant de spin réfléchi. Quant à l'électron transmis, il amorce sa précession et va progressivement aligner son spin avec le spin local de l'électrode. Dans le cas particulier d'une jonction tunnel, la barrière opère un filtrage des électrons transmis *et* réfléchi selon un vecteur d'onde principalement perpendiculaire. La précession des spins des électrons transmis s'effectue donc de manière cohérente sur une longueur  $\lambda_{\perp}$  (figure 1.7b). A cette première contribution au couple  $T_{OOP}$  s'ajoute celle des électrons réfléchis qui, même s'ils sont en faible proportion, ont tout de même un effet non négligeable grâce à la sélection des vecteurs d'onde. Dans le cas d'une jonction métallique de type vanne de spin, le transport est diffusif et les électrons ne sont pas sélectionnés en vecteur d'onde perpendiculaire. Les phénomènes de précession ne sont pas cohérents et il en résulte un couple  $T_{OOP}$  très faible, i.e.  $\xi_{vanne-spin} \ll \xi_{jtm}$ .

L'effet de transfert de spin a permis le développement de nombreux concepts de composant. La jonction magnétorésistive est ainsi devenue l'élément de base dans les STT-MRAM (Spin Transfer Torque Magnetic Random Access Memory) pour lesquelles la commutation s'effectue par transfert de spin (Everspin<sup>®</sup> et Toshiba<sup>®</sup>). Lorsque la composante  $T_{IP}$  du transfert de spin agit comme un contre-amortissement, il est possible d'entretenir la précession de l'aimantation autour du champ effectif par simple injection d'un courant DC. Cela permet de concevoir des oscillateurs nanométriques hyperfréquence *via* les oscillations de la magnétorésistance [Kiselev 2003, Dussaux 2010, Locatelli 2011]. A l'inverse, l'application d'un courant RF proche de la fréquence de résonance va induire de petites oscillations de l'aimantation autour de sa position d'équilibre et une tension DC apparaît alors aux bornes de la jonction. Cet effet de redressement est appelé *spin-diode* en analogie avec l'effet redresseur d'une diode classique.

Dans notre contexte d'étude, nous allons voir comment l'effet de transfert de spin permet de déplacer des parois magnétiques, fondement des concepts de memristor spintronique [Wang 2009b, Grollier 2010], *racetrack memory*  $\equiv$  mémoire en registre à décalage [Parkin 2008] ou DW STT-MRAM [Fukami 2009] par exemple.

## 1.3 Déplacement de paroi par transfert de spin

En complément aux études de Slonczewski, les travaux initiaux de Berger sur le transfert de spin prévoient la possibilité d'induire le déplacement d'une paroi magnétique [Berger 1978, Berger 1984, Berger 1988, Freitas 1985, Hung 1988, Hung 1990]. Dans une première partie, nous décrivons les mécanismes physiques à la base du déplacement de paroi induit par transfert de spin en injection dans le plan (CIP). La deuxième partie sera consacrée à l'étude de l'injection de courant perpendiculairement au plan (CPP). Dans une dernière partie nous mettrons en évidence les différences intrinsèques d'efficacité entre les configurations CIP et CPP.

### 1.3.1 Injection latérale « Current-In-Plane » (CIP)

La grande majorité des expériences de déplacement de paroi induit par transfert de spin opèrent par l'injection du courant dans le plan contenant la paroi. Le permalloy (NiFe) est fréquemment employé car c'est un matériau magnétique doux, ses faibles champs coercitifs rendent donc la manipulation de l'aimantation aisée par application de champ magnétique ou par effet de transfert de spin. Considérons un barreau de permalloy dans lequel on a créé et stabilisé une paroi. On injecte un courant latéralement de sorte que les électrons de conduction se polarise selon la direction locale de spin. Dans le permalloy les largeurs de paroi typiques sont de  $\Delta \approx 100 \text{ nm}$  et sont très grandes comparées aux longueurs de diffusion  $\lambda_{spin-flip} \approx 4 \text{ nm}$  et longueur de cohérence  $\lambda_{decoh} \approx 1 - 2 \text{ nm}$ . Dans la limite adiabatique, le spin de l'électron de conduction est donc à tout endroit aligné selon la direction du spin local. Ainsi, en traversant la paroi, les électrons de conduction transfèrent de proche en proche la composante transverse de leur spin à l'aimantation local (c.f. figure 1.8).

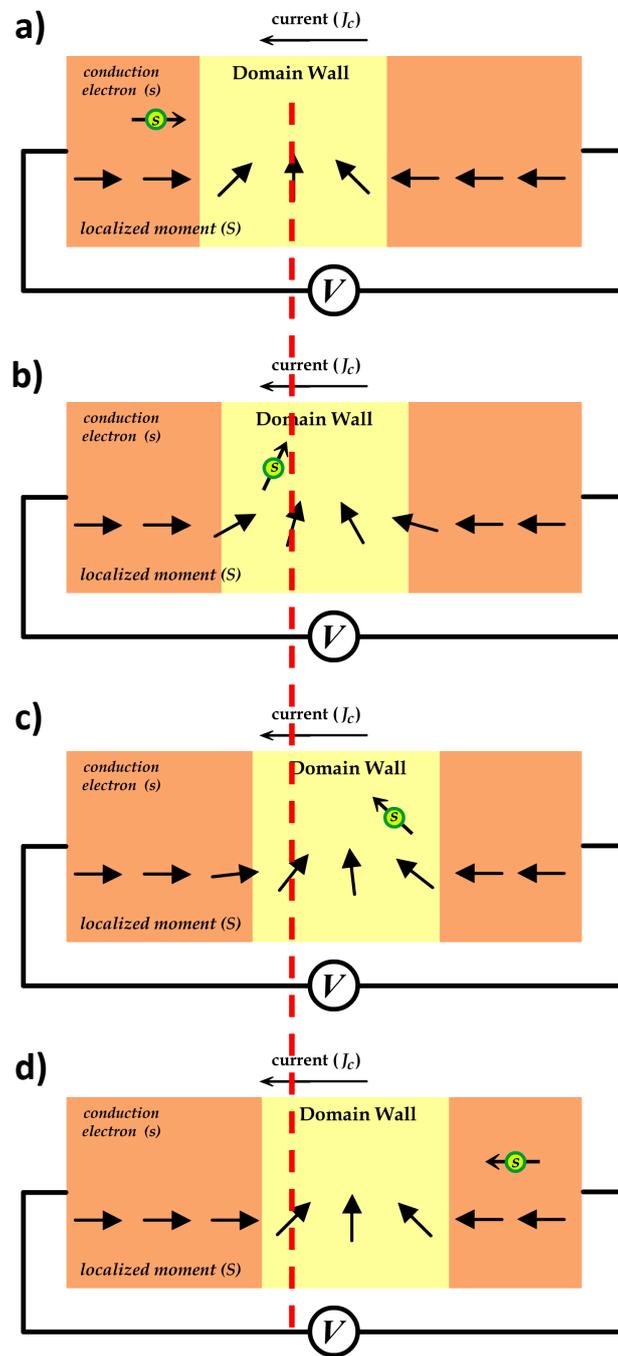


FIGURE 1.8 – a) - d) Déplacement de paroi par injection latéral de courant : changement de l'orientation du spin d'un électron (en vert) traversant latéralement un barreau ferromagnétique contenant une paroi. La position initiale de la paroi est indiqué par le trait pointillé vertical rouge.

L'absorption de la composante transverse induit un couple  $T_{adiab}$  sur l'aimantation locale qu'on peut exprimer en fonction du gradient de l'aimantation :

$$T_{adiab} = -(u \cdot \nabla)m \quad (1.5)$$

$$u = \frac{Pjg\mu_B}{2eM_s} \quad (1.6)$$

$m$  est le vecteur unité de l'aimantation locale,  $P$  le taux de polarisation en spin courant,  $j$  la densité de courant,  $g$  le facteur de Landé,  $\mu_B$  le magnéton de Bohr,  $e$  la charge de l'électron et  $M_s$  l'aimantation à saturation du matériau magnétique. Le préfacteur  $u$  a la dimension d'une vitesse et peut s'interpréter comme le taux de transfert de moment de spin pour une densité de courant et un matériau donné. Elle détermine donc la limite supérieure que la paroi peut atteindre sous l'effet de transfert de spin en CIP.

Afin d'analyser l'effet de ce couple sur la paroi, il convient de l'intégrer dans l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert 1.3 décrite dans la section précédente. Cependant, en raison de la présence de la paroi, l'approximation macrospin n'est plus employée et cela incite à exprimer localement la variation d'aimantation comme :

$$\frac{dm}{dt} = -\gamma_0 m \times H_{eff} + \alpha m \times \frac{dm}{dt} - \underbrace{(u \cdot \nabla)m}_{T_{adiab}} + \underbrace{\beta m \times (u \cdot \nabla)m}_{T_{non-adiab}} \quad (1.7)$$

$m$  est le vecteur unitaire de l'aimantation locale,  $\gamma_0$  le rapport gyromagnétique et  $H_{eff}$  le champ effectif total. La résolution analytique de l'équation et les simulations micromagnétiques prévoient des densités de courant critiques d'un ordre de grandeur supérieures aux premiers résultats expérimentaux de déplacement de paroi par transfert de spin [Grollier 2003, Klaui 2003]. Deux groupes ont rapidement fait remarquer [Thiaville 2005, Zhang 2004] que le couple  $T_{adiab}$  étant dans le plan de la couche magnétique, il n'a pas la bonne symétrie pour induire un déplacement continu de la paroi. Il a donc été nécessaire d'introduire un deuxième couple dont l'effet est d'incliner les spins de la paroi hors du plan. Ce deuxième terme,  $T_{non-adiab}$ , est appelé couple non adiabatique et son amplitude est caractérisé par le préfacteur sans dimension  $\beta$ . Pour certains matériaux, par exemple ceux à aimantation perpendiculaire, la largeur de la paroi est bien inférieure au cas du permalloy et  $\Delta \approx \lambda_{spin-flip} \approx \lambda_{decoh}$ . Le spin de l'électron de conduction suit de manière non adiabatique le spin local de la paroi, ainsi le deuxième terme couple de transfert de spin  $T_{non-adiab}$  apparait naturellement. Tatara et Kohno ont prédit [Tatara 2004] dans ce cas que le transfert de spin serait alors peu efficace en raison de réflexions d'électrons sur la paroi. La contribution principale au

déplacement de la paroi serait alors le transfert de moment cinétique proportionnel au nombre de charge et à la résistance de la paroi, les électrons poussent alors littéralement la paroi.

En revanche, dans le cas du permalloy il est moins évident de justifier l'origine physique du terme  $\beta$  et ceci fait encore l'objet d'intenses investigations [Tatara 2008, Waintal 2004, Vanhaverbeke 2007, Zhang 2004]. Les calculs théoriques récents prédisent que dans la limite adiabatique, les phénomènes de relaxation de spin à l'origine du facteur d'amortissement  $\alpha$  (diffusion de type spin-flip ou couplage spin-orbit) produisent un terme similaire à  $\beta$  dès lors que le transport est pris en compte [Kohno 2006, Tserkovnyak 2006, Garate 2009]. Il n'existe néanmoins pas encore de consensus concernant la valeur de  $\beta$ , des calculs indiquant que  $\beta = \alpha$  [Tserkovnyak 2006], alors que d'autres modèles prédisent que ce ne serait pas le cas en général [Kohno 2006, Garate 2009]. Plus récemment, Petitjean *et al.* ont utilisé un modèle semi-classique afin d'étudier le transport en injection de courant perpendiculaire dans une structure magnétorésistive. Les interfaces sont considérées comme des barrières auxquelles on attribue des probabilités de transmission et de réflexion. Le transfert de spin est alors exprimé comme l'absorption de courants de spin transverse, et  $\beta$  peut s'exprimer ainsi [Petitjean 2012] :

$$\beta = \frac{\lambda_L \lambda_*}{\lambda_{sf}^2} \left[ 1 + \frac{\lambda_* \lambda_L^2}{\lambda_{\perp} \lambda_{sf}^2} + \left( \frac{\lambda_L}{\lambda_{\perp}} \right)^2 \right]^{-1} \quad (1.8)$$

Il est directement relié aux différentes longueurs de cohérence de spin  $\lambda_{\perp}$ , de précession de Larmor  $\lambda_L$ , de *spin-flip*  $\lambda_{sf}$  et de libre parcours moyen  $\lambda_* = 1/\lambda_{\uparrow} + 1/\lambda_{\downarrow}$ . Leurs calculs *ab initio* confirment les précédents travaux [Tatara 2004, Zhang 2004, Thiaville 2005] qui prédisent que  $\beta$  dépend à la fois de la structure micromagnétique de la paroi et des propriétés du matériau à travers les longueurs  $\lambda_{\perp}$ ,  $\lambda_L$ ,  $\lambda_{sf}$ ,  $\lambda_*$ .

Pour ces raisons, les données expérimentales tendent à fournir des valeurs de  $\beta$  très disperses selon les systèmes étudiés et les techniques utilisées. Pour des parois vortex dans du permalloy,  $\beta$  a été mesuré de diverses manières : par imagerie à rayon X après déplacement induit par impulsion de courant de quelques nanosecondes ( $\beta \approx \alpha$ ) [Meier 2007], par étude du dépiégeage oscillant par impulsions de courant à durée variable ( $\beta \approx 8\alpha$  trouvé par [Thomas 2006] et  $\beta \approx 2\alpha$  trouvé par [Hayashi 2008]), par déplacement de paroi induit transfert de spin assisté par champ magnétique ( $\beta \approx 2\alpha$ ) [Lepadatu 2009]. Cette diversité de résultat se rencontre aussi pour les matériaux à aimantation perpendiculaire pour lesquels la largeur de paroi est beaucoup plus faible que dans le permalloy. Ainsi dans le cas d'empilement Co/Pt,  $\beta$  a été mesuré à 0.35 *via* dépiégeage de paroi assisté par champ

magnétique, en comparaison à  $\alpha \approx 0.15$  [Boulle 2008], et  $\beta \leq 0.02$  en comparant courant et champ pour de faible déplacement de paroi dans son puit de potentiel [Miron 2009]. Pour un même système étudié, la dispersion sur les valeurs mesurées de  $\beta$  provient certainement de contributions supplémentaires dépendantes de la méthode expérimentale utilisée. Parmi celles-ci on peut identifier le champ d'Oersted [Uhlir 2010], l'effet Joule, tous les effets de type spin-orbit comme l'effet Rashba ou l'effet Hall de spin [Miron 2010] et la force automotrice [Chauleau 2010]. Certaines expériences récentes utilisent le dépiégeage induit par activation thermique dans le régime de courant sous-critique afin de mesurer la valeur de  $\beta$  [Burrowes 2009, Eltschka 2010]. Ce type d'approche a l'avantage de fonctionner dans le régime linéaire et aussi de prendre directement en compte les effets thermiques qui sont autrement indésirables. Ainsi Burrowes *et al.* [Burrowes 2009] ont déterminé des valeurs de  $\beta$  légèrement inférieur à  $\alpha$  dans des systèmes à aimantation perpendiculaire : ( $\beta_{CoNi} = 0.022$  comparativement à  $\alpha_{CoNi} = 0.032$  et  $\beta_{FePt} = 0.06$  comparativement à  $\alpha_{FePt} = 0.1$ ). Ces récents résultats sont assez surprenants étant donné la faible largeur de paroi pour ces matériaux, nous nous attendrions à des valeurs de  $\beta$  plus élevées comme nous l'avons précédemment vu. En employant un modèle thermiquement activé dans le cadre d'une étude avec du permalloy, Eltschka *et al.* [Eltschka 2010] ont trouvé  $\beta = 0.01$  pour une paroi transverse, et  $\beta = 0.073$  pour une paroi vortex.  $\beta$  est plus important dans le cas de la paroi vortex en raison des forts gradient d'aimantation près du coeur du vortex.

En résumé, les valeurs de  $\beta$  calculées et mesurées dépendent fortement des systèmes étudiés (matériaux, objets magnétiques, etc.). Sa valeur reste cependant toujours de l'ordre de grandeur du facteur d'amortissement  $\alpha$ .

### 1.3.2 Injection verticale « Current-Perpendicular-to-Plane » (CPP)

Contrairement à l'injection CIP où la paroi est déplacée par transfert de spin dans le sens du flux des électrons, le déplacement de paroi par injection en CPP dans une JTM obéit à des paramètres différents. En effet, d'après 1.3 les composantes du couple de transfert de spin s'expriment comme :

$$T_{IP} = \frac{u}{t} M \times (M \times m_{ref}) \quad (1.9)$$

$$T_{OOP} = \xi \frac{u}{t} M \times m_{ref} \quad (1.10)$$

En configuration CPP, une couche fonctionne comme polarisatrice et détermine la direction du vecteur unitaire  $m_{ref}$  de polarisation en spin des électrons. Pour une paroi transverse et un matériau à aimantation dans le plan, c'est le

couple  $T_{OOP}$  qui a la bonne symétrie pour induire le déplacement de la paroi selon la direction  $m_{ref}$ . Trois remarques viennent alors concernant l'injection en configuration CPP ; Premièrement, comme nous l'avons vu précédemment le couple  $T_{OOP}$  est quasiment nul dans les jonctions de type vanne de spin, la géométrie CPP impose l'utilisation de jonctions tunnel. Deuxièmement, selon que les aimantations de la couche libre et de la couche de référence sont perpendiculaire entre elles ou dans le même plan, le couple effectif pour le déplacement de paroi est alors respectivement  $T_{IP}$  ou  $T_{OOP}$ . La configuration la plus efficace est celle où les aimantations des deux couches sont perpendiculaire entre elles, i.e. celle où  $T_{IP}$  est responsable du déplacement de paroi. Cependant, c'est aussi une configuration où on ne peut détecter de manière résistive le déplacement de paroi en raison de la dépendance angulaire en cosinus de la TMR. Enfin troisièmement, dans une jonction tunnel symétrique, le couple  $T_{OOP}$  a une dépendance quadratique en fonction de la tension tunnel ???. Notre étude concerne des matériaux à aimantation dans le plan, il est donc impératif d'obtenir un couple  $T_{OOP}$  qui change de signe avec la polarité du courant afin de pouvoir déplacer la paroi dans les deux sens. Dans ce but, la compréhension de l'anatomie du couple de transfert de spin dans les jonctions tunnel est nécessaire pour tirer profit de la dépendance en tension des couples  $T_{IP}$  et  $T_{OOP}$ .

Theodonis *et al.* présente une analyse de la dépendance en tension *via* des calculs *ab initio* des densités de courant de spin [Theodonis 2006]. Ils dérivent une expression du couple  $T_{IP}$  qui dépend des densités de courant de spin dans les états parallèle  $J_s(P)$  et antiparallèle  $J_s(AP)$  :

$$T_{IP} \propto \frac{\hbar}{2} (J_s(AP) - J_s(P)) \quad (1.11)$$

Le courant peut être décomposé en un terme linéaire en tension et un autre quadratique :

$$J_s = a(\bar{\Phi})V + b\Delta\Phi V^2 \quad (1.12)$$

Le premier terme est fonction de la hauteur moyenne de barrière  $\bar{\Phi}$  tandis que le deuxième est aussi proportionnel à l'asymétrie  $\Delta\Phi$  de la barrière. Ainsi, la dépendance en tension du couple  $T_{IP}$  peut être expliquée en analysant les schémas 1.9 qui rendent compte d'un schéma de conduction à canaux d'électrons majoritaires et minoritaires dans une jonction tunnel. Dans l'état parallèle, les électrons majoritaire et minoritaire tunnelent à travers des barrières symétriques ( $\Delta\Phi = 0$ ) de hauteurs moyennes différentes  $\bar{\Phi}$ . La caractéristique  $I(V)$  attendue d'après 1.12 dans l'état parallèle est donc paire et linéaire. Dans l'état antiparallèle, les électrons majoritaires et minoritaires tunnelent à travers des barrières asymétriques de hauteurs moyennes identiques. La caractéristique  $I(V)$  attendue dans l'état antiparallèle est paire et notamment

quadratique. En pratique, si la jonction tunnel est basée sur des électrodes semi-métalliques ou avec une barrière filtrant les symétries comme le MgO, on peut considérer que le courant dans l'état anti-parallèle est très faible. En régime de faible tension, on peut donc considérer uniquement le courant dans l'état parallèle dans l'équation 1.11, le couple  $T_{IP}$  est alors principalement linéaire en tension. Les corrections quadratiques provenant du courant dans l'état antiparallèle interviennent seulement pour les tensions plus élevées.

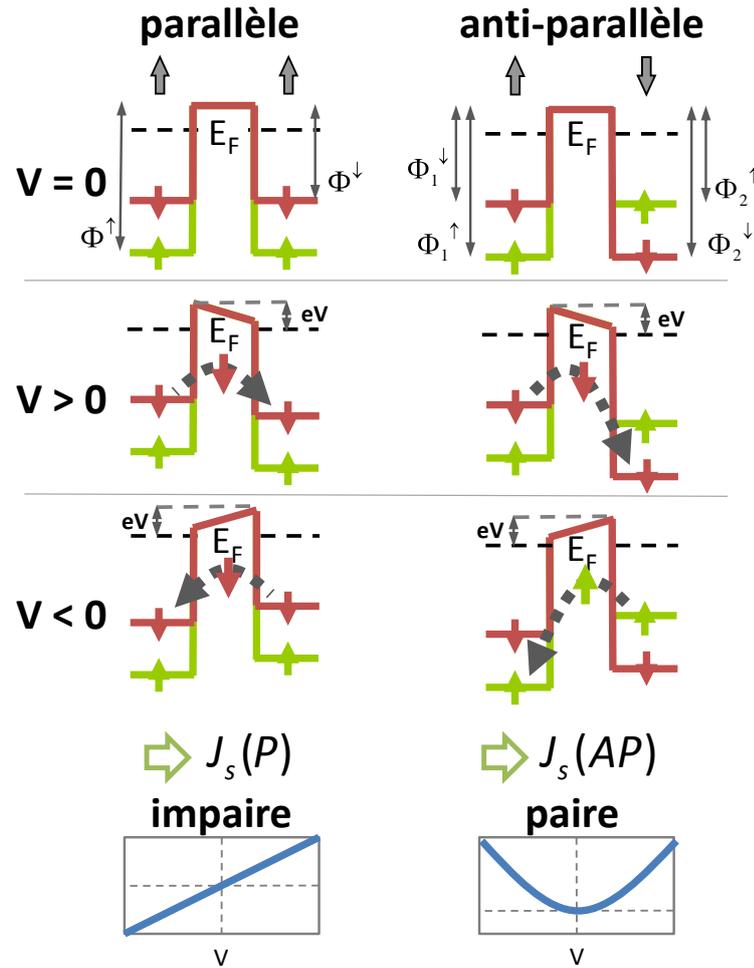


FIGURE 1.9 – Illustration de la conduction tunnel *via* les canaux d'électron de spin majoritaire et minoritaire dans les configurations parallèle et anti-parallèle. Les caractéristiques  $I(V)$  permettent directement de prédire la dépendance en tension du couple  $T_{IP}$  grâce à l'équation 1.11

Quant au couple hors-plan  $T_{OOP}$ , on peut déduire son comportement en fonction de la tension en considérant une jonction parfaite-

ment symétrique de type Non Magnétique/Ferromagnétique/Non magnétique/Ferromagnétique/Non Magnétique. Avec l'application d'une tension, les électrons dans les électrodes non magnétiques voient leur spin aligné avec les électrodes ferromagnétiques adjacentes. La composante hors-plan de la densité de courant de spin dans les électrodes non magnétique est nulle, les électrons ayant perdu toute précession cohérente. La seule couche où la composante hors-plan subsiste est donc la couche centrale non magnétique. Les deux couches ferromagnétiques sont alors le lieu d'un couple hors-plan d'amplitude identique et de sens opposé. Ainsi, l'application d'une tension opposée est équivalent à tourner la structure de  $180^\circ$ , la fonction  $T_{OOP}(V)$  est donc paire. De plus, il a été prédit [Theodonis 2006] et expérimentalement démontré [Sankey 2007, Kubota 2007] que le couple hors-plan dépend quadratiquement de la tension  $T_{OOP}(V) \propto V^2$  au deuxième ordre. Une composante linéaire en tension peut être introduite grâce à une asymétrie dans la composition et/ou l'épaisseur des électrodes. Ceci a été prédit [Xiao 2008, Manchon 2008, Heiliger 2008, Tang 2010] et expérimentalement démontré [Oh 2009, Matsumoto 2011, Chanthbouala 2011]. Dans la pratique, nous devons donc concevoir des jonctions tunnel asymétriques afin d'obtenir un couple hors-plan  $T_{OOP}$  dont le signe change avec la polarité de la tension afin de pouvoir manipuler une paroi dans les deux sens.

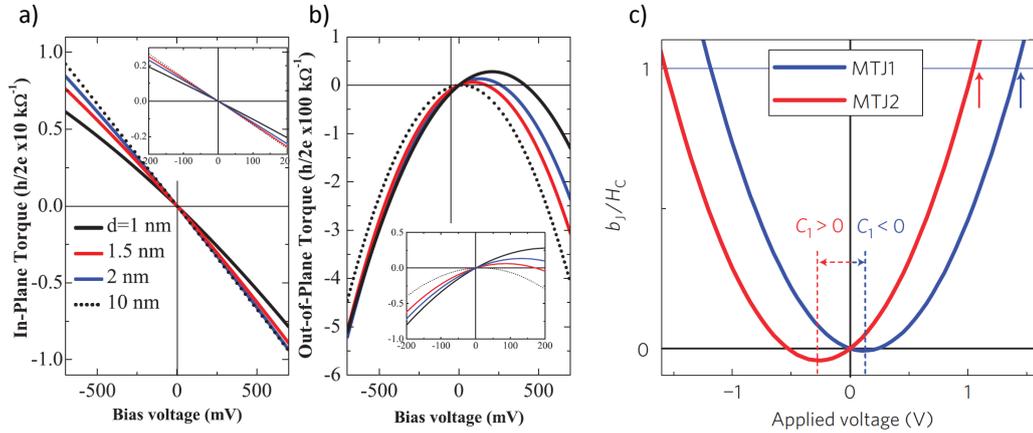


FIGURE 1.10 – a) et b) Calculs de la dépendance de respectivement  $T_{IP}$  et  $T_{OOP}$  en fonction de la tension et de l'épaisseur de la couche libre (figure issue de [Manchon 2012]). c) Mesure de la dépendance du couple  $T_{OOP}$  dans deux jonctions tunnel aux électrodes de composition différente (figure issue de [Oh 2009]).

### 1.3.3 Comparaison CIP vs. CPP

Comme l'illustre la figure 1.11, dans le cas d'une paroi transverse en configuration CIP, le couple non-adiabatique  $T_{non-adiab}$  est responsable du déplacement de la paroi car il serait équivalent à un champ orienté dans la longueur des domaines. Le paramètre  $\beta$  traduit la proportion de courant efficace et, puisqu'il est faible  $\beta \approx \alpha \approx 0.01 - 0.05$ , la densité de courant critique est élevée  $j_c > 10^8 A.cm^{-2}$ . De plus, la vitesse reste relativement faible car elle peut s'exprimer comme :

$$v_{DW} = \frac{\beta}{\alpha} u < 150 m.s^{-1} u = \frac{JPg\mu_B}{2eM_s} \quad (1.13)$$

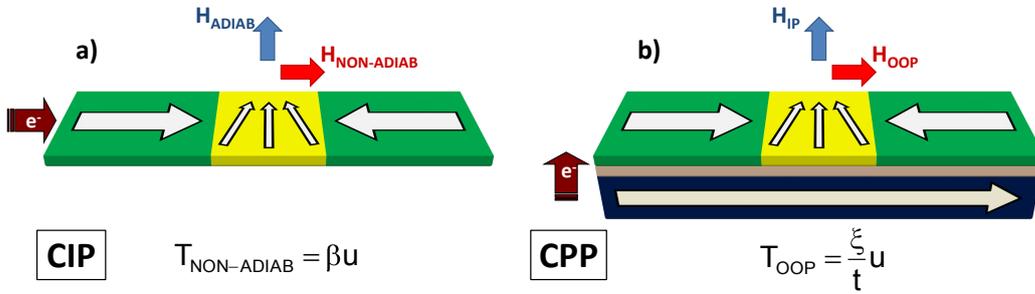


FIGURE 1.11 – Comparaison des efficacités dans les configuration a) CIP et b) CPP.

Dans la configuration CPP, le couple hors-plan  $T_{OOP}$  est responsable du déplacement de la paroi et le paramètre  $\xi = T_{OOP}/T_{IP}$  traduit son amplitude. Deux paramètres géométriques interviennent dans la dynamique de la paroi sous transfert de spin en CPP. Le premier, la largeur  $\Delta$  de la paroi, apparaît car seule la portion de courant injecté à travers la paroi est utile. Le deuxième paramètre, l'épaisseur  $t$  de la couche, intervient car en CPP le volume de matériau magnétique à manipuler est en relation direct avec l'amplitude du couple de transfert de spin. La vitesse en CPP s'exprime donc comme :

$$v_{DW} = \frac{\xi \Delta}{\alpha t} u \quad (1.14)$$

Dans une jonction tunnel, le couple  $T_{OOP}$  est plus fort que le couple  $T_{non-adiab}$  car  $\xi > 0.2 \gg \beta$ . En conséquence, on s'attend à ce que la densité de courant critique soit plus faible en CPP qu'en CIP. D'autre part, les vitesses prédites [Khvalkovskiy 2009] sont bien plus élevées qu'en CIP car en comparant les préfacteurs dans 1.13 et 1.14, on remarque que  $\beta \ll \xi (\Delta/t)$ . Le gain de

vitesse provient du fait qu'intrinsèquement  $\xi \gg \beta$ . Il y a aussi un gain qui provient de l'aspect géométrique  $\Delta/t$ . En prenant des valeurs typiques pour un barreau de permalloy de largeur  $\approx 50$  nm, par exemple  $t = 5$  nm,  $\Delta = 50$  nm et  $\alpha = 0.01$ , le rapport  $\Delta/t = 10$ . Même si ce rapport géométrique est unitaire, comme ce peut être le cas avec des matériaux à aimantation perpendiculaire, le gain en CPP reste incompressible car  $\xi \gg \beta$ .

## 1.4 Effet de spin-diode

Nous avons précédemment mentionné l'effet de spin-diode comme générant une tension moyenne non nulle mesurable aux bornes d'une jonction magnétique tunnel lorsqu'un courant radio-fréquence (RF) proche de la fréquence de résonance est injecté. Nous allons étudier les origines de cette effet et nous verrons en quoi il constitue un outil de mesure des couples de transfert de spin.

Considérons une jonction magnétique tunnel qui est lithographiée en pilier de forme elliptique. Comme illustré sur la figure 1.12, on applique un champ magnétique selon l'axe  $z$  de sorte que le champ effectif total est composé du champ appliqué  $H$ , des champs d'anisotropie  $H_a$  (ici seulement l'anisotropie de forme) et du champ démagnétisant  $H_d$  :

$$\vec{H}_{eff} = H\vec{u}_z - H_a m_z \vec{u}_z - H_d m_x \vec{u}_x \quad (1.15)$$

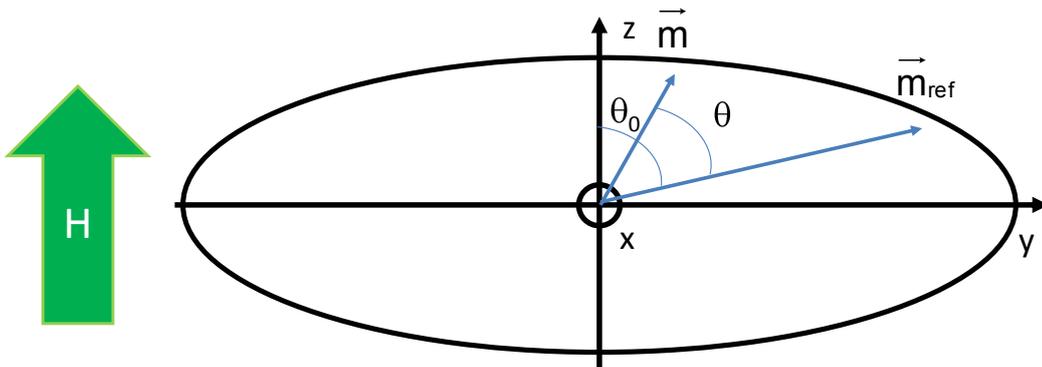


FIGURE 1.12 – Schéma de l'ellipse vue de dessus. Le champ est appliqué selon l'axe difficile.

Sous l'action du champ appliqué, l'aimantation de la couche libre est uniforme, de vecteur unitaire  $\vec{m}$ , et aligné selon l'axe  $z$ . L'aimantation de la couche de référence, de vecteur unitaire  $\vec{M}$  adopte une position d'équilibre

et décrit un angle  $\theta_0$  avec l'aimantation de la couche libre. En réponse au courant RF proche de la résonance, une tension continue  $V_{mix}$  peut être expérimentalement mesurée aux bornes de l'échantillon et elle peut se décomposer ainsi :

$$V_{mix} = \frac{1}{2} \frac{\partial^2 V}{\partial I^2} \langle [\delta I(t)]^2 \rangle + \frac{\partial^2 V}{\partial I \partial \theta} \langle [\delta I(t) \delta \theta(t)] \rangle + \underbrace{\frac{1}{2} \frac{\partial^2 V}{\partial \theta^2} \langle [\delta \theta]^2 \rangle}_{=0} + \underbrace{\frac{\partial V}{\partial \theta} \langle \delta \theta \rangle}_{=0} \quad (1.16)$$

Le premier terme correspond à une contribution non résonante qui produit un signal de fond. Le deuxième terme correspond à la contribution du mélange entre le signal RF et la précession de l'aimantation. Le troisième terme correspond au changement de la résistance DC dû aux précessions. Etant donné que nous saturons l'aimantation selon l'axe difficile ce terme est nul dans notre configuration. Le quatrième terme correspond à une modification de l'axe de précession induit par le courant RF, nous négligerons aussi ce terme.

Le courant injecté  $I$  prend la forme :  $I = I_0 + \delta I = I_0 + i_{RF} \cos \omega t$ . L'aimantation reste principalement dans le plan de la couche durant les précessions de sorte que  $\delta \theta = m_y$ . Afin d'évaluer  $\frac{\partial^2 V}{\partial I \partial \theta} \langle [\delta I(t) \delta \theta(t)] \rangle$ , nous devons calculer  $m_y$  en utilisant l'équation modifiée de Landau-Lifschitz-Gilbert en présence de transfert de spin :

$$\frac{dm}{dt} = -\gamma m \times H_{eff} + \alpha m \times \frac{dm}{dt} - \gamma T_{IP}(I, \theta) \vec{u}_y - \gamma T_{OOP}(I, \theta) \vec{u}_x \quad (1.17)$$

Nous avons supposé que le transfert de spin ne modifie pas l'axe de précession :

$$T_{IP}(I^0 + \delta I, \theta^0 + \delta \theta) = \cancel{T_{IP}(I^0, \theta^0)} + \frac{\partial T_{IP}}{\partial I} \delta I + \frac{\partial T_{IP}}{\partial \theta} \delta \theta \quad (1.18)$$

$$T_{OOP}(I^0 + \delta I, \theta^0 + \delta \theta) = \cancel{T_{OOP}(I^0, \theta^0)} + \frac{\partial T_{OOP}}{\partial I} \delta I + \frac{\partial T_{OOP}}{\partial \theta} \delta \theta \quad (1.19)$$

Il faut donc résoudre le système d'équations différentielles :

$$\begin{aligned} \dot{m}_x &= -\alpha \gamma (H_d + H - H_a) m_x \\ &+ \gamma \left[ -(H - H_a) + \alpha \frac{\partial T_{IP}}{\partial \theta} - \frac{\partial T_{OOP}}{\partial \theta} \right] m_y \\ &+ \gamma \left[ \alpha \frac{\partial T_{IP}}{\partial I} - \frac{\partial T_{OOP}}{\partial I} \right] I_{RF} \end{aligned} \quad (1.20)$$

$$\begin{aligned} \dot{m}_y &= +\gamma (H_d + H - H_a) m_x \\ &+ \gamma \left[ -\alpha (H - H_a) - \alpha \frac{\partial T_{OOP}}{\partial \theta} - \frac{\partial T_{IP}}{\partial \theta} \right] m_y \\ &+ \gamma \left[ -\alpha \frac{\partial T_{OOP}}{\partial I} - \frac{\partial T_{IP}}{\partial I} \right] I_{RF} \end{aligned} \quad (1.21)$$

Les solutions sont de type :

$$\begin{aligned} I_{RF} &= i_{RF} e^{i\omega t} \\ m_x &= m_x^0 e^{i\omega t} \\ m_y &= m_y^0 e^{i\omega t} \end{aligned}$$

En remplaçant dans 1.20 et 1.21, on obtient :

$$\begin{aligned} \gamma \left[ \alpha \frac{\partial T_{IP}}{\partial I} - \frac{\partial T_{OOP}}{\partial I} \right] i_{RF} &= [i\omega + \alpha\gamma (H_d + H - H_a)] m_x^0 \\ &+ \gamma \left[ \left( H - H_a + \frac{\partial T_{OOP}}{\partial \theta} \right) - \alpha \frac{\partial T_{IP}}{\partial \theta} \right] m_y^0 \end{aligned} \quad (1.22)$$

$$\begin{aligned} -\gamma \left[ \alpha \frac{\partial T_{OOP}}{\partial I} + \frac{\partial T_{IP}}{\partial I} \right] i_{RF} &= -\gamma (H_d + H - H_a) m_x^0 \\ &+ \left[ i\omega + \alpha\gamma \left( H - H_a + \frac{\partial T_{OOP}}{\partial \theta} \right) + \gamma \frac{\partial T_{IP}}{\partial \theta} \right] m_y^0 \end{aligned} \quad (1.23)$$

En posant :

$$\omega_a = \gamma (H_d + H - H_a) \quad (1.24)$$

$$\omega_b = \gamma \left( H - H_a + \frac{\partial T_{OOP}}{\partial \theta} \right) \quad (1.25)$$

Il vient :

$$\begin{aligned} m_y^0 &= \left\{ (\omega_a \omega_b - \omega^2)^2 + \omega^2 \left[ \alpha (\omega_a + \omega_b) + \gamma \frac{\partial T_{IP}}{\partial \theta} \right]^2 \right\}^{-1} \\ &\times -\gamma i_{RF} \left[ \omega_a \frac{\partial T_{OOP}}{\partial I} + i\omega \left( \alpha \frac{\partial T_{OOP}}{\partial I} + \frac{\partial T_{IP}}{\partial I} \right) \right] \\ &\times \left\{ (\omega_a \omega_b - \omega^2) - i\omega \left[ \alpha (\omega_a + \omega_b) + \gamma \frac{\partial T_{IP}}{\partial \theta} \right] \right\} \end{aligned} \quad (1.26)$$

Donc :

$$\begin{aligned} \Re(m_y^0) &= \left\{ (\omega_a \omega_b - \omega^2)^2 + \omega^2 \left[ \alpha (\omega_a + \omega_b) + \gamma \frac{\partial T_{IP}}{\partial \theta} \right]^2 \right\}^{-1} \\ &\times -\gamma i_{RF} \left[ \omega_a \frac{\partial T_{OOP}}{\partial I} (\omega_a \omega_b - \omega^2) \right] \\ &- \gamma i_{RF} \omega^2 \left( \alpha \frac{\partial T_{OOP}}{\partial I} + \frac{\partial T_{IP}}{\partial I} \right) \left[ \alpha (\omega_a + \omega_b) + \gamma \frac{\partial T_{IP}}{\partial \theta} \right] \end{aligned} \quad (1.27)$$

Les couples de transfert de spin varient en fonction du sinus de l'angle  $\theta$  entre l'aimantation de la couche libre et celle de la couche de référence :

$$T_{IP} = T_{IP}^0 \sin \theta \quad (1.28)$$

$$T_{OOP} = T_{OOP}^0 \sin \theta \quad (1.29)$$

L'expression 1.27 se condense en posant :

$$\omega_0 = \omega_a \omega_b \quad (1.30)$$

$$\Delta = \alpha(\omega_a + \omega_b) + \gamma \cos \theta T_{IP}^0 \quad (1.31)$$

$$\approx \alpha\omega_a + \gamma \cos \theta T_{IP}^0 \quad (1.32)$$

$$A = \gamma\omega_a \frac{\partial T_{OOP}^0}{\partial I} \quad (1.33)$$

$$B = \gamma\Delta \left( \alpha \frac{T_{OOP}^0}{\partial I} + \frac{\partial T_{IP}^0}{\partial I} \right) \quad (1.34)$$

$$\approx \gamma\Delta \frac{\partial T_{IP}^0}{\partial I} \quad (1.35)$$

Et 1.27 devient alors :

$$\Re(m_y^0) = \frac{A(\omega_0^2 - \omega^2) + B\omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\Delta\omega)^2} i_{RF} \quad (1.36)$$

La partie  $A$  est une composante anti-Lorentzienne et la partie  $B$  est une composante Lorentzienne du signal.

Ainsi :

$$\langle \delta I \delta \theta \rangle = -i_{RF}^2 \langle \cos^2(\omega t) \rangle \sin \theta \frac{A(\omega_0^2 - \omega^2) + B\omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\Delta\omega)^2} \quad (1.37)$$

La résistance tunnel s'exprime comme  $R = [1/2(G_P + G_{AP}) + 1/2(G_P - G_{AP}) \cos \theta]^{-1}$  donc :

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 V}{\partial I \partial \theta} &= \frac{\partial}{\partial I} \left( \frac{\partial}{\partial \theta} (RI) \right) \\ &= \frac{\partial}{\partial I} \left( I \frac{\partial R}{\partial \theta} \right) \\ &= \frac{\partial}{\partial I} \left( I \frac{1}{2} \frac{TMR}{R_{AP}} R^2 \right) \sin \theta \\ &= \frac{1}{2} \frac{TMR}{R_{AP}} \left( R^2 + 2RI \frac{\partial R}{\partial I} \right) \sin \theta \end{aligned} \quad (1.38)$$

Et l'expression du signal de spin-diode vient en combinant 1.37 et 1.38 :

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 V}{\partial I \partial \theta} \langle [\delta I(t) \delta \theta(t)] \rangle &= \frac{1}{2} \frac{TM R}{R_{AP}} \left( R^2 + 2RI \frac{\partial R}{\partial I} \right) \sin^2 \theta \\ &\times -i_{RF}^2 \langle \cos^2(\omega t) \rangle \frac{A(\omega_0^2 - \omega^2) + B\omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\Delta\omega)^2} \end{aligned} \quad (1.39)$$

D'autre part, le signal de fond est égal à :

$$\frac{1}{2} \frac{\partial^2 V}{\partial I^2} \langle [\delta I(t)]^2 \rangle = \frac{1}{2} \frac{\partial^2 V}{\partial I^2} i_{RF}^2 \langle \cos^2(\omega t) \rangle \quad (1.40)$$

Le signal mesuré est donc la somme de 1.39 et 1.40. On peut extraire les couples de transfert de spin  $T_{IP}$  et  $T_{OOP}$  de deux manières : soit on estime les amplitudes  $A$  et  $B$  des contributions respectivement anti-Lorentzienne et Lorentzienne au signal de spin-diode. En effet, elles dépendent respectivement de la dérivée des couples  $T_{OOP}$  et  $T_{IP}$ . Soit on analyse la fréquence de résonance  $\omega_0$  et la largeur de raie  $\Delta$  car ces paramètres dépendent respectivement de  $T_{OOP}$  et  $T_{IP}$ .

# Résultats expérimentaux

## 2.1 Détermination des couples de transfert de spin : mesures spin-diode

Comme expliqué dans le chapitre précédent, l'effet de transfert de spin permet la manipulation de l'aimantation d'une nanostructure par le biais d'un courant. L'effet de spin-diode provoque l'apparition d'une tension continue qui résulte de l'action d'un courant RF sur les aimantations d'une structure magnétorésistive. Nous allons examiner l'amplitude de l'effet, puis nous nous en servirons afin de mesurer l'amplitude des couples de transfert de spin dans nos structures. Cela sera alors un moyen de s'assurer que le couple hors-plan  $T_{OOP}$  est suffisamment fort et linéaire en tension pour déplacer une paroi magnétique dans nos jonctions tunnel.

### 2.1.1 Echantillons étudiés

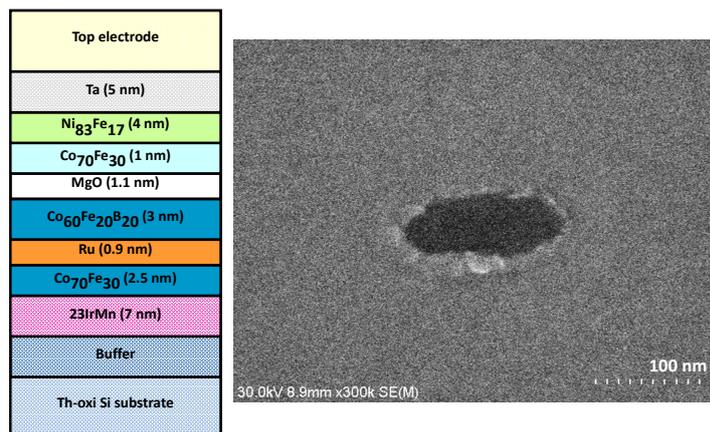


FIGURE 2.1 – a) Schéma de l'empilement multi-couche tunnel complet. b) Image par microscopie électronique à balayage du trou dans l'isolant avant le dépôt de l'électrode supérieure

Les échantillons étudiés ont été fabriqués au centre AIST par nos collaborateurs Japonais du groupe de S. Yuasa. Les couches de l'empilement magnétique sont déposées par pulvérisation cathodique magnétron sur un bâti Canon ANELVA C-7100. Ces jonctions tunnel à barrière MgO présentent une structure classiquement retrouvée dans les dispositifs commerciaux (tête de lecture de disque dur, détecteur de champ, etc.). Un antiferromagnétique synthétique est élaboré à partir d'une couche de CoFe de 2.5 nm d'épaisseur et d'un film de CoFeB de 3 nm d'épaisseur, séparés par 0.9 nm de ruthénium. Déposé sur 7 nm d'IrMn antiferromagnétique, l'aimantation du CoFe est bloquée par couplage d'échange et sa direction est contrôlée par celle du champ magnétique lors du recuit à 330° C sous 1 T pendant 2 h. Le CoFeB est couplé antiferromagnétiquement au CoFe par l'intermédiaire de l'interaction Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) à travers la couche de ruthénium [Unguris 1991, Purcell 1991, Demokritov 1992, Bruno 1991]. D'une part, cela permet d'obtenir une électrode de référence de CoFeB dont l'aimantation est fixe, et d'autre part, cette stratégie permet de relativement bien préserver l'électrode libre de l'influence du champ dipolaire des autres couches magnétiques. La barrière tunnel est constituée de 1.1 nm de MgO épitaxié. Employé avec des électrodes à base de fer, ses propriétés de filtrage en symétrie [Butler 2001, Mathon 2001] produisent un effet de magnétorésistance tunnel de l'ordre de 100 % [Yuasa 2004, Parkin 2004].

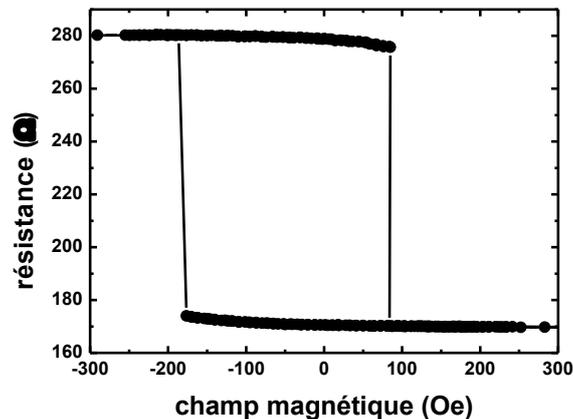


FIGURE 2.2 – Courbe typique de mesure résistance vs. champ magnétique pour les échantillons de forme elliptique utilisés pour l'étude par effet de spin-diode.

L'électrode libre est constituée de 4 nm de permalloy et une couche mince

de CoFe d'un nanomètre d'épaisseur est inséré entre le permalloy et le MgO afin d'augmenter la TMR. Un faible couplage ferromagnétique est attendu entre l'électrode libre et celle de référence à travers le MgO par le couplage de Néel, ce qui est confirmé par les mesures résistance vs. champ magnétique comme illustré sur la figure 2.2.

Une lithographie électronique permet de définir la forme de la jonction, l'empilement magnétique étant gravé jusqu'à la couche d'IrMn. L'étude par effet de spin-diode concerne des échantillons définis en pilier en forme d'ellipse de dimensions 70 x 270 nm. Cette forme est aisément réalisable par lithographie électronique et l'anisotropie de forme définit clairement des axes facile et difficile.

### 2.1.2 Montage expérimental

Les mesures sont réalisées à l'aide d'un montage doté d'une partie haute fréquence pour l'injection du courant RF, ainsi que d'une partie continue afin de mesurer la résistance DC. Lorsque le courant injecté ne présente pas de composante continue, i.e.  $I = i_{RF} \cos \omega t$ , la tension *spin-diode* est mesurée à l'aide d'un nanovoltmètre. Dans le cas où on rajoute un courant continu, i.e.  $I = i_{RF} \cos \omega t + i_{DC}$ , la tension *spin-diode* est noyée dans la tension due à la composante continue du courant. Le courant  $I$  est alors modulé en ON/OFF par un signal carré, avec  $t_{ON} = t_{OFF}$ , afin de récupérer la tension *spin-diode* en augmentant le rapport signal sur bruit.

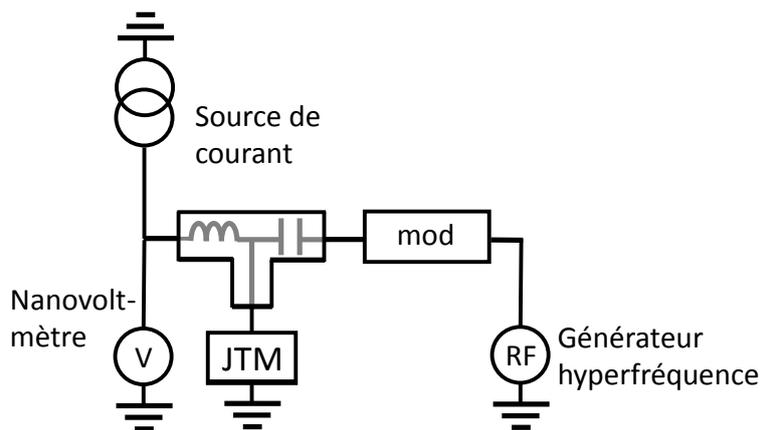


FIGURE 2.3 – Schéma du montage de mesure spin-diode.

## 2.1.3 Mesure et analyse des spectres

La figure 2.4a présente deux courbes résistances vs. champ ( $R(H)$ ) selon que ce dernier est appliqué selon un angle  $\Phi_H$  de  $0^\circ$  ou  $90^\circ$ , qui correspondent dans notre convention respectivement à l'axe difficile ou l'axe facile. La TMR typiquement mesurée est de 68 % et la résistance dans l'état parallèle est de  $162 \Omega$ . Les mesures de spin-diode ont été réalisées à divers angles  $\Phi_H$  de champ appliqué. La modulation du courant RF doit être prise en compte dans avec un facteur  $1/2$  sur les tensions mesurées au nanovoltmètre. Ainsi, les expression 1.39 et 1.40 deviennent :

$$V_{spin-diode} = -\frac{1}{8} \frac{TMR}{R_{AP}} \left( R^2 + 2RI \frac{\partial R}{\partial I} \right) \langle \cos^2 \omega t \rangle \times \frac{A(\omega_0^2 - \omega^2) + B\omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\Delta\omega)^2} i_{RF}^2 \sin^2 \theta \quad (2.1)$$

$$V_{background} = \frac{1}{8} \frac{\partial^2 V}{\partial I^2} i_{RF}^2 \quad (2.2)$$

La figure 2.4b présente un spectre typique  $V_{mix}$  vs. fréquence. Le spectre présente deux pics qui correspondent à deux modes différents. L'un est un mode d'excitation de la couche libre. L'autre mode est souvent observé [Wang 2009a, Helmer 2010] et son origine attribué à des modes d'excitation de bord, de magnons ou à l'antiferromagnétique synthétique CoFe/Ru/CoFeB. Toutes nos jonctions présentent ce type de spectre spin-diode à deux pics que nous appellerons Mode 1 et le Mode 2. En rouge sur la figure 2.4b, l'ajustement du spectre à l'aide de l'équation 2.1 avec une somme de deux pics reproduit bien les données expérimentales.

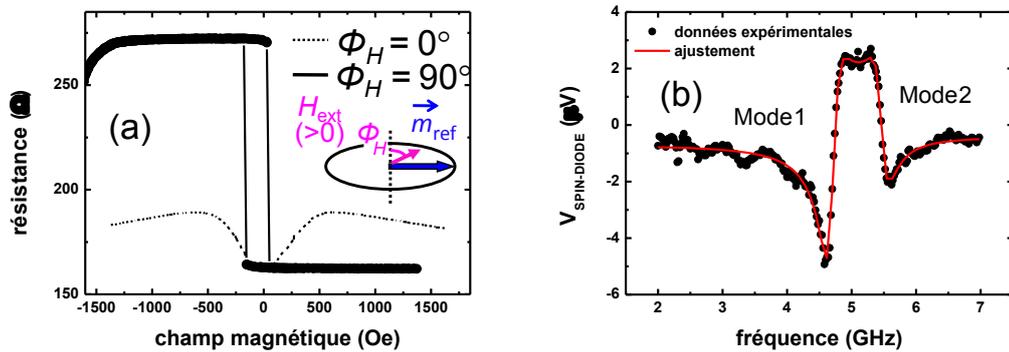


FIGURE 2.4 – a) Mesures résistance vs. champ magnétique pour le champ appliqué selon l'axe facile et difficile. b) Spectre de spin-diode typique obtenu.

Afin d'identifier le mode issu de la couche libre nous allons examiner le Mode 1. La figure 2.5 montre des spectres de spin-diode pour quelques valeurs de champ magnétique appliqué selon l'axe difficile, i.e.  $\Phi_H = 0^\circ$ . De manière attendue dans cette gamme de champ où l'aimantation est saturée selon l'axe difficile, la fréquence des modes augmente avec l'intensité du champ appliqué. L'ajustement des spectres permet d'extraire la fréquence de résonance  $f_1$  du Mode 1 en fonction du champ  $H_{ext}$  (c.f. figure 2.6a, c et e pour 3 angles  $\Phi_H$  d'application du champ).

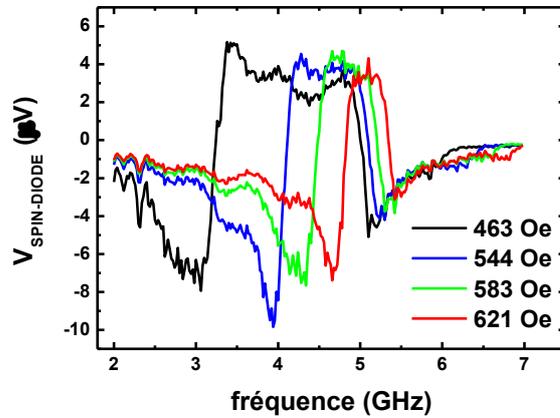


FIGURE 2.5 – Spectre de  $V_{spin-diode}$  vs. fréquence pour diverses valeurs de champ magnétique appliqué selon  $\Phi_H = 0^\circ$ .

Afin de déterminer le champ démagnétisant, on ajuste avec la formule de Kittel la courbe de la fréquence en fonction du champ magnétique dans la gamme où l'aimantation est saturée selon la direction d'application du champ, i.e. pour les champs  $H_{ext} > 50$  mT. Le champ démagnétisant est ainsi évalué à  $H_d = 1.1$  T. Pour les faibles champs,  $H_{ext} < 50$  mT,  $f_1(H)$  présente une dépendance asymétrique en fonction de la polarité du champ  $H_{ext}$ , particulièrement pour le cas  $\Phi_H = 0^\circ$ . Cette asymétrie ne peut pas être expliquée par un modèle macrospin ne tenant compte que de l'anisotropie de forme. La couche de  $\text{Co}_{70}\text{Fe}_{30}$  est amorphe avant le dépôt du permalloy mais elle cristallise dans une structure cubique durant le recuit sous champ, et une anisotropie magnétocristalline cubique peut alors apparaître selon une direction arbitraire. Cette anisotropie magnétocristalline due au  $\text{Co}_{70}\text{Fe}_{30}$  de la couche libre est susceptible de générer une tel asymétrie.

Afin vérifier cette hypothèse, nous calculons numériquement la fréquence de résonance de la couche libre  $f_1^{calc}(H)$ , en fonction du champ  $H_{ext}$ , en utili-

sant l'approximation macrospin et en tenant compte du champ d'anisotropie de forme ainsi que de l'anisotropie magnétocristalline due au  $\text{Co}_{70}\text{Fe}_{30}$ . L'angle d'équilibre  $\Phi$  de l'aimantation de la couche libre sous un champ  $H_{ext}$  appliqué selon  $\Phi_H$  est donné par :

$$H_{ext} \sin(\Phi - \Phi_H) = \frac{1}{2} H_{SA} \sin 2\Phi - \frac{1}{4} H_{CA} \cos 4(\Phi - \beta) \quad (2.3)$$

$\beta$  est l'angle de l'axe facile magnétocristallin dans le film de  $\text{Co}_{70}\text{Fe}_{30}$ , défini par rapport au petit axe de l'ellipse.  $H_{SA}$  et  $H_{CA}$  sont respectivement les champs d'anisotropie de forme et magnétocristalline. Après quelques étapes de calculs,  $f_1^{calc}(H)$  est donné par :

$$f_1^{calc}(H) = \frac{\gamma}{2\pi} \{H_d [H_{ext} \cos(\Phi - \Phi_H) - H_{SA} \cos 2\Phi + H_{CA} \cos 4(\Phi - \beta)]\}^{1/2} \quad (2.4)$$

Les résultats des calculs numériques sont présentés en figure 2.6b, d et f. Excepté  $H_{ext}$  et  $\Phi_H$  qui sont expérimentalement déterminés, les paramètres sont fixes :  $H_{SA} = 20$  mT,  $H_{CA} = 10$  mT,  $\beta = 63^\circ$  et  $H_d = 1.1$  T. Le bon accord entre les résultats expérimentaux et les calculs numériques implique premièrement que le Mode 1 est majoritairement un mode d'excitation de la couche libre et deuxièmement, que le champ d'anisotropie magnétocristalline n'est pas négligeable.

D'autres échantillons étudiés présentent aussi une asymétrie de  $f_1(H)$ , qualitativement différente pour chacun des échantillons à  $\Phi_H = 0$  mais tous reproductibles pour différentes orientation d'anisotropie magnétocristalline  $\beta$  (0-90°), des valeurs similaires de  $H_{SA}$  (20-40 mT) et de  $H_{CA}$  (15-20 mT), et une valeur fixe de  $H_d = 1.1$  T. Ce résultat confirme ainsi la contribution non négligeable de l'anisotropie magnétocristalline  $H_{CA}$ . L'accord des calculs numériques avec les données expérimentales reste qualitatif, et afin d'obtenir un meilleur accord, particulièrement pour les faibles champs, il est nécessaire de prendre en compte le couplage avec le Mode 2.

Maintenant que nous avons identifié le Mode 1 comme celui de la couche libre, nous pouvons analyser l'amplitude de l'effet de spin-diode.

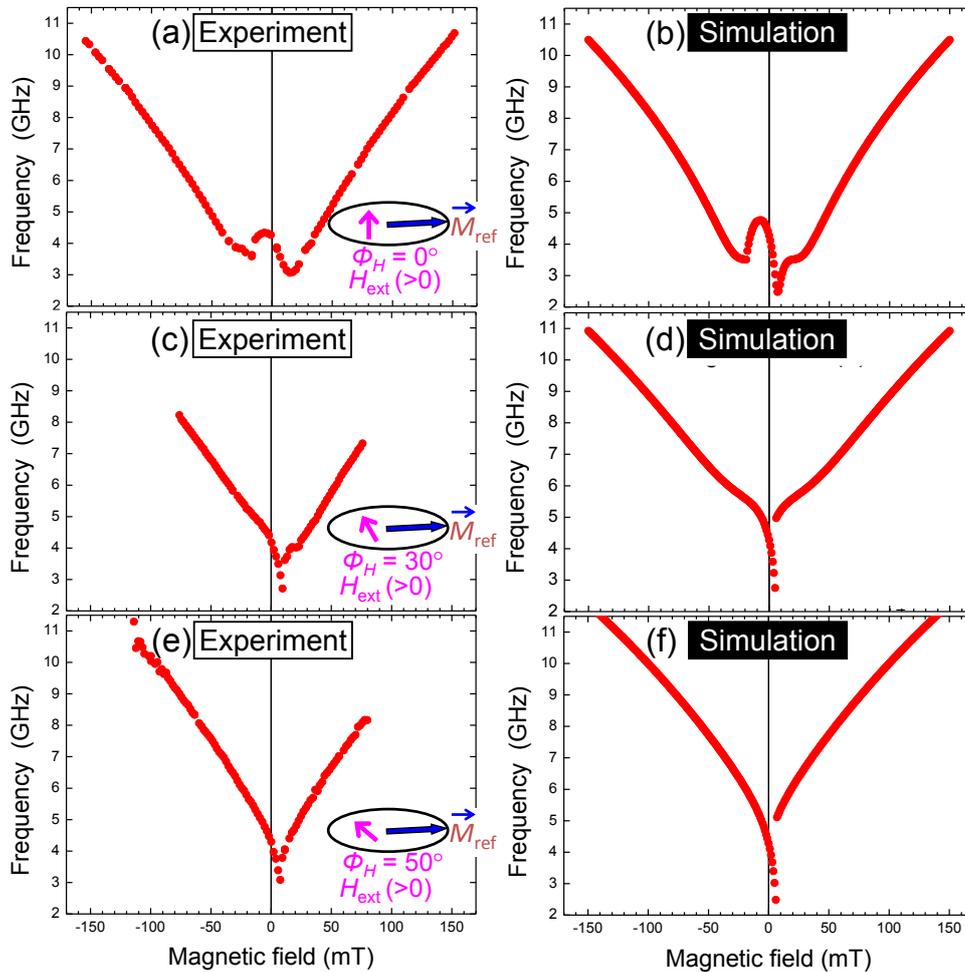


FIGURE 2.6 – Dépendance de la fréquence de résonance du Mode 1 en fonction du champ magnétique appliqué selon  $0^\circ$  (a),  $30^\circ$  (c) et  $50^\circ$  (e). Calculs numériques (b, d, f) de la fréquence avec comme paramètres : anisotropie de forme de 20 mT, anisotropie magnétocristalline de 10 mT avec  $\beta = 63^\circ$  et champ démagnétisant de 1.1 T.

### 2.1.3.1 Efficacité de redressement

L'analyse de la dépendance en champ de la fréquence de résonance nous a permis de révéler l'importance de l'anisotropie magnétocristalline et ainsi d'attribuer le Mode 1 à la couche libre. Les paramètres A et B de l'équation 2.1 extraits des ajustements correspondent respectivement à la composante anti-Lorentzienne et Lorentzienne des spectres. Ils sont tracés en fonction du champ appliqué pour  $\Phi_H = 0^\circ$  respectivement en figure 2.7a et b. L'amplitude du paramètre A est un ordre de grandeur supérieur à celui du paramètre B. En effet,

d'après les équations 1.34 et 1.35  $A \propto \gamma H_d$  tandis que  $B \propto \gamma \alpha H_d$ , avec  $\alpha$  le coefficient d'amortissement de Gilbert. Nos calculs considèrent l'aimantation saturée selon l'axe difficile, ce qui est vrai pour des champs supérieurs à 50 mT dans notre cas. Dans cette gamme de champ, encadré en trait noir pointillé sur la figure 2.7a et b, la valeur moyenne du rapport A/B dépasse 50. Le paramètre A est proportionnel à la dérivée du couple hors-plan  $T_{OOP}$ , non nul dans nos jonction asymétrique, par conséquent même à courant DC nul le spectre spin-diode présente une forte composante anti-Lorentzienne. La dépendance linéaire du couple hors-plan en fonction de la tension peut alors être un moyen efficace d'améliorer la sensibilité de l'effet spin-diode ( $V_{diode}$  divisé par la puissance hyperfréquence injectée).

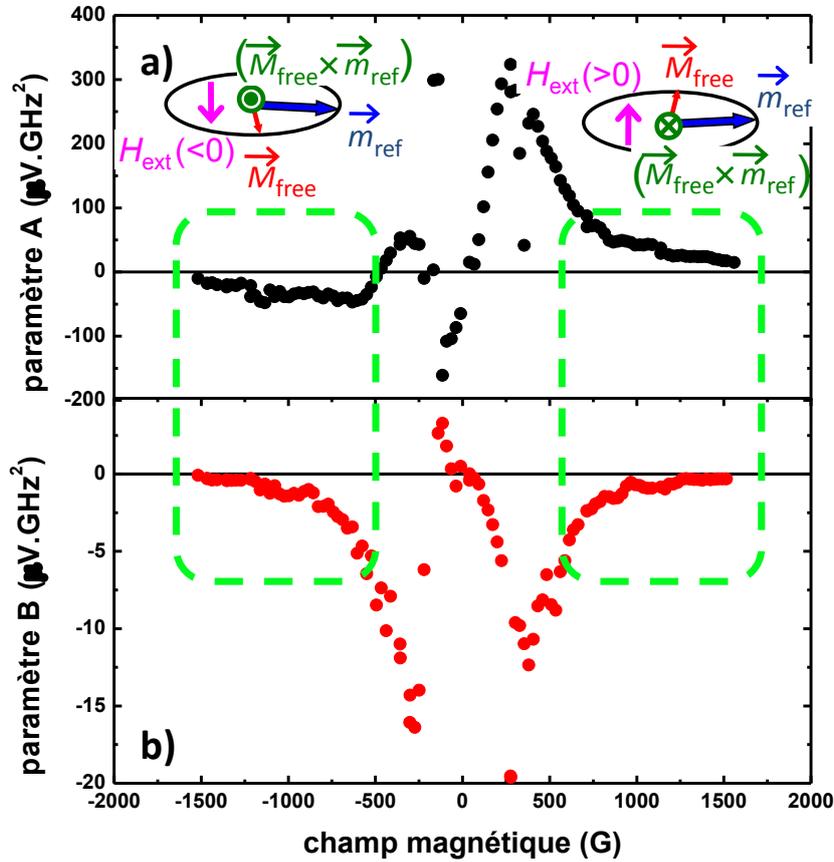


FIGURE 2.7 – Composantes Lorentzienne et anti-Lorentzienne en fonction du champ appliqué.

D'autres échantillons issus du même lot ont aussi été étudiés. La mesure de la dépendance en tension de la résistance ainsi que la calibration du désaccord

d'impédance permettent de caractériser l'efficacité de l'effet spin-diode dans nos échantillons. Pour un champ  $H_{ext} = 42$  mT, nous obtenons une sensibilité de 100 mV/mW. Ce résultat se compare bien avec de précédentes études bien que la TMR soit de moitié dans notre cas [Wang 2009a, Ishibashi 2010].

Pour des champs  $H_{ext} > 60$  mT, le paramètre A change de signe avec la polarité du champ  $H_{ext}$  tandis que le signe du paramètre B est insensible à ce dernier. C'est en accord avec l'expression vectorielle des couples de transfert de spin. Le simple produit vectoriel de l'expression du couple hors-plan  $T_{OOP}$  dépend de l'orientation de l'aimantation de la couche libre, donc de la polarité du champ  $H_{ext}$ . Le couple dans-le-plan  $T_{IP}$  quant à lui n'en dépend pas. Ce résultat confirme que le Mode 1 est attribué à la couche libre. C'est donc l'analyse de ce mode que nous utiliserons afin d'en extraire l'amplitude des couples de transfert de spin en fonction de la tension DC appliquée.

### 2.1.3.2 Extraction des couples de transfert de spin

L'analyse des paramètres A et B des équations 2.1 et 2.2 nécessite d'évaluer les autres termes expérimentalement accessibles. Il faut déterminer les caractéristiques courant vs. tension pour tous les champs appliqués selon l'axe difficile, en incluant aussi les états parallèle et anti-parallèle. Le courant  $i_{RF}$  est déterminé en divisant le signal de fond  $V_{background}$  mesuré dans l'état parallèle par  $\frac{1}{8} \frac{\partial^2 V}{\partial I^2}$  mesuré dans le même état. L'angle  $\theta$  est évalué à l'aide de la mesure résistance vs. champ magnétique réalisée à différents angles d'application du champ. Le champ démagnétisant  $H_d$  est obtenu par ajustement de la partie linéaire de la courbe fréquence pic vs. champ appliqué selon la formule de Kittel. Enfin, il faut mesurer la TMR en fonction de la tension  $TMR(V)$ .

Ainsi, la mesure quantitative des couples de transfert de spin est possible soit en analysant la fréquence et la largeur de raie des spectres, selon les équations 1.25 et 1.33, soit en analysant l'amplitude des composantes Lorentzienne et anti-Lorentzienne des spectres, selon les équations 1.34 et 1.35. La fréquence dépend de beaucoup d'autres paramètres dont la température de sorte qu'il n'est pas avisé d'utiliser cette voie. Les couples ainsi extraits sont d'ailleurs très bruités comme l'atteste la figure 2.8.

Nous avons donc procédé par l'analyse des paramètres A et B. La figure 2.9 illustre le couple dans-le-plan  $T_{IP}$  obtenu pour diverses valeurs de champ appliqué. Les valeurs extraites ne sont pertinentes que pour les champs élevés pour lesquels l'aimantation est saturée selon l'axe d'application du champ. La dépendance en tension est conforme à ce qu'on attend et le couple  $T_{IP}$  est aussi efficace qu'un champ de plusieurs dizaines d'Oersted.

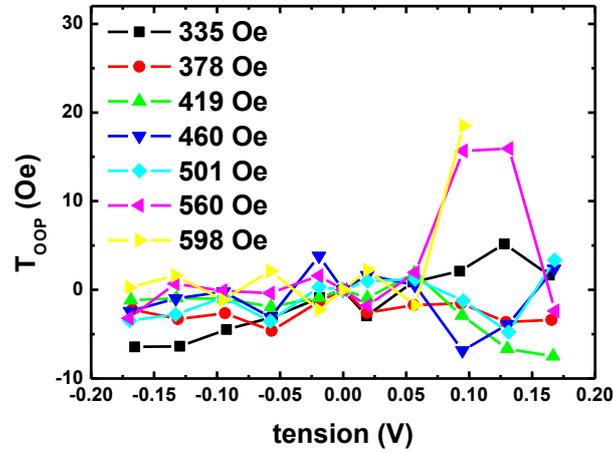


FIGURE 2.8 – Couple hors-plan  $T_{OOP}$  mesuré par la fréquence de résonance.

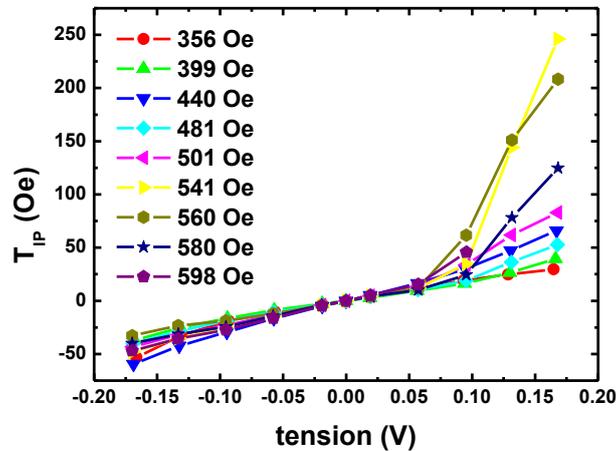


FIGURE 2.9 – Couple  $T_{IP}$  mesuré par l'amplitude de la composante Lorentzienne B.

Les couples de transfert de spin sont indépendants du champ, toutes variations avec le champ est donc un artefact de mesure. En revanche, la mesure du couple hors-plan  $T_{OOP}$  présente moins d'artefacts, comme le montre le figure 2.10. En accord avec le fait que nos jonctions sont asymétriques en composition et en épaisseur, le couple  $T_{OOP}$  change de signe avec la polarité

de la tension et confirme les résultats de Oh *et al.* [Oh 2009] obtenus par une autre méthode pour des jonctions tunnel magnétiques à base de MgO avec des électrodes asymétriques. Dans le régime de faible tension, entre  $\pm 60$  mV, le couple hors-plan atteint jusqu'à 40 % du couple dans-le-plan.

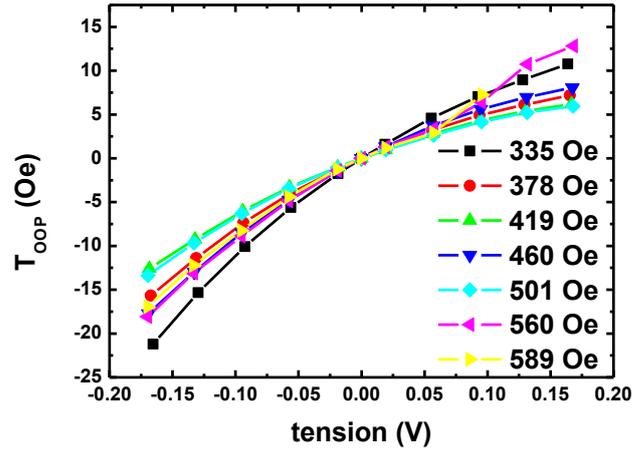


FIGURE 2.10 – Couple  $T_{OOP}$  mesuré par l'amplitude de la composante Lorentzienne A.

### 2.1.4 Discussion

Nous avons étudié les caractéristiques de nos échantillons par effet de spin-diode. Les spectres ainsi obtenus ont nécessité une étude approfondie concernant l'influence de l'anisotropie magnétocristalline de la couche de CoFe afin d'identifier le mode associé à la couche libre. L'amplitude de l'effet redresseur est important grâce à la contribution du couple  $T_{OOP}$  à la composante anti-Lorentzienne du signal. L'extraction des couples de transfert de spin a été réalisée à partir des paramètres d'amplitude A et B. Le couple dans-le-plan présente une dépendance en tension attendue et il est assez intense, atteignant une efficacité d'une centaine d'Oersted. L'asymétrie de la jonction a rendu le signe du couple *out-of-plane* dépendant de la polarité du courant. L'efficacité de  $T_{OOP}$  atteint environ 20 Oe pour les tensions appliquées, il serait donc d'assez forte amplitude pour les systèmes où la paroi est faiblement piégée.

Lors de l'analyse des spectres, nous avons sélectionné les échantillons pour lesquels les Modes 1 et 2 étaient le plus distinct possible. Cependant, ils sont probablement couplés et l'étude du Mode 2 est nécessaire afin d'obtenir une meilleure précision à la fois dans la mesure des couples de transfert de spin,

ainsi que dans l'étude de l'asymétrie de la fréquence de résonance en fonction du champ.

L'origine de l'asymétrie du couple hors-plan  $T_{OOP}$  est le sujet de nombreuses études et il serait important d'éclaircir les mécanismes en jeu afin de pouvoir contrôler sa dépendance en tension ainsi que son amplitude. Du point de vue applicatif, il serait ainsi possible d'augmenter l'efficacité du transfert de spin dans des cellules de type STT-MRAM en combinant les effets des couples *in-plan*  $T_{IP}$  et hors-plan  $T_{OOP}$ .

## 2.2 Déplacement de paroi en injection verticale

### 2.2.1 Déplacement de paroi par courant DC

#### 2.2.1.1 Echantillons étudiés

Nous avons caractérisé les couples de transfert de spin dans des jonctions tunnel asymétriques et nous avons vu que le couple hors-plan  $T_{OOP}$  change de signe avec la polarité du courant. Afin d'étudier son influence sur le déplacement de paroi en injection verticale, nous utilisons le même empilement magnétique que ceux étudiés par effet de spin-diode. Les piliers sont cette fois définis en forme d'arc de cercle par lithographie électronique.

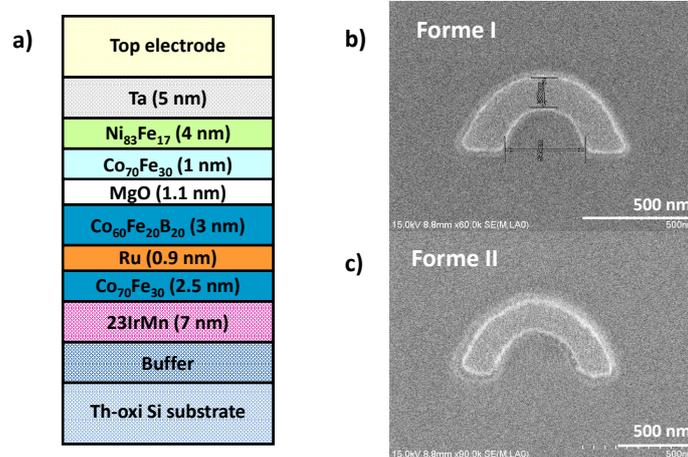


FIGURE 2.11 – a) Illustration de l'empilement magnétique tunnel. b) Image par microscopie électronique balayage de la jonction tunnel de forme I : vue de dessus avant dépôt de l'électrode supérieure. c) Idem pour la forme II plus petite.

Les échantillons ont été fabriqués selon deux tailles, les formes I et II de

120 nm et 210 nm de largeur, mais avec un rapport d'aspect identique (c.f. fig. 2.11b et c). La superficie des échantillons de forme I est de  $30.9 \times 10^{-14} \text{ m}^2$  et celle des échantillons de forme II est de  $11 \times 10^{-14} \text{ m}^2$ . La forme en arc de cercle permet de favoriser la création et la stabilisation d'une paroi proche des extrémités.

### 2.2.1.2 Courbes $R(H)$ à faible tension : création de la paroi

La convention d'angle utilisée est indiquée en fig. 2.12. Une mesure de résistance vs. champ magnétique  $R(H)$  avec champ appliqué à  $+90^\circ$  est présentée sur la fig. 2.13 pour un échantillon de la forme I. Les états parallèle et antiparallèle correspondent respectivement à  $\sim 12.2 \Omega$  et  $\sim 18.7 \Omega$ . Pour des champs  $|H| > 200 \text{ Oe}$ , l'aimantation dans la couche libre est uniforme.

En revenant à  $H = 0$  à partir des champs négatifs, la résistance commence à diminuer aux alentours de  $H = -200 \text{ Oe}$  pour éventuellement basculer vers la résistance de l'état parallèle pour  $H \approx 27 \text{ Oe}$ . La décroissance proche de  $H = 0$  est simplement due à la relaxation de l'aimantation qui passe d'un état uniforme, le long du champ appliqué, vers une distribution qui suit la forme de l'échantillon en raison de l'anisotropie de forme. Proche des champs coercitifs, vers  $H \approx -80 \text{ Oe}$  et  $H \approx 25 \text{ Oe}$  pour la forme I, on peut observer des plateaux dans la courbes  $R(H)$  2.13a. Ces niveaux de résistance proche des états parallèle et anti-parallèle correspondent à une paroi, nucléée au moment du retournement, qui se propage sur une courte distance avant d'être piégée proche d'une extrémité.

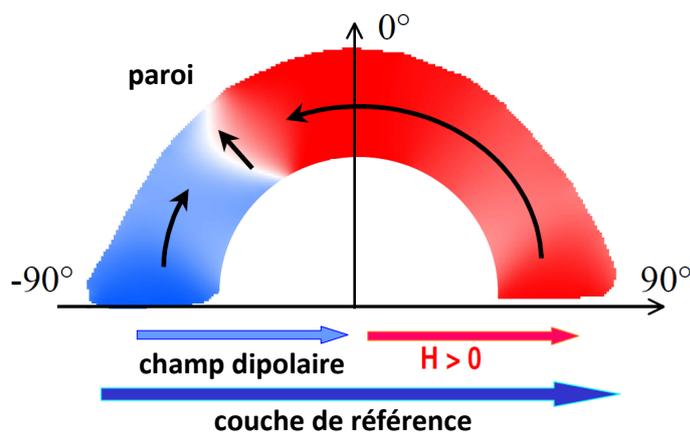


FIGURE 2.12 – Convention d'angle d'application de champ magnétique.

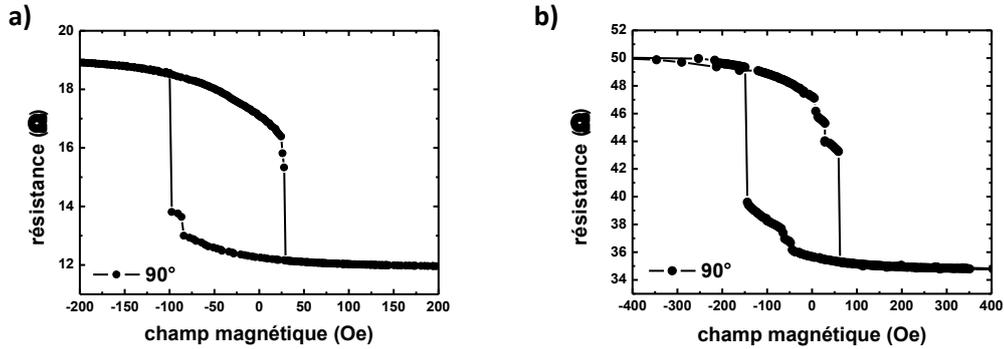


FIGURE 2.13 – Mesure  $R(H)$  pour un champ appliqué selon  $+90^\circ$  pour la forme I (a) et la forme II (b).

La mesure  $R(H)$  sur la forme II, c.f. figure 2.13b, montre aussi des états avec paroi proche des états parallèle et anti-parallèle. En raison du couplage effectif résultant des champs dipolaires non compensés issus de l'antiferromagnétique synthétique et du couplage de Néel, la configuration avec la paroi proche de l'état parallèle n'est pas stable à champ nul. Pour cette raison nous travaillons avec la configuration de paroi positionnée proche de l'état anti-parallèle. Le plateau correspondant à cet état magnétique n'est pas systématiquement reproductible en appliquant le champ à  $-90^\circ$ . Il faut alors appliquer le champ selon un angle inférieur, comme  $75^\circ$  ou  $85^\circ$ , afin d'élargir ces plateaux et permettre la création systématique d'une paroi stable à champ nul.

Par ailleurs, il faut prêter attention à l'angle utilisé pour le protocole de création de paroi. En effet, la figure 2.14 montre une mesure  $R(H)$  avec un champ appliqué selon  $80^\circ$ . A partir de l'état parallèle, pour  $H > 100$  Oe on constate que la résistance n'est pas commutée exactement vers le niveau de l'état antiparallèle. La configuration magnétique correspond en fait à une paroi à  $360^\circ$  qui s'est formée par nucléation et rapprochement de deux parois à  $180^\circ$  de polarité opposée. Cette paroi est très stable car elle est protégée topologiquement, et seul un fort champ, aidé de l'agitation thermique, permet de la dénouer ( $H \approx 600-700$  Oe sur la figure 2.14).

Une fois le protocole établi et la paroi préparée, le champ magnétique est coupé. Nous pouvons alors mesurer les champs de dépiégeage  $H_{dep}^\pm$ , comme le montre la fig. 2.15, en appliquant le champ selon  $90^\circ$  et en balayant successivement les champs positifs puis négatifs, la paroi étant réinitialisée entre chaque séquence. Les champs coercitifs mesurés,  $H_{dep}^+ = +26$  Oe et  $H_{dep}^- = -42$  Oe, traduisent un potentiel de piégeage asymétrique. Le dépiégeage de la paroi et son déplacement vers une configuration parallèle s'opère avec un

second piégeage vers l'autre extrémité. Ceci se traduit par le plateau dans la résistance mesurée à  $13.7 \Omega$ . Cet état magnétique proche de l'état parallèle n'est pas stable à champ nul.

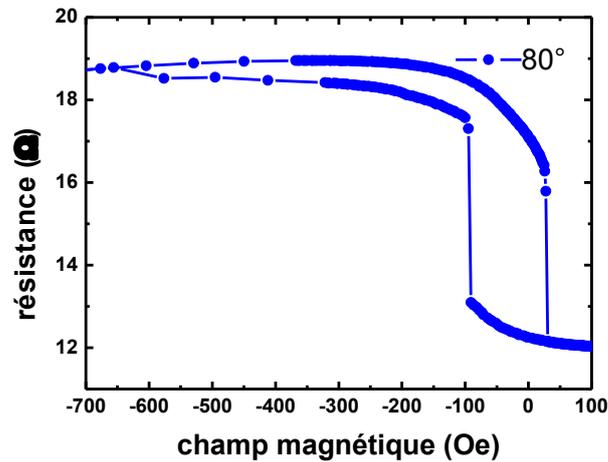


FIGURE 2.14 – Forme I : Mesure  $R(H)$  pour un champ appliqué selon  $+80^\circ$ .

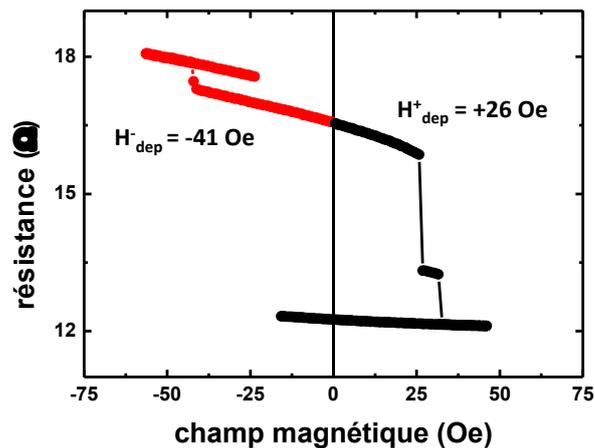


FIGURE 2.15 – Cycle de mesure de dépiégeage de la paroi pour la forme I. Une fois la paroi initialisée, un champ magnétique positivement (en noir) ou négativement (en rouge) croissant est appliqué.

De la même manière, nous avons mesuré les champs de dépiégeage de la paroi créée dans les échantillons de forme II. La figure 2.16) représente une mesure typique de champ coercitif. D'autres échantillons ont présenté des cycles plus complexes mais tous étaient dotés d'un état de paroi réversible à champ nul qui correspond à la transition douce vers le niveau de résistance compris entre  $H_{dep1}^+$  et  $H_{dep2}^+$  sur la figure 2.16).

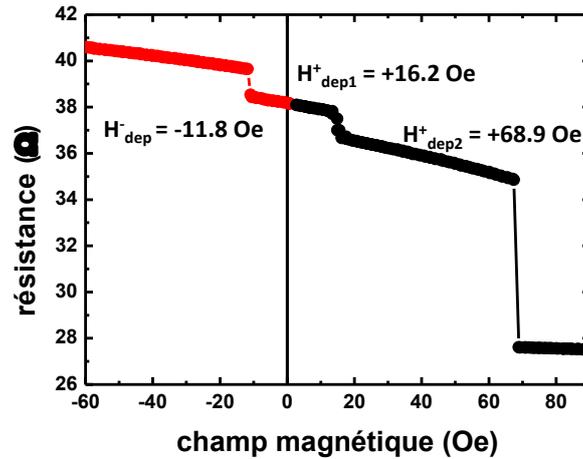


FIGURE 2.16 – Cycle de mesure de dépiégeage de la paroi pour la forme II. Une fois la paroi initialisée, un champ magnétique positivement (en noir) ou négativement (en rouge) croissant est appliqué.

Nous disposons maintenant d'un protocole d'initialisation reproductible de paroi et nous allons voir comment il est possible de la déplacer, dans un premier temps, à l'aide d'un courant DC afin d'évaluer l'efficacité du courant dans un régime quasistatique.

### 2.2.1.3 Mesure $R(I)$ : déplacement de la paroi

Après initialisation de la paroi, nous appliquons un champ magnétique fixe selon  $+90^\circ$ , compris entre  $H_{dep}^+$  et  $H_{dep}^-$ , par exemple -10 Oe sur la figure 2.17, qui correspond à un champ effectif total nul. En partant toujours de la même position initiale de la paroi (résistance de 16.6  $\Omega$ ), les courbes noir et rouge sont obtenues en mesurant la résistance en fonction du courant DC respectivement positivement et négativement croissant. La résistance diminue progressivement avec l'augmentation du courant et traduit la dépendance en tension attendue pour une jonction tunnel. Pour  $I_{dep}^+ = 7$  mA, la résistance

chute brusquement de manière irréversible. La paroi est dépiégée avant de se déplacer sous l'effet du courant positif vers une configuration plus parallèle. La résistance finale, mesurée à faible tension de lecture, est de  $16.1 \Omega$  et correspond à une autre position de paroi, stable à courant nul. En réinitialisant la paroi afin de partir de la même position initiale, un balayage des courants négatifs provoque un saut de résistance, pour  $I_{dep}^- = -11 \text{ mA}$ , vers un état plus résistif à  $17.3 \Omega$ .

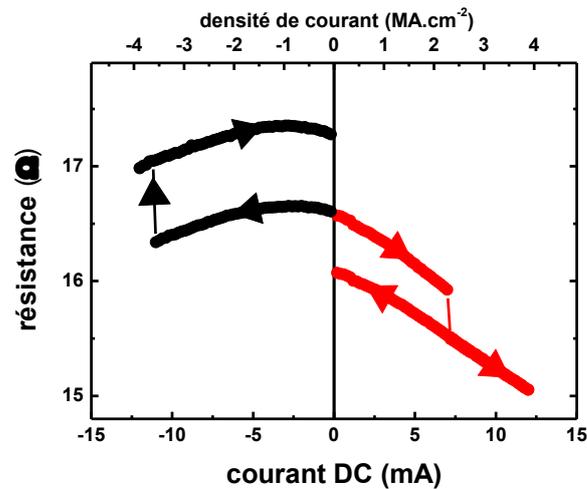


FIGURE 2.17 – Déplacement de paroi par injection de courant DC dans un échantillon de forme I. Chaque branche de la courbe est obtenue après réinitialisation de la paroi. Champ magnétique appliqué :  $-10 \text{ Oe}$

Ces résultats montrent que nous sommes capables de déplacer la paroi vers deux positions de part et d'autre de la position initiale. En modifiant les cycles de courant, il est possible de placer la paroi sur n'importe quelle des trois positions comme le montre la figure 2.18. Il faut cependant appliquer un faible champ magnétique pour rendre les trois positions accessibles par le courant. Le constat est le même pour les 3 autres échantillons de la même forme.

Des résultats similaires sont obtenus concernant les échantillons de forme II. Il est possible de déplacer la paroi entre deux positions, noté 1 et 2 sur la figure 2.19. Pour les courants positifs, la transition douce reflète la paroi qui se déplace de manière réversible vers une position qui n'est donc pas stable à champ nul. Cela correspond à la transition réversible observée sur le cycle mineur 2.16. De manière générale les mesures  $R(I)$  reproduisent exactement, à la dépendance en tension près, les mesures  $R(H)$ .

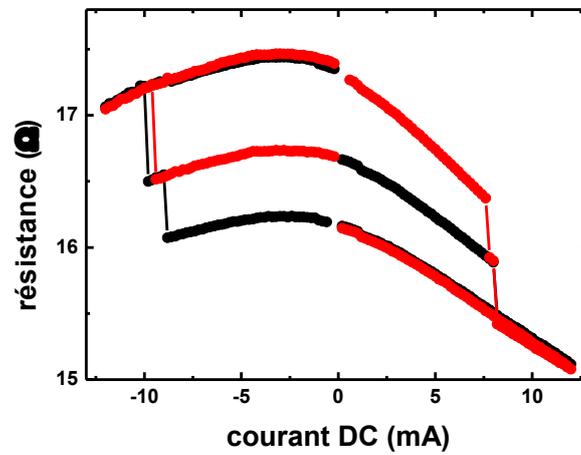


FIGURE 2.18 – Déplacement de paroi à travers trois positions d'équilibre. Sont en premier appliqués les courants négatifs pour la courbe rouge et les courants positifs pour la courbe noire. Champ appliqué : -10 Oe.

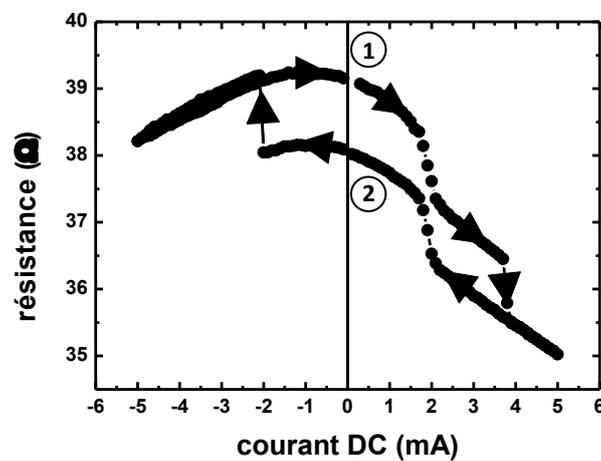


FIGURE 2.19 – Déplacement de paroi par injection de courant DC dans un échantillon de forme II. Champ magnétique appliqué : -3 Oe

Un des échantillons de forme I présentait une quatrième position accessible par l'effet du courant avec l'application d'un faible champ de +15 Oe. Cette

position supplémentaire n'est cependant pas assez stable et l'agitation thermique donne lieu à un déplacement stochastique de la paroi comme montré par la mesure  $R(I)$  2.20.

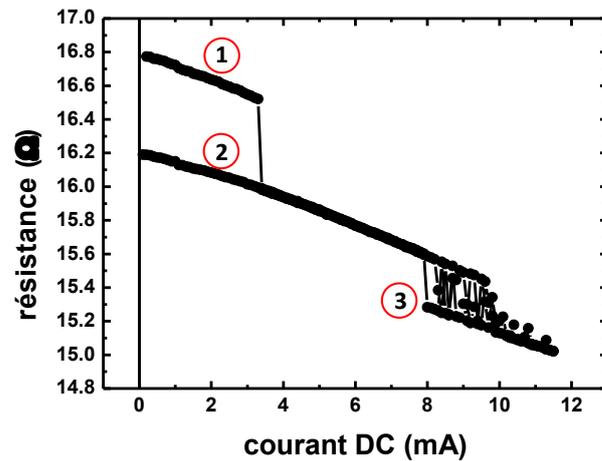


FIGURE 2.20 – Déplacement stochastique de paroi dans un échantillon de forme I. Champ appliqué : -15 Oe.

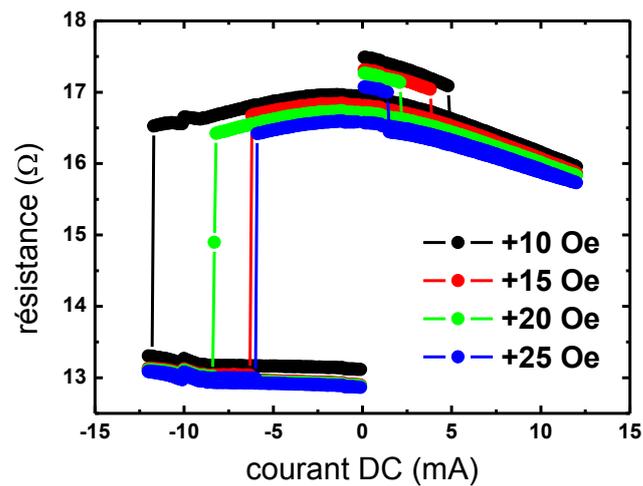


FIGURE 2.21 – Mesure  $R(I)$  en fonction de diverses valeurs de champ appliqué. La convention est telle qu'un courant négatif favorise l'état anti-parallèle.

Un échantillon a présenté un comportement inattendu comme l'illustre la figure 2.21. Les cycles présentés balayent d'abord les courant positifs pour lesquels la paroi se déplace vers une position stable de niveau de résistance inférieur. A partir de cet état, un courant négatif fait basculer la couche libre dans l'état parallèle, contrairement à ce qu'on attend de l'effet du couple hors-plan  $T_{OOP}$  sur la paroi.

Le changement de signe de ce couple pour les tensions élevées est exclu étant donné sa dépendance en fonction de la tension (c.f. figure 2.10). Étant donné que la jonction ne bascule ici vers l'état parallèle que pour un courant négatif, cela incite à croire qu'une paroi de même polarité se nucléée à l'autre extrémité aidé par le champ d'Oersted et, sous l'action du champ magnétique, qu'elle se propage pour finalement fusionner avec la paroi que nous avons initialement créée .

Ces résultats démontrent expérimentalement le déplacement bidirectionnel de paroi par transfert de spin avec injection de courant perpendiculaire. Les densités de courant critiques sont inférieures à  $4 \times 10^6$  A.cm<sup>-2</sup> (c.f figure 2.17). Ainsi, l'injection perpendiculaire a ainsi permis une réduction de deux ordres de grandeur des densités de courant critiques comparé au cas classique d'injection latérale CIP. Nous allons maintenant évaluer l'efficacité du courant sous la forme d'un champ équivalent.

#### 2.2.1.4 Efficacité du courant

**2.2.1.4.1 Influence de la température** Il est établi que le dépiégeage de paroi peut être assisté par l'effet de la température. Nous avons donc cherché à évaluer son impact pour les densités de courant injectés dans nos échantillons. Afin de découpler l'effet du transfert de spin et l'effet Joule, nous avons étudié le retournement *spin-flop* de l'antiferromagnétique synthétique. Ce dernier est peu affecté par le transfert de spin et l'interaction RKKY qui couple antiferromagnétiquement les deux couches dépend de la température.

L'application d'un champ anti-parallèle à la couche de référence aligne progressivement les aimantations des deux couches. Les deux couches deviennent parallèles pour un champ de saturation  $H_{sat}$  (c.f. figure 2.22) qui est fonction de la température suivant l'expression [Zhang 1994, Wiese 2007] :

$$H_{sat} = \frac{H_0 \frac{T}{T_0}}{\sinh \frac{T}{T_0}} \quad (2.5)$$

$$T_0 = \frac{\hbar v_f}{2\pi d_{ru} k_B} \quad (2.6)$$

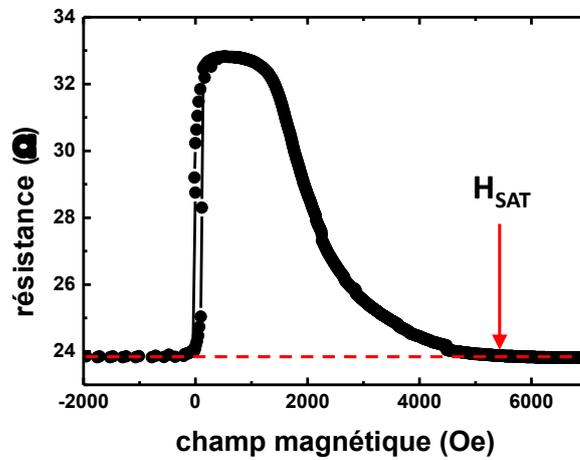


FIGURE 2.22 – Mesure résistance vs. champ magnétique. Pour un champ magnétique suffisant, l'état anti-parallèle devient parallèle.

Les mesures de ce champ de saturation entre 15 K et 275 K, présentées sur la figure 2.23, s'ajustent bien avec l'expression 2.6.

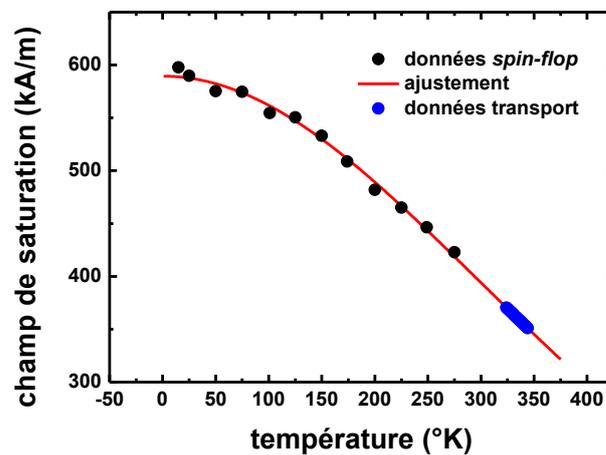


FIGURE 2.23 – Symboles noirs : champ de saturation vs. température . Courbe rouge : ajustement des données avec l'expression 2.6. Symboles bleus : champ de saturation à température ambiante pour la gamme expérimentale de courant DC reporté sur la courbe d'ajustement.

Nous avons aussi mesuré le champ de saturation à température ambiante et en fonction du courant DC appliqué (c.f. figure 2.24). Par extrapolation des données à basse température (c.f. figure 2.23) la hausse de température pour la gamme de courant employé est estimée à 20 K.

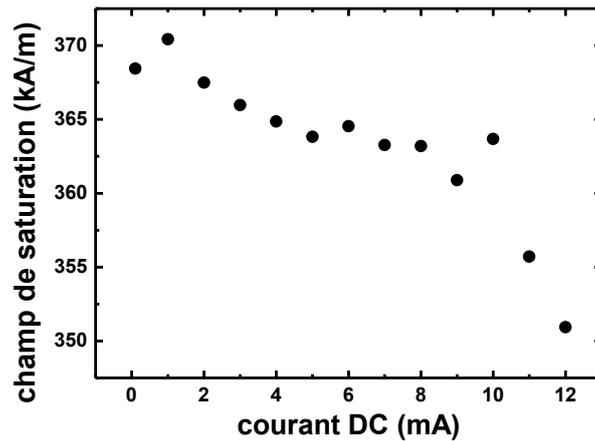


FIGURE 2.24 – Mesure du champ coercitif de dépiégeage de la paroi en fonction du courant DC à température ambiante.

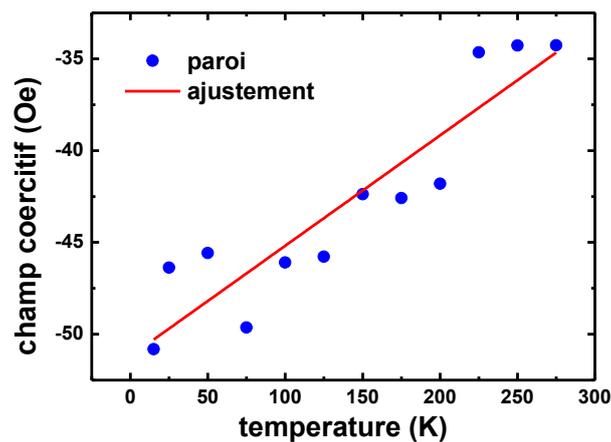


FIGURE 2.25 – Mesure du champ coercitif de dépiégeage de la paroi en fonction de la température (points bleus). Ajustement linéaire en courbe rouge.

L'extrapolation linéaire des mesures de champ de dépigeage de la paroi à faible courant ( $100 \mu\text{A}$ ) et en fonction de la température, permet d'estimer l'influence d'une hausse de 20 K à environ 1 Oe (c.f. figure 2.25). Nous pouvons donc considérer que l'effet Joule a une influence négligeable sur le dépigeage de la paroi.

**2.2.1.4.2 Champ équivalent** Nous avons répété l'expérience de déplacement de paroi pour des échantillons de forme I et II en faisant varier le champ magnétique appliqué entre  $H_{dep}^+$  et  $H_{dep}^-$  (c.f. figure 2.26). Nous présentons ici le détail des mesures sur la forme I car les échantillons de forme II produisent des résultats similaires. Les mesures  $R(I)$  montrent une résistance initiale qui change avec le champ appliqué. Les simulations micromagnétiques montrent que cela est causé par un déplacement/déformation de la paroi dans le puit de potentiel qui la piège. Les courants critiques de dépigeage dépendent fortement du champ appliqué.

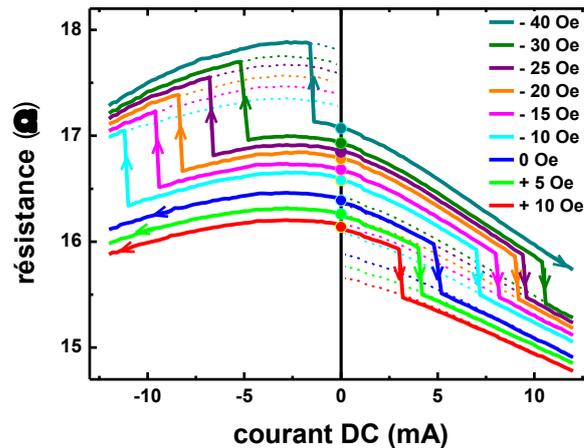


FIGURE 2.26 – Déplacement de paroi par injection de courant DC en fonction du champ appliqué.

Dans notre convention, les champs négatifs favorisent un déplacement de paroi vers une configuration antiparallèle, abaissant ainsi les valeurs de  $I_{dep}^-$  et augmentant donc celles de  $I_{dep}^+$ . De manière attendue, l'effet est inverse pour les champs positifs. En comparant ces expériences avec le déplacement de paroi induit par champ magnétique, nous pouvons définir un champ équivalent correspondant à l'action du courant : avec un champ magnétique appliqué  $H$ ,  $I_{dep}^\pm$  a l'efficacité d'un champ de  $H_{dep}^\pm - H$ . Nous pouvons ainsi reconstruire la

dépendance du champ équivalent en fonction de la densité de courant injecté, présentées en figure 2.27 pour deux échantillons de chaque forme. Un courant positif est équivalent à un champ appliqué selon la direction de l'aimantation de l'électrode libre et dans le sens opposé pour un courant négatif.

Le dépiégeage et le déplacement de la paroi induit par le courant a plusieurs origines : l'effet de transfert de spin ainsi que le champ d'Oersted, ce dernier ayant une distribution qui favorise le déplacement de la paroi. Selon de précédentes prédictions théoriques formulées au laboratoire [Khvalkovskiy 2009], en ce qui concerne le transfert de spin seul le couple hors-plan  $T_{OOP}$  a la symétrie adéquate pour induire un déplacement de paroi avec une vitesse fini sur des distances macroscopiques dans nos dispositifs.

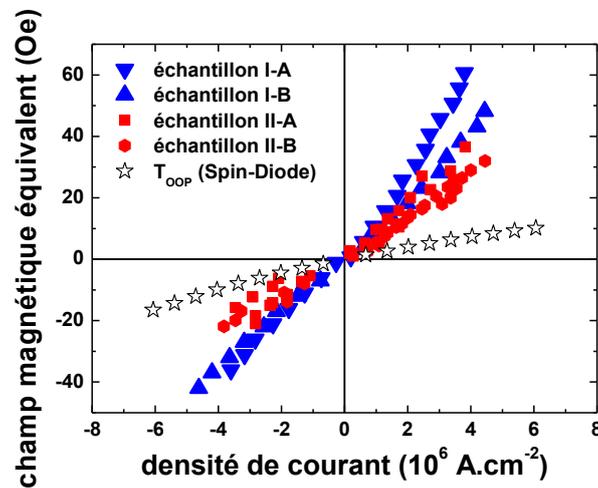


FIGURE 2.27 – Efficacité du courant sous la forme d'un champ équivalent.

La figure 2.27 compare directement l'amplitude du couple hors-plan, exprimé en unités de champ magnétique, obtenu par les expériences de spin-diode et le champ équivalent obtenu avec les mesures d'efficacité de déplacement de paroi. La même convention applicable dans les deux types d'expérience. Les échantillons I-A et I-B ont des dimensions correspondant à l'image M.E.B. de la figure 2.11b (210 nm de largeur), tandis que les échantillons II-A et II-B ont des dimensions correspondant à la figure 2.11c (120 nm de largeur). Pour les échantillons les plus larges I-A et I-B, le champ magnétique équivalent est clairement plus intense pour les densités de courant élevées. Dans tous les cas, le couple hors-plan seul ne peut expliquer l'efficacité du courant que nous obtenons. Afin d'interpréter ces résultats nous avons réalisé des simulations micromagnétiques.

### 2.2.1.5 Simulations micromagnétiques

Nous avons utilisé le logiciel Spin-PM<sup>©</sup> pour les simulations et nous avons suivi le même protocole que les expériences de déplacement de paroi. Chaque simulation introduit progressivement les couples de transfert de spin et le champ d'Oersted. Le maillage des structures simulées est pris de l'ordre de grandeur de la longueur d'échange. Cette dernière est définie par  $l_{ex} = \sqrt{2A/\mu_0 M_S^2}$ .  $A$  est la constante de raideur d'échange ( $1.3 \times 10^{-11}$  J.m<sup>-3</sup> pour le permalloy),  $\mu_0$  est la perméabilité du vide ( $4\pi \cdot 10^{-7}$  T.m.A<sup>-1</sup>) et  $M_S$  est l'aimantation à saturation ( $1000 \cdot 10^3$  A.m<sup>-1</sup> pour le permalloy avec une fine couche de CoFe). L'application numérique donne  $l_{ex} \approx 4.55$  nm et c'est pourquoi nous avons pris une taille de maillage de 5 nm pour toutes nos simulations. Le logiciel procède par différences finies et nous ne simulons ici que la couche libre seule. Les couples de transfert de spin sont pris en compte avec une dépendance linéaire en courant. Le couple dans le plan est donné par  $T_{IP} = -\gamma_0 a_J m \times (m \times m_{ref})$  avec  $a_J/J = \hbar P/\mu_0 2deM_S$ .  $\hbar$  est la constante de Planck réduite,  $P$  est la polarisation que nous avons fixé à 0.5,  $J$  est la densité de courant,  $d$  est l'épaisseur de la couche libre (5 nm dans notre cas),  $e$  est la charge élémentaire et  $M_S$  est l'aimantation à saturation ( $1000 \cdot 10^3$  A.m<sup>-1</sup>). L'application numérique donne  $a_J/J \approx 4.1 \cdot 10^{-6}$  Oe.A<sup>-1</sup>.cm<sup>2</sup>. Le couple hors-plan est défini par  $T_{OOP} = -\gamma_0 b_J m \times m_{ref}$  et il est considéré comme étant proportionnel au couple dans le plan avec un rapport constant  $b_J = 40\% a_J$ .

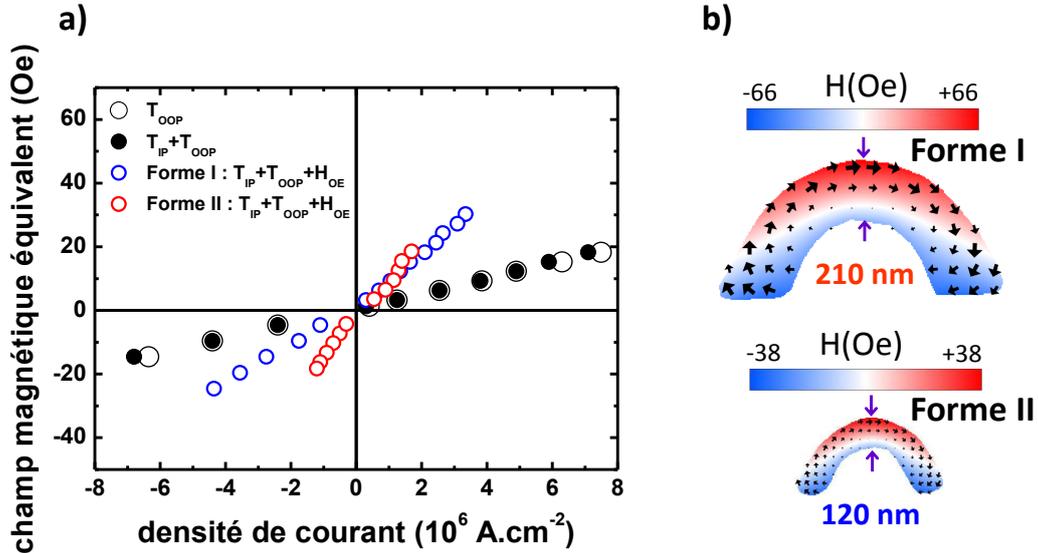


FIGURE 2.28 – Efficacité du courant évalué par simulation micromagnétique. Paramètres : polarisation  $P = 0.5$ ,  $M_s$  (CoFe, NiFe) = 1 T,  $T_{OOP} = 0.4T_{IP}$

L'orientation  $m_{ref}$  des spins des électrons est pris uniforme selon le grand axe de l'échantillon et ceci se justifie par l'intensité du couplage RKKY,  $-1 \text{ erg.cm}^{-2}$ , qui rend l'aimantation de la couche de référence uniforme. Les résultats de simulation sont présentés en figure 2.28a.

Tout d'abord, sans prendre en compte le champ d'Oersted, le champ équivalent est quasiment identique que l'on prenne en compte le couple  $T_{OOP}$  seul ou  $T_{OOP}$  et  $T_{IP}$  ensemble. Ce résultat est cohérent avec les précédentes prédictions quant au rôle négligeable du couple  $T_{IP}$  pour le déplacement de paroi transverse dans des matériaux à anisotropie planaire. Comme nous l'avons constaté, le couple  $T_{OOP}$  n'est toutefois pas suffisant pour expliquer l'efficacité du courant mesurée lors des expériences de déplacement de paroi. Nous avons donc inclus le champ d'Oersted dans les simulations et l'accord devient très bon comme le montre la figure 2.29.

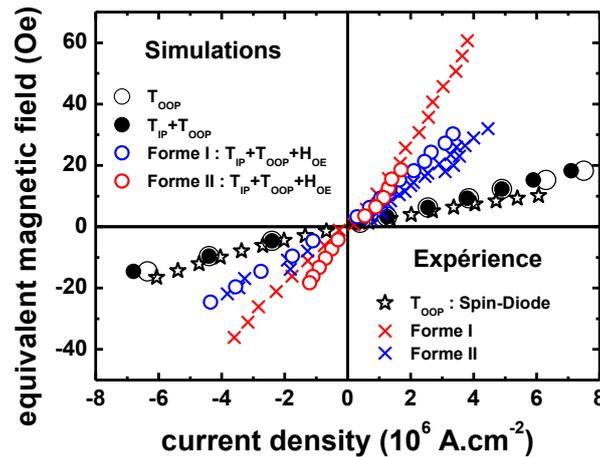


FIGURE 2.29 – Comparaison de l'efficacité du courant obtenue par simulation et mesurée.

Cela nous permet d'expliquer la meilleure efficacité du courant dans les échantillons les plus grands, le champ d'Oersted y étant plus intense en raison du courant plus élevé.

### 2.2.1.6 Discussion

Les résultats obtenus démontrent que la géométrie CPP apporte un gain de deux ordres de grandeur par rapport à la configuration CIP en ce qui concerne la densité de courant critique. L'évaluation de l'efficacité du courant et les si-

mulations micromagnétiques confirment que seul le couple hors-plan  $T_{OOP}$  est efficace dans nos structures à aimantation planaire et ce, malgré l'amplitude du couple dans-le-plan mesuré à près de 100 Oe dans les expériences de spin-diode.

Pour réduire les courants, il faudrait travailler avec des systèmes à aimantation perpendiculaire dans lesquels la largeur de paroi est bien plus faible, de l'ordre de quelques nanomètres, afin de pouvoir réduire les dimensions latérales des structures. Ainsi, toute chose égale par ailleurs, on peut espérer atteindre des courants inférieurs à  $100 \mu A$ . Pour un maximum d'efficacité, il faudrait se placer dans le cas d'une jonction avec les aimantations des couches libre et polarisatrice perpendiculaires entre elles. C'est alors le couple dans-le-plan  $T_{IP}$  qui devient efficace pour déplacer la paroi et ce dernier étant plus intense que le couple hors-plan, on s'attend à des densités de courant critique encore plus faible. Cependant comme nous l'avons déjà expliqué, les aimantations des deux couches étant perpendiculaires entre elles, il est impossible de détecter de manière résistive le déplacement de la paroi. Pour ce faire, il faudrait ajouter un élément magnétorésistif dont l'aimantation est parallèle à celle de la couche contenant la paroi.

En terme d'application, un dispositif comme le *racetrack memory* ne pourrait profiter des bénéfices de l'injection CPP car il verrait ses parois se déplacer en sens inverse, comme sous l'action d'un champ magnétique. D'autre part, le memristor spintronique à base de paroi ne sera obtenu que si la paroi peut occuper un spectre quasi-continu de positions entre les états parallèle et anti-parallèle, ceci pourrait être possible en jouant sur la forme de l'échantillon et en faisant de l'ingénierie de piégeage.

## 2.2.2 Déplacement de paroi par impulsion de tension

La configuration CPP nous a permis de déplacer une paroi magnétique de manière plus efficace qu'en CIP. Les densités de courant critiques sont en effet deux ordres de grandeur inférieures à la géométrie CIP. Les simulations micromagnétiques prédisent une vitesse importante sous l'action de ce fort champ équivalent [Khvalkovskiy 2009]. Afin d'explorer la dynamique de la paroi en géométrie CPP, nous allons donc mesurer résistivement le déplacement de la paroi en temps réel.

### 2.2.2.1 Échantillons étudiés

Les échantillons étudiés ici sont un peu différents des ceux utilisés pour les mesures de déplacement de paroi par courant DC. L'empilement magnétique repose toujours sur un antiferromagnétique synthétique mais l'antiferromagné-

tique naturel IrMn a été remplacé par du PtMn (c.f. figure 2.30a). La barrière tunnel est toujours MgO mais la couche mince de CoFe qui sert à augmenter la TMR a été supprimée. La couche libre de permalloy fait maintenant 5 nm d'épaisseur.

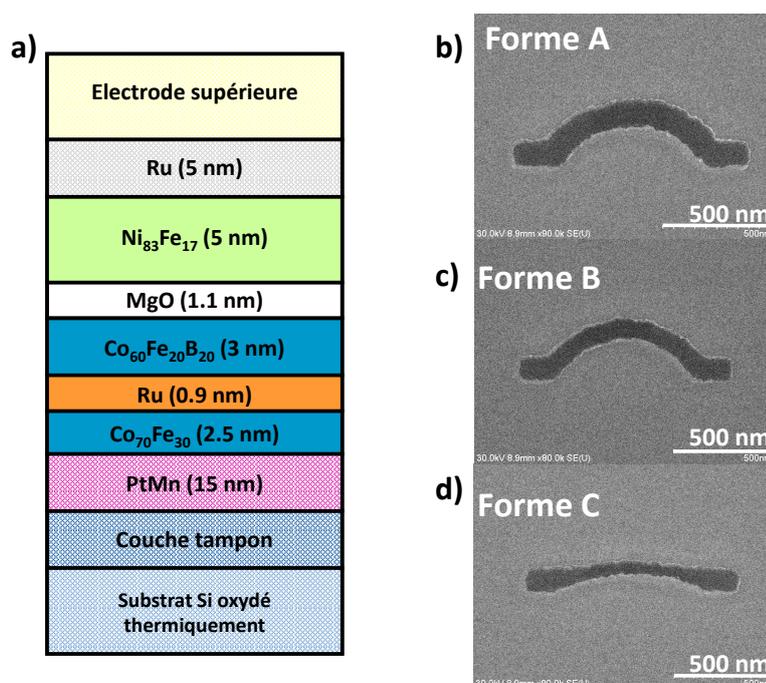


FIGURE 2.30 – a) Empilement magnétique tunnel utilisé. Formes des échantillons étudiées (b, c, d).

Le pillier est toujours en forme d'arc de cercle mais les extrémités ont été modifiées de manière à empêcher l'expulsion de la paroi. La surface totale des échantillons est d'environ  $15.6 \times 10^{-14} \text{ m}^2$  et elle est identique pour les trois formes étudiées (figure 2.30b, c et d). Ainsi, la largeur de la piste varie entre 70 nm et 120 nm tandis que la courbure change afin de conserver la même surface totale.

### 2.2.2.2 Courbes R vs. Angle : création de la paroi

Pour tous les échantillons de cette étude la procédure de création de paroi consiste à appliquer un champ magnétique transverse à la plus grande dimension afin de saturer l'aimantation de la couche libre. En relâchant le champ magnétique, l'aimantation se relaxe en suivant l'anisotropie de forme et une

paroi se forme naturellement au sommet de l'arc. Le type de paroi, head-to-head ou tail-to-tail, est ainsi contrôlé par la polarité du champ de saturant. Les simulations micromagnétiques montrent que la paroi peut se stabiliser dans la couche libre et se placer selon deux positions stables à chacune des extrémités, notés 1 et 2 sur la figure 2.31.

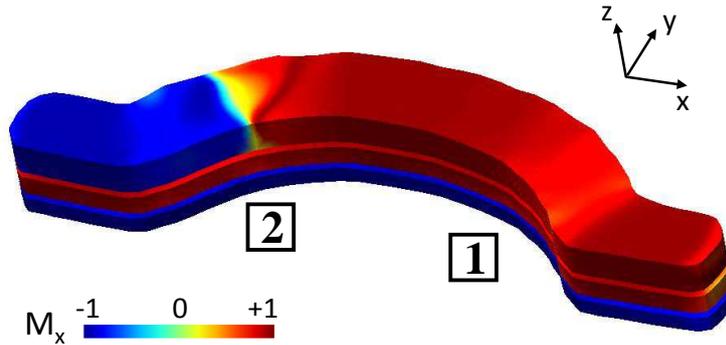


FIGURE 2.31 – Illustration issue de simulations micromagnétiques réalisée avec Spin-Flow 3D<sup>©</sup> montrant la paroi dans une des ses deux positions stables. (Echantillon de forme A)

En réalité, au sein du même lot d'échantillons lithographiés avec le même masque, les positions d'équilibre de la paroi peuvent être différentes comme le montre la figure 2.32 qui présente la résistance à champ nul après la procédure de création de paroi pour différents angle d'application de champ et de polarité du champ de saturation.

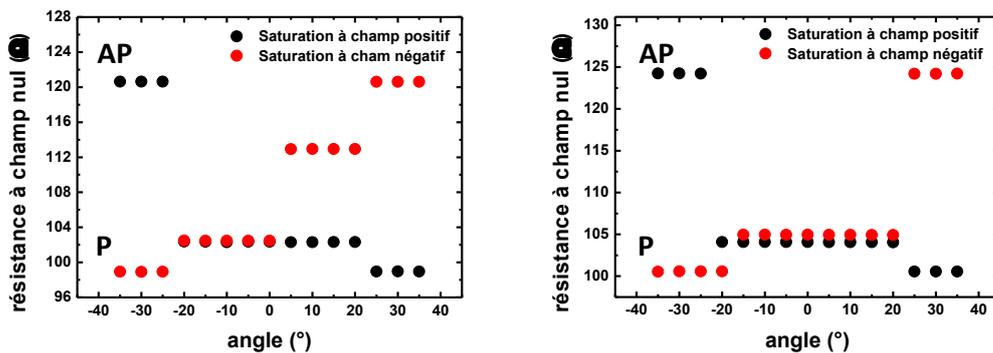


FIGURE 2.32 – Niveau de résistance, mesuré à champ nul, en fonction de l'angle de saturation (échantillon de forme A). La convention d'angle est celle employée pendant l'étude de déplacement de paroi par courant DC (figure 2.12)

La résistance est mesurée à faible courant et montre que la paroi se situe à différents pièges et illustre une fois de plus l'importance des défauts de matériaux et de la rugosité de bord. Cependant, les échantillons présentent typiquement deux positions d'équilibre à chacune des extrémités.

Une fois la paroi créée, il est possible de la déplacer d'une position à l'autre en appliquant un champ magnétique le long de l'axe x comme illustré sur la figure 2.33a. Il est aussi possible de déplacer la paroi à champ magnétique nul en appliquant des impulsions de tension comme indiqué sur la figure 2.33b. Nous montrons ainsi qu'il est possible de déplacer une paroi en géométrie CPP à l'aide d'impulsion de courte durée, impliquant ainsi de faibles énergies. Nous nous intéressons maintenant à la vitesse de déplacement de la paroi ainsi qu'au régime de dépiégeage.

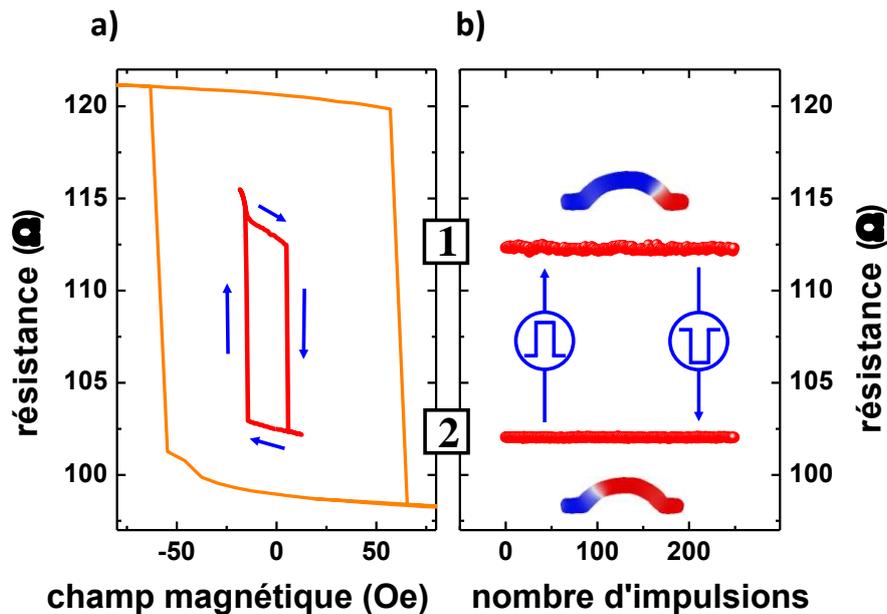


FIGURE 2.33 – a) En courbe orange, cycle mineur de mesure  $R(H)$  d'un échantillon de forme A en configuration d'aimantation uniforme. En courbe rouge, la couche libre contient une paroi qu'il est possible de déplacer entre les positions 1 et 2. b) Déplacement de la paroi entre les positions 1 et 2 par impulsion de tension. La durée des pulses est de 20 ns et la densité de courant injecté est d'environ  $7.3 \text{ MA.cm}^{-2}$

### 2.2.2.3 Mesure en temps réel

Un système électronique fonctionne dans le régime micro-ondes lorsque les fréquences des signaux correspondent à des longueurs d'onde comparables aux dimensions physiques du système. L'onde électromagnétique associée au signal se propageant ne peut alors plus être considérée comme uniforme le long de la ligne de transmission. Généralement, en régime micro-onde il est essentiel de concevoir un montage électronique avec une adaptation d'impédance de part en part afin de minimiser les pertes d'énergies par réflexion. L'impédance de nos jonctions tunnel est composée de la partie résistive, entre  $80 \Omega$  et  $150 \Omega$  pour les différentes formes d'échantillon, et de la contribution capacitive de la structure électrode supérieur/diélectrique ( $\text{SiO}_2$  ou  $\text{Si}_3\text{N}_4$ )/électrode inférieure. Cette capacité limite la bande passante de la mesure à environ 2 GHz. Les guides d'ondes et l'appareillage présentent généralement une impédance standard de  $50 \Omega$ , nos jonctions ne sont donc pas adaptées avec la chaîne de mesure et nous allons en tirer profit.

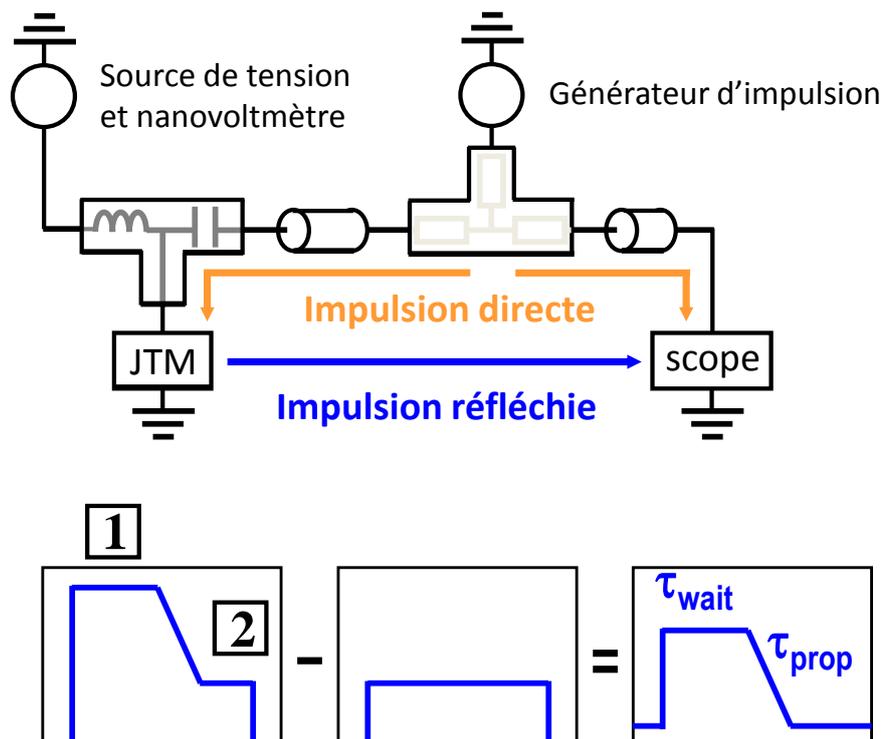


FIGURE 2.34 – Schéma du principe de mesure en réflexion. Un té de polarisation découple les parties DC et AC. Un diviseur de puissance résistif permet le raccordement d'un oscilloscope pour enregistrer le signal réfléchi.

La figure 2.34 illustre le schéma de principe de mesure en réflexion. La paroi est préparée dans une position stable initiale, ici la position 1 qui est de haute résistance. Une première impulsion de tension permet de déplacer la paroi vers la position 2 à l'autre extrémité.

A mesure que la paroi se déplace pendant l'impulsion, la résistance de la jonction décroît et l'onde réfléchie varie en amplitude. Cette première réflexion contient toute l'information concernant le dépiégeage et le déplacement de la paroi. Une seconde impulsion identique est envoyée mais cette fois la paroi ne bouge pas, car elle est piégée en bout de piste, et l'onde réfléchie de cette seconde impulsion constitue une référence que nous pouvons soustraire à la première impulsion réfléchie. Le signal résultant est une mesure épurée du déplacement de la paroi. Afin de vérifier la position de la paroi, la résistance est mesurée avant et après chaque action.

#### 2.2.2.4 Vitesse de paroi

La figure 2.35 montrent trois mesures en temps réel du déplacement de la paroi dans un échantillon de la forme A. L'impulsion de tension dure 20 ns et la densité de courant est d'environ  $4.2 \text{ MA.cm}^{-2}$ . L'impulsion commence à  $t = 0$ , le signal est donc nul pour  $t < 0$ . La paroi n'est pas instantanément mise en mouvement dès le début du pulse comme en témoignent les différents plateaux qui correspondent à des temps d'attente  $t_{wait}$  (indiqué pour la courbe bleue sur la figure 2.35).

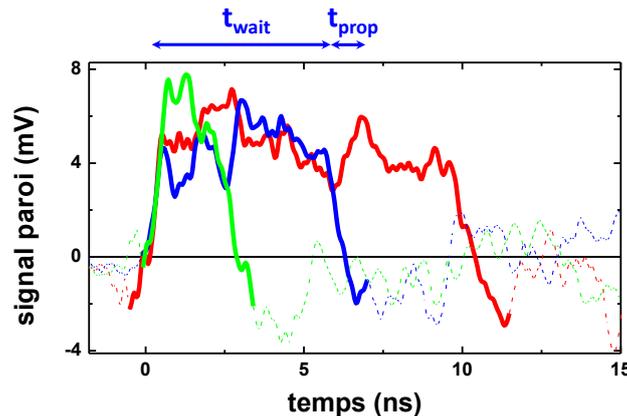


FIGURE 2.35 – Exemples de mesure en temps réel du déplacement de la paroi de la position 2 vers la position 1. Les trois traces sont des mesures indépendantes et réalisées dans les mêmes conditions. Un filtre moyennant a été appliqué afin de réduire le bruit.

Après ce temps d'incubation, le signal chute pour devenir nul lorsque la paroi atteint sa position finale. La durée du trajet de la paroi correspond à  $t_{prop}$  de sorte que le temps total de commutation pour passer de la position 2 vers 1 est  $t_{switch} = t_{wait} + t_{prop}$ . Pour les faibles densités de courant, le dépiégeage de la paroi est stochastique et cela se traduit par le temps d'attente  $t_{wait}$ . Dans ce régime, le temps de commutation  $t_{switch}$  est dominé par le temps d'attente tandis que le temps de propagation, identifiable sur la figure 2.35, est de l'ordre de la nanoseconde.

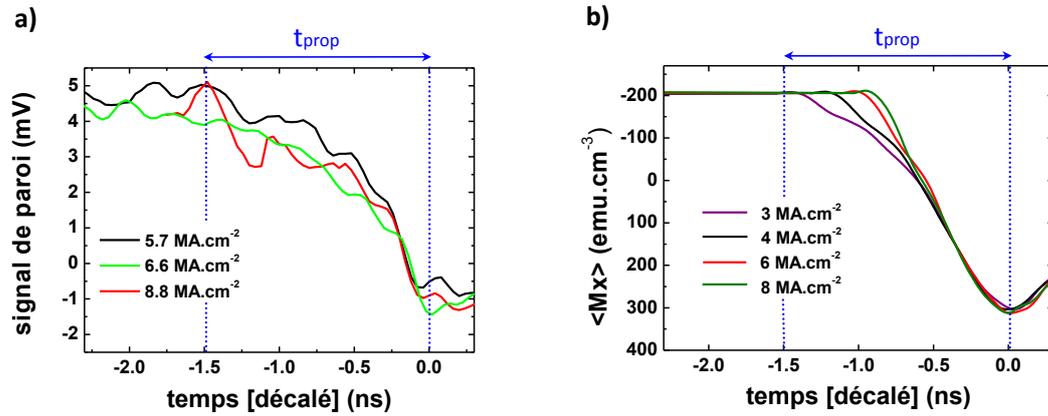


FIGURE 2.36 – a) Plusieurs traces décalées temporellement de  $t - t_{switch}$  puis moyennées. b) Simulation micromagnétique du déplacement de la paroi : Evolution de la composante longitudinale moyenne de l'aimantation. Les traces sont décalées de  $t - t_{switch}$ .

Afin de mieux rendre compte de la mesure de cette durée de trajet pour une densité de courant donnée, nous décalons temporellement une centaine de traces afin de faire coïncider le moment où le signal arrive à 0, i.e.  $t - t_{switch}$ . Le moyennage de ces traces artificiellement décalées réduit le bruit du signal et permet une meilleure visualisation du temps de propagation (c.f. figure 2.36a pour trois densités de courant).

Le temps de propagation ainsi mesuré est de  $\approx 1.5$  ns, ce qui correspond à une vitesse de  $\approx 400$  m.s $^{-1}$  [Metaxas 2013]. La figure 2.36b montre les résultats de simulations micromagnétiques. La composante totale moyenne de l'aimantation selon  $x$  est tracée en fonction du temps et comme pour les données expérimentales, les courbes sont toutes décalées temporellement. La composante de l'aimantation selon  $x$  reflète directement la résistance de la jonction et peut donc être comparée aux résultats expérimentaux. L'accord est bon et les simulations révèlent que la paroi peut même atteindre 600 m.s $^{-1}$ . Cependant les données expérimentales ne font pas ressortir de dépendance du

temps de propagation en fonction du courant car nous atteignons les limites de résolution temporelle de la chaîne de mesure.

### 2.2.2.5 Dépiégeage stochastique vs. déterministique : densité de courant critique

Afin de déterminer la densité de courant critique de passage d'un régime de dépiégeage stochastique vers un régime de dépiégeage déterministique, nous allons étudier des traces moyennées sur 200 mesures pour différentes densités de courant (c.f. figure 2.37a). Les mesures présentées concernent des échantillons de la forme A.

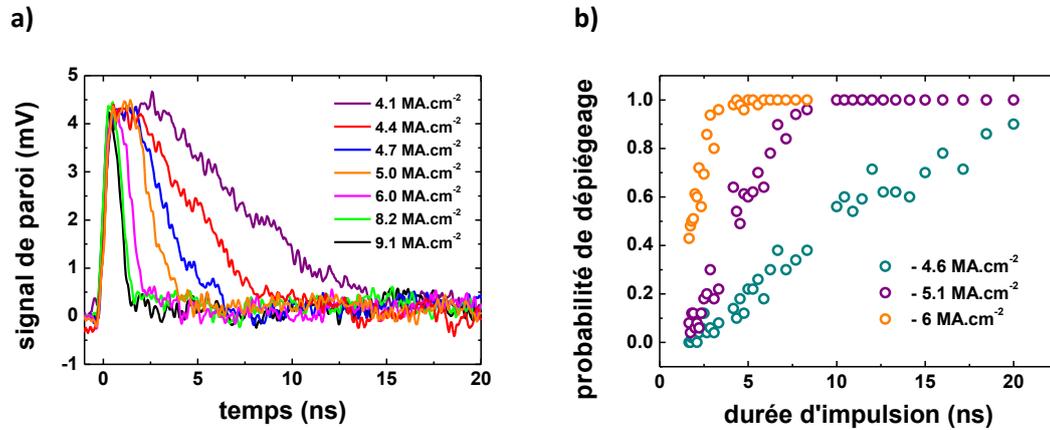


FIGURE 2.37 – Mesures sur un échantillon de forme A. a) Moyennes sur 200 traces du signal de déplacement de paroi pour diverses densités de courant. b) Probabilité de dépiégeage en fonction de la durée d'impulsion présentée pour trois densités de courant.

Les traces ne sont pas temporellement décalées comme pour les figures 2.36a et b, c'est pourquoi elles sondent entièrement le processus de dépiégeage, qu'il soit stochastique ou déterministique. Pour les faibles densités de courant, par exemple 4.1 MA.cm<sup>-2</sup> en courbe violet sur la figure 2.37a, pendant le plateau en moyenne la paroi ne bouge pas. Ensuite, le signal commence à diminuer selon une faible pente qui résulte du mélange entre la large dispersion sur la durée des temps d'attente et la décroissance du signal propre à la propagation de la paroi. A mesure qu'on augmente la densité de courant, le signal décroît vers  $V = 0$  plus rapidement et le temps d'attente est plus court et moins dispersé, ce qui se traduit par la réduction de la largeur du plateau. Pour  $J > 6 \text{ MA.cm}^{-2}$ , la mesure ne décèle plus de temps d'attente et le déplacement de la paroi est alors déterministique avec  $t_{switch} = t_{prop}$ .

Dans un deuxième temps, nous avons mené une étude classique de la probabilité de dépiégeage comme l'illustre la figure 2.37b pour trois densités de courant différentes. Comme attendu, pour une durée d'impulsion donnée, l'augmentation de la densité de courant induit une augmentation de la probabilité de dépiégeage.

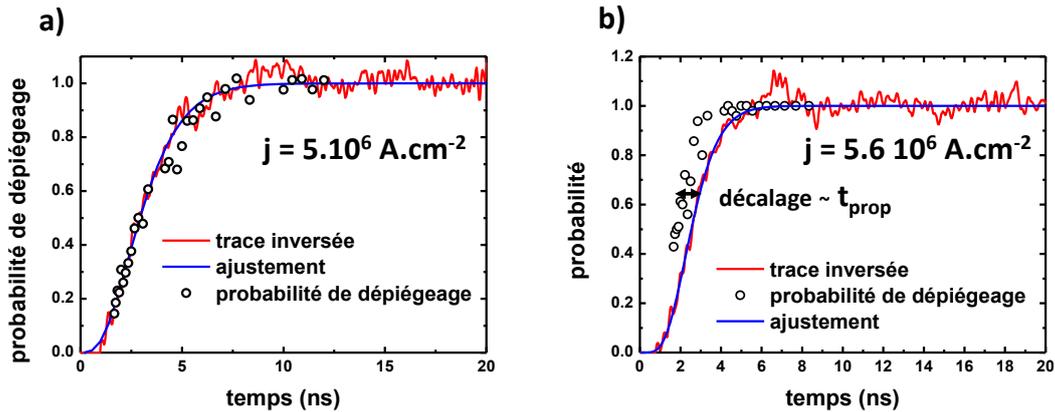


FIGURE 2.38 – a) Comparaison entre probabilité de dépiégeage et trace inversée. L’ajustement est effectué avec la fonction de distribution de loi Gamma. b) Comparaison entre probabilité de dépiégeage et trace inversée. L’ajustement est effectué avec la fonction de distribution de loi Gamma. Le décalage entre les deux jeux de données correspond au temps de propagation.

Si on suppose qu’une fois dépiégée la paroi se déplace nécessairement vers sa destination finale, nous sommes en mesure de comparer les traces moyennées avec les mesures de probabilité de dépiégeage en normalisant et inversant les traces d’oscilloscope. L’accord est excellent pour les faibles densités de courant comme l’illustre l’exemple en figure 2.38a. Pour les densités de courant plus élevées, le signal des traces augmente moins vite que les données issues des probabilités de dépiégeage comme le montre la figure 2.39. Ceci peut être expliqué par le fait que les traces d’oscilloscope mesurent à la fois le temps d’attente et le temps de propagation tandis que les expériences de probabilité de dépiégeage ne mesurent que le temps d’attente. Pour les faibles densités de courant,  $t_{wait} \gg t_{prop}$  et par conséquent les deux types de données reflètent principalement l’information sur le temps d’attente, d’où leur bon accord. Avec les densités de courant croissantes, le temps d’attente devient comparable au temps de propagation ce qui explique le décalage entre les deux types de données qui est de l’ordre de grandeur du temps de propagation  $t_{prop}$ .

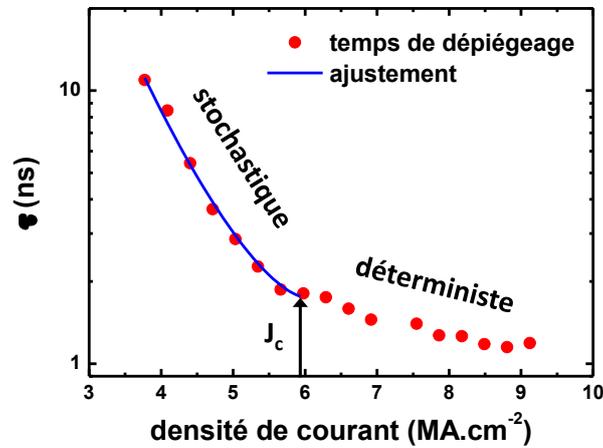


FIGURE 2.39 – Le temps moyen de dépiégeage issu des ajustements est tracé en fonction de la densité de courant.

Nous avons extrait le temps moyen de commutation  $\tau$  en ajustant les traces inversées à l'aide de la fonction de répartition de la loi Gamma. Ce modèle statistique rend compte de processus avec temps d'attente et convient donc à notre étude. D'autre part, il permet d'ajuster les traces aussi bien dans le régime stochastique que dans le régime déterministique dans lequel le signal ne présente pas de temps d'attente et varie donc très vite. Les valeurs de  $\tau$  extraites par ajustement sont tracées en fonction de la densité de courant sur la figure 2.38b.

Les temps d'incubation avant commutation ont déjà été rapportés dans le cas de retournement d'aimantation uniforme par transfert de spin et ce même en régime sur-critique. Ils sont dus à l'angle nul modulo  $\pi$  décrit par l'aimantation du polariseur et celle de l'électrode libre. Par conséquent le couple de transfert de spin devient non nul grâce à l'agitation thermique, d'où un temps d'incubation variable. Dans notre cas, l'aimantation locale dans la paroi forme toujours un angle non nul avec l'aimantation du polariseur de sorte que le couple de transfert de spin n'est jamais négligeable. Cela explique l'absence de temps d'incubation en régime sur-critique. En revanche, en régime sous-critique le temps d'attente indique que le processus de dépiégeage est thermiquement activé. La dépendance de  $\tau$  en fonction de la densité de courant peut être interprétée en considérant la transition d'un régime stochastique vers un régime déterministique. En dynamique thermiquement activée, le temps

caractéristique peut s'écrire comme :

$$\tau \propto \exp(E_B/k_B T) \quad (2.7)$$

Avec la barrière d'énergie s'exprimant comme :

$$E_B \propto (1 - H_J / H_{dep|T=0})^{3/2} \quad (2.8)$$

$H_J$  est le champ équivalent correspondant à l'efficacité combinée du transfert de spin  $H_{STT}$  et du champ d'Oersted  $H_{Oe}$ .  $H_{dep|T=0}$  représente le champ de dépiégeage à température nulle. Nous pouvons donc identifier deux régimes sur le tracé de  $\tau$  versus  $J$  en figure 2.39. Pour le régime sous-critique,  $J < J_c$ , la paroi surmonte la barrière d'énergie  $E_B$  avec l'aide des fluctuations thermiques et cela résulte en une distribution des temps d'attente en raison de la stochasticité du processus. Dans ce régime, la courbe s'ajuste très bien à l'aide des équations 2.7 et 2.8. La densité de courant critique ainsi évaluée est d'environ  $J_c \approx 5.9 \text{ MA.cm}^{-2}$ . A la transition vers le régime sur-critique,  $J = J_c$  et  $H_J = H_{dep|T=0}$ , la paroi possède assez d'énergie pour franchir la barrière d'énergie de manière déterministe sans temps d'attente mesurable. Enfin, en régime sur-critique  $J > J_c$  et  $\tau$  continue de décroître avec les  $J$  croissants ce qui indique un temps de propagation  $\bar{t}_{prop}$  plus bref ainsi qu'une sortie du potentiel de piégeage plus rapide.

### 2.2.2.6 Efficacité de transfert de spin

Il est possible d'extraire l'efficacité du couple hors-plan  $T_{OOP}$  de transfert de spin à partir du modèle thermiquement activé en considérant comme précédemment  $H_J = H_{STT} + H_{Oe}$ . Nous avons calculer le champ d'Oersted avec Spin-Flow 3D<sup>©</sup> en prenant en compte la géométrie réelle des électrodes. La distribution obtenue est illustré par la figure 2.40a.

Alors que le champ d'Oersted s'avère assez important dans les extrêmités et sur les bords de l'échantillons ( $\approx 60 \text{ Oe}$ ), il est relativement faible dans la région où la paroi se propage ( $\approx 10 \text{ Oe}$ ). La répartition non uniforme du champ oblige à réaliser des simulations micromagnétiques sous OOMMF<sup>©</sup> incluant ce champ réaliste afin d'évaluer son influence en régime dynamique.

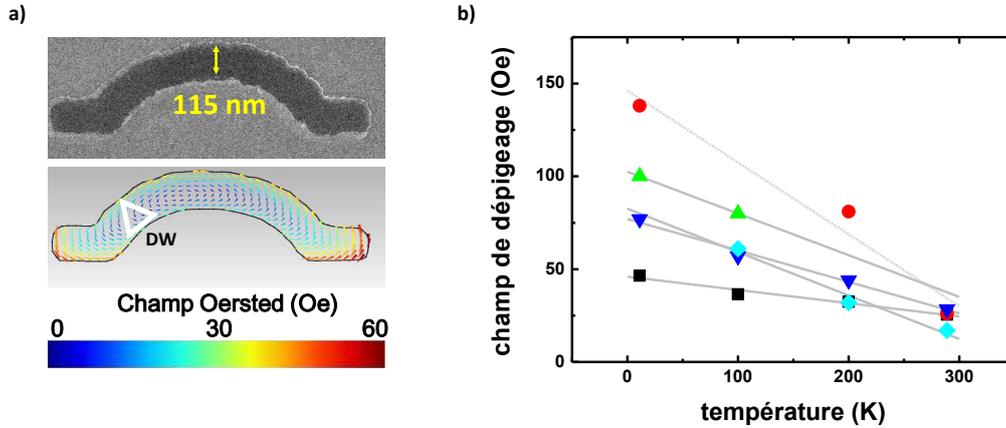


FIGURE 2.40 – a) Calcul du champ d'Oersted avec Spin-Flow 3D<sup>©</sup> dans la structure réaliste, électrodes incluses. b) Evolution des champs de dépiégeage en fonction de la température pour divers échantillons de forme A.

Nous en avons conclu qu'il a pour effet d'aider au dépiégeage et à la propagation de la paroi avec une efficacité de  $\approx 1.12 \text{ Oe.MA}^{-1}.\text{cm}^2$ . Ainsi, pour la densité de courant critique le champ d'Oersted a une efficacité de  $H_{Oe} = 6.6 \text{ Oe}$ . Le champ de dépiégeage à température nulle peut être extrapolé à partir de mesures de dépiégeage à basse température (présentées sur la figure 2.40b). Bien que les barres d'erreur soient relativement larges, la limite basse du champ de dépiégeage,  $H_{dep}|_{T=0} \approx 27 \text{ Oe}$ , correspond à une efficacité du transfert de spin de  $H_{STT} \approx 20.3 \text{ Oe}$  comparable à notre étude par effet de spin-diode.

### 2.2.2.7 Discussion

Nous avons démontré dans le chapitre précédent qu'il était possible de déplacer une paroi par injection perpendiculaire avec des densités de courant de l'ordre de  $4 \text{ MA.cm}^{-2}$ . Dans ce chapitre nous avons mesuré des vitesses de déplacement proche de  $600 \text{ m.s}^{-1}$  mettant ainsi en évidence un gain d'un facteur 4 comparé aux expériences de déplacement de paroi en injection CIP.

Les résultats présentés concernent exclusivement la forme A d'échantillon. L'étude préliminaire des forme B et C reproduit le même type de données moyennées que pour la forme A (c.f. figure 2.41 pour la forme B et 2.42 pour la forme C).

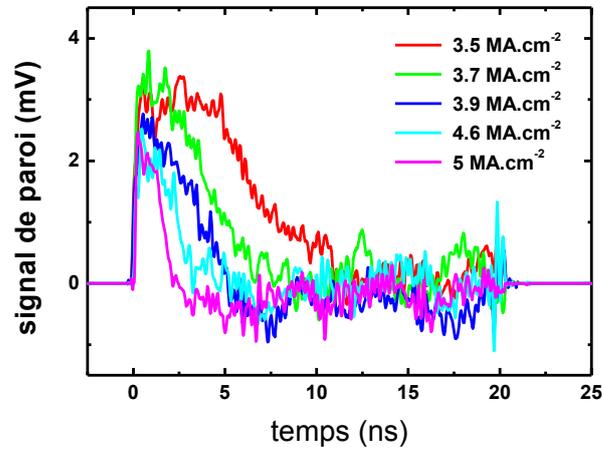


FIGURE 2.41 – Echantillon de forme B : moyennes sur 200 traces du signal de déplacement de paroi pour diverses densités de courant.

Les mesures sur la forme C présentent un pic parasite en début de signal est *a priori* un artefact de mesure. Son origine est à déterminer.

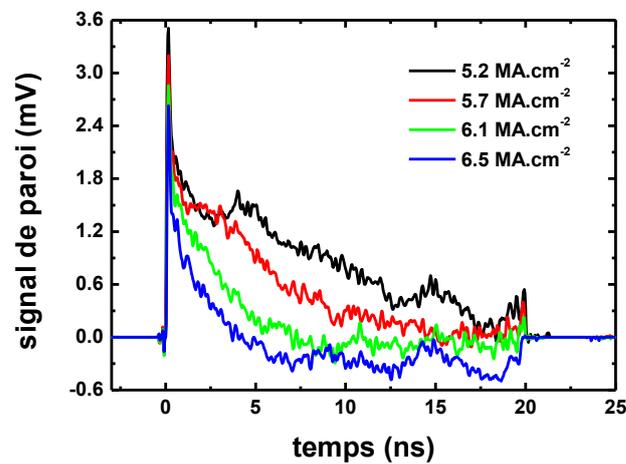


FIGURE 2.42 – Echantillon de forme C : moyennes sur 200 traces du signal de déplacement de paroi pour diverses densités de courant.

La vitesse maximale mesurée est limitée par la bande passante de l'oscilloscope et par la capacité intrinsèque de la jonction (isolant SiO<sub>2</sub> qui coupe à

2 GHz), il serait intéressant de sonder les temps de propagations inférieurs à la nanoseconde avec la chaîne de mesure adéquate et d'autres jonctions avec  $\text{Si}_3\text{N}_4$ . L'étude systématique des différentes formes d'échantillon, i.e. différentes largeurs, permettrait aussi de mesurer la vitesse de la paroi en fonction de sa taille.

Les échantillons de forme A, B et C laissent place à d'ample déplacements de paroi. On pourrait étudier les modes d'excitation de la paroi notamment par effet spin-diode. Il serait ainsi possible d'en extraire une mesure de l'amortissement de la paroi qui détermine beaucoup de ses propriétés dynamiques.

Deuxième partie

Memristor ferroélectrique

# Etat de l'art

---

La ferroélectricité et le ferromagnétisme présentent de nombreuses similitudes alors que leurs descriptions microscopiques sont bien différentes. Ces similitudes ont inspiré les deux concepts de memristor étudiés pendant cette thèse qui reposent sur l'exploitation de la configuration en domaines des matériaux ferromagnétiques et ferroélectriques. Dans ce chapitre, nous présenterons les propriétés des oxydes ferroélectriques de structure pérovskites et nous verrons quelques techniques standards de caractérisation. Nous aborderons brièvement les principales approches théoriques de la ferroélectricité, puis nous étudierons la dynamique de retournement de la polarisation. Nous décrirons les problématiques associées à la ferroélectricité en couche ultra-mince et nous verrons enfin l'influence de la polarisation électrique sur les propriétés de transport d'un jonction tunnel ferroélectrique.

## 1.1 Ferroélectricité : notions de base

### 1.1.1 Définition

Un matériau est dit ferroélectrique lorsqu'il présente une polarisation électrique spontanée et que cette dernière est commutable sous l'action d'un champ électrique, c.f. figure 1.1. De la même manière que pour un matériau ferromagnétique, l'ordre ferroélectrique est dépendant de la température de sorte qu'au-delà de la température de Curie, le matériau est paraélectrique et en-dessous, il est ferroélectrique. Dans sa phase ordonnée, le matériau ferroélectrique présente un cycle hystérétique de mesure de polarisation vs. champ électrique (figure 1.1). Ces analogies avec le ferromagnétisme ont d'ailleurs donné son nom au phénomène de *ferroélectricité*. Ces ordres ferroélectrique et ferromagnétique sont parfois simultanément présents dans certains matériaux dit multiferroïques (e.g.  $\text{BiFeO}_3$  est ferroélectrique et antiferromagnétique).

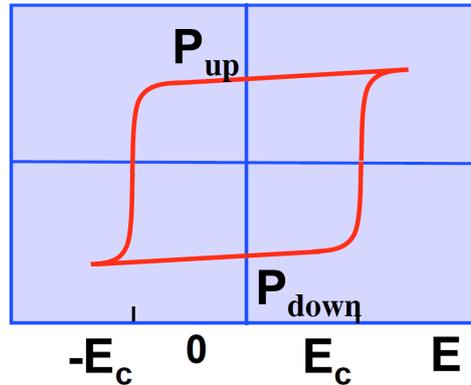


FIGURE 1.1 – Schéma d'une mesure hystérétique typique de polarisation vs. champ électrique. A la rémanence, deux états de polarisation sont stables.

### 1.1.2 Structure cristalline et ferroélectricité

Un matériau ferroélectrique, qu'il soit organique ou inorganique, possède nécessairement une structure cristalline (ou polycristalline), i.e. non amorphe, avec une maille non centrosymétrique. Il est aussi piézoélectrique et cette propriété est particulièrement utile pour des applications (sonar échographique, microphone, projecteur, imprimante, etc.) mais aussi pour sonder l'état de polarisation (microscopie à force piézoélectrique). Parmi les matériaux oxydes ferroélectriques figurent de nombreuses pérovskites ( $\text{BaTiO}_3$ ,  $\text{SrTiO}_3$ ,  $\text{KNbO}_3$ ,  $\text{PbTiO}_3$ , etc.). La structure pérovskite est de formule générale  $\text{ABX}_3$ , A et B étant des cations et X un anion. Les oxydes de formule  $\text{ABO}_3$  adoptent fréquemment cette structure pérovskite. Le cation A se situe aux sommets de la maille  $(0, 0, 0)$ , le cation B se situe au centre de la maille  $(1/2, 1/2, 1/2)$  et les oxygènes sont aux centres des faces  $(1/2, 1/2, 0)$ .

### 1.1.3 Un ferroélectrique modèle : $\text{BaTiO}_3$

Le titanate de baryum  $\text{BaTiO}_3$  (BTO) est un matériau ferroélectrique dont le monocristal présente une maille tétragonale dans les conditions normales de température et pression et sa polarisation pointe alors selon la direction  $[001]$ . Le BTO est un oxyde de structure pérovskite, l'atome Ba se situe donc aux coins  $(0, 0, 0)$ , l'atome Ti au centre du cube  $(1/2, 1/2, 1/2)$  et les oxygènes se situent aux milieux des faces du cube  $(1/2, 1/2, 0)$ .

Dans la phase paraélectrique de maille cubique, le titane réside au centre de l'octaèdre d'oxygènes (figure 1.2a). Lors de la transition vers la phase ferroélectrique, les sous-réseau d'oxygène et de titane se déplacent en sens

inverse. La maille devient tétragonale et la polarisation électrique apparaît. Dans sa phase tétragonale, les deux variantes de polarisation correspondent aux deux positions d'équilibre du titane comme illustré sur les figures 1.2b et c.

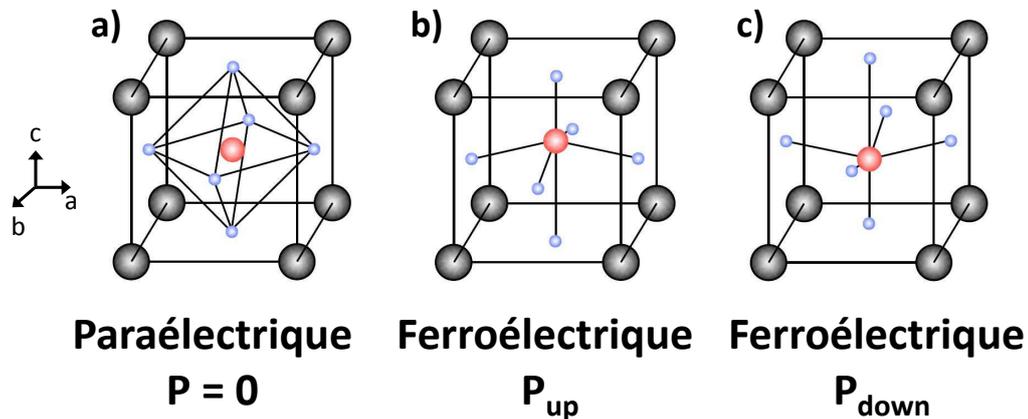


FIGURE 1.2 – En noir le cation A, en rouge le cation B et en bleu les oxygènes. a) Phase paraélectrique avec une maille cubique. b) Phase ferroélectrique : polarisation *up*. c) Phase ferroélectrique : polarisation *down*

## 1.1.4 Aperçus des théories de la ferroélectricité

### 1.1.4.1 Théorie de Landau

A l'origine, la théorie de Landau de transition de phase a été formulée de manière très générale, s'appliquant donc à de nombreux cas comme les transitions supraconductrice, superfluide ou ferromagnétique. Par la suite, Devonshire a formulé l'application de la théorie de Landau aux matériaux ferroélectriques dans le cas *bulk* avec polarisation uniforme (modèle de Landau-Devonshire). Levanyuk et Ginzburg ont élargi le modèle aux cas des films minces avec gradient de polarisation et effets de taille dûs aux conditions aux limites (modèle de Landau-Ginzburg).

Au dessus de la température de transition, le matériau présente une maille de haute symétrie. Lors de la transition de phase, la symétrie du système est abaissée et un ordre apparaît. Landau a exprimé l'énergie du système sous la forme d'un développement polynomial en fonction du paramètre d'ordre. Dans le cas de la ferroélectricité, la symétrie du système est abaissée par brisure de symétrie spatiale, i.e. structure non centrosymétrique, et la polarisation électrique est le paramètre d'ordre. Tronquée au 6ème ordre, à champ appliqué

E nul et à température constante, l'énergie s'exprime comme :

$$F(P) = \frac{1}{2}aP^2 + \frac{1}{4}bP^4 + \frac{1}{6}cP^6 \quad (1.1)$$

Les termes sont uniquement de puissance paire car l'expression reflète la symétrie de l'Hamiltonien qui n'est pas modifié pour une inversion de la polarisation  $P = -P$ . A l'équilibre thermodynamique, l'approximation de champ moyen amène à l'expression :

$$a = a_0(T - T_0) \quad (1.2)$$

$T_0$  n'est pas nécessairement égale à la température de Curie  $T_c$ . Les constantes  $a_0$  et  $c$  sont toujours positives tandis que  $b$  est positif pour les ferroélectriques à transition de second ordre et négatif pour ceux à transition du premier ordre. Comme illustré sur la figure 1.3, si  $b$  est positif l'énergie présente un double puits caractéristique de la ferroélectricité seulement si  $T < T_0 = T_c$ , c'est à dire lorsque  $a < 0$ .

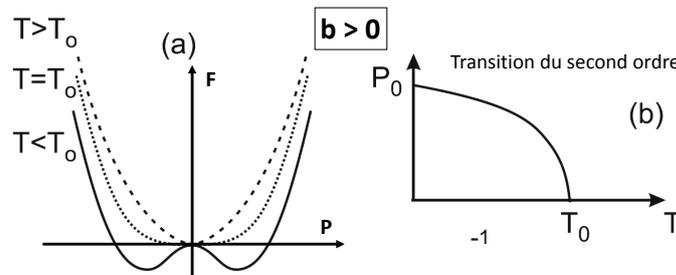


FIGURE 1.3 – a) Energie vs. polarisation en fonction de la température pour  $b > 0$ . b) Evolution de la polarisation spontanée en fonction de la température.

Si  $b$  est négatif, le matériau reste ferroélectrique lorsque  $T = T_0$  car la température de Curie  $T_c$  est nécessairement supérieure à  $T_0$ . Lorsque  $T = T_c$ , le profil énergétique présente trois minima comme illustré sur la figure 1.4.

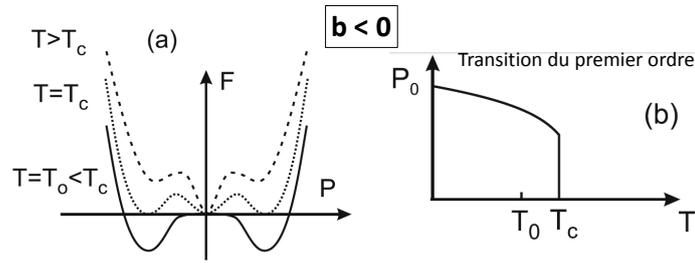


FIGURE 1.4 – a) Energie vs. polarisation en fonction de la température pour  $b < 0$ . b) Evolution de la polarisation spontanée en fonction de la température.

**1.1.4.1.1 Types de ferroélectricité** Dans le cas du BTO tétragonal, nous avons vu que la polarisation spontanée apparaît avec le déplacement polaire des sous-réseaux. La transition paraélectrique-ferroélectrique associée est dite *displacive*. Une autre transition ferroélectrique, celle de type ordre-désordre, est plus rarement rencontrée (e.g.  $\text{NaNO}_2$  ou  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ ). Dans ce cas, la phase paraélectrique comprend de nombreux dipôles non corrélés qui s'ordonnent dans la phase ferroélectrique et génèrent une polarisation spontanée macroscopique.

Il existe ce qu'on appelle une ferroélectricité de type *propre* et une autre de type *impropre*. Pour la ferroélectricité *propre* le paramètre d'ordre primaire dans la théorie de Landau est la polarisation. Pour la ferroélectricité *impropre* le paramètre d'ordre n'est pas la polarisation et celle-ci apparaît, par exemple dans le cas de  $\text{YMnO}_3$ , suite à des changements de la structure initialement pérovskite. Ces déformations peuvent avoir diverses causes. Par exemple, dans le modèle de rayon ionique rigide, chaque atome a une taille qui dépend de sa coordinence. A partir du rayon de chaque atome, il est possible de définir la condition géométrique qui assure une structure parfaitement cubique. Cette condition, nommée facteur de tolérance  $t$  de Goldschmidt, s'écrit donc :

$$t = \frac{R_A + R_O}{\sqrt{2}(R_B + R_O)} \quad (1.3)$$

Elle exprime simplement le fait qu'à  $t = 1$  les trois types de sphères atomiques sont en contact et que la structure cubique est stable. Une déviation de l'unité procure des degrés de liberté dans le positionnement des atomes et induit des changements de la maille unitaire. De plus, la situation peut encore se compliquer en fonction de la configuration électronique de l'atome de type B de la structure  $\text{ABO}_3$ . En effet, s'il possède des électrons  $d$ , le champ cristallin va lever la dégénérescence de ces niveaux énergétiques. Selon la configuration haut ou bas spin et du nombre d'électron  $d$ , une déformation de l'octaèdre

d'oxygène (élongation, compression, etc.) peut se produire afin d'atteindre un niveau de plus basse énergie grâce à l'effet Jahn-Teller.

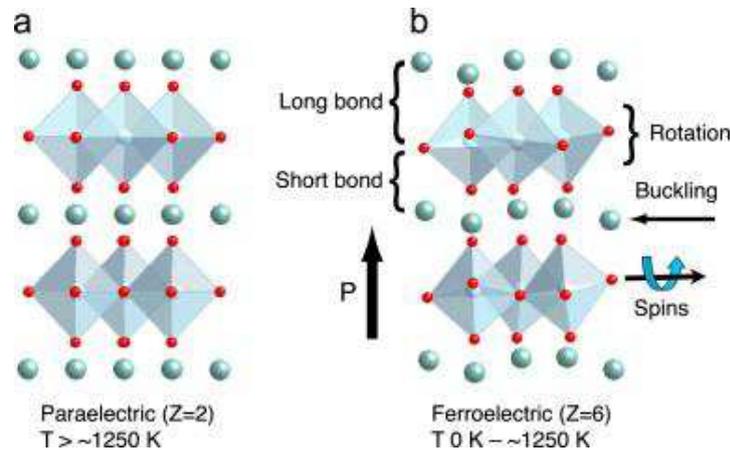


FIGURE 1.5 – a) Structure de la phase paraélectrique de  $\text{YMnO}_3$  b) Structure de la phase ferroélectrique : les octaèdres d'oxygènes subissent des rotations et les plan d'Yttrium se déforment. La structure perovskite de la phase paraélectrique est fortement déformée et une polarisation spontanée émerge. Figures reproduites de [Benedek 2012]

Le facteur de tolérance non unitaire et l'effet Jahn-Teller peuvent coexister et provoquer des rotations, déformations et/ou inclinaisons des octaèdres d'oxygènes. La ferroélectricité apparaissant à la suite de ces déformations de la structure est appelé *impropre* et elle n'est pas responsable de la transition de phase (figure 1.5).

Pour la ferroélectricité *propre*, la polarisation spontanée apparaît grâce aux forces dues aux interactions dipolaires et provoque la transition de phase. Le profil d'énergie dans ce cas ne présente pas de double puits mais un seul minimum pour une polarisation donnée. L'application d'un champ électrique fait basculer le profil entier vers une autre polarisation, en ce sens la polarisation n'est pas ici un paramètre d'ordre primaire (c.f. figure 1.6).

Pour notre étude nous avons utilisé le BTO qui est l'archétype du ferroélectrique à transition *displacive*. Il a été le sujet de nombreuses études et ses propriétés sont bien connues maintenant.

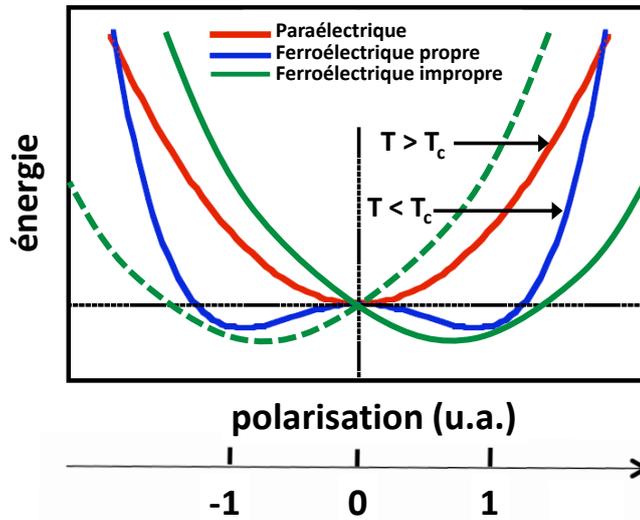


FIGURE 1.6 – Comparaison des profils énergétiques en fonction du déplacement atomique. En rouge, la phase paraélectrique. En bleu, la phase ferroélectrique. En vert, une phase ferroélectrique impropre.

#### 1.1.4.2 Approche *ab initio*

L'approche *ab initio* moderne concernant les matériaux ferroélectriques est devenue particulièrement puissante en terme de prédiction et pratique en tant qu'outil de compréhension. Durant les 30 dernières années, elle a ainsi stimulé la problématique de l'épaisseur critique de stabilisation de la ferroélectricité. Dans ce type d'approche, le choix d'une structure initiale et la résolution de l'équation de Schrödinger  $H|\phi\rangle = E|\phi\rangle$  permettent d'établir la structure cristalline dans l'état fondamental *via* la minimisation de l'énergie. L'Hamiltonien prend notamment en compte les interactions électrons-électrons  $U_{ee}$  :  $H = T_e + T_n + U_{ee} + U_{nn} + U_{en}$  où  $T$  est l'énergie cinétique et  $U$  l'énergie potentielles, les indices  $e$  dénotent les électrons et  $n$  les noyaux. C'est un problème à plusieurs corps dont les solutions analytiques ne sont pas connues mais plusieurs stratégies sont employées afin de contourner cet obstacle, parmi lesquelles la théorie fonctionnelle de la densité ou la méthode Hartree-Fock. Les références [Martin 2004, Resta 2003, Dovesi 2000, Ishida 2006] apportent des informations exhaustives sur ces types de calculs.

Une fois les quantités de premier ordre calculées, telles que l'énergie totale, la forme de la maille atomique ou les positions des atomes dans l'état fondamental, les observables dérivant de l'énergie deviennent accessibles. Cependant, la définition de la densité de polarisation n'est pas triviale. Elle ne

peut pas être définie à partir de la polarisation macroscopique et des dimensions de l'échantillon, tel que  $P_{ech} = \frac{1}{\Omega_{ech}} \int \rho(r) r dr_{ech}$  ( $\Omega$  est le volume du système). En effet, en utilisant la définition précédente, tout changement électrostatique aux surfaces de l'échantillon aurait une incidence sur la valeur de la polarisation alors que c'est une grandeur intrinsèque. Une définition microscopique intuitive tel que :  $P_{cell} = \frac{1}{\Omega_{cell}} \int \rho(r) r dr_{cell}$  se heurte au caractère covalent ou iono-covalent des liaisons, la répartition de la densité de charge empêchant la définition d'une maille de sommation électriquement neutre. L'approche moderne de la ferroélectricité repose sur le concept de « phase de Berry » où l'on s'intéresse non pas au module des fonctions d'ondes mais plutôt à leur phase. Ainsi Resta *et al.* parviennent à la définition de la polarisation suivante [Resta 2007] :

$$\Delta P := (P_{\lambda=1} - P_{\lambda=0}) \text{ mod } \frac{eR}{\Omega} \quad (1.4)$$

$\lambda$  est un paramètre qui a la signification d'un temps adiabatique sans dimension allant de 0, pour l'état initial, à 1 pour l'état final après application d'un stimulus (champ, contrainte, etc.).  $R$  est un vecteur du réseau cristallin,  $\Omega$  est le volume de la maille atomique et  $e$  est la charge élémentaire. Le terme de gauche désigne la variation de polarisation qui est uniquement défini par  $\Delta P = \int_0^1 d\lambda \frac{dP}{d\lambda}$ . Le terme de droite est défini modulo un quantum  $\frac{eR}{\Omega}$  près. Le signe := signifie que le terme de gauche ne correspond donc qu'à une seule des valeurs du terme de droite. L'interprétation de cette définition et plus d'informations sur l'approche de « phase de Berry » peuvent être trouvées dans la référence [Resta 2007]. Le point essentiel est que les approches *ab initio* dispose maintenant d'une définition microscopique de la polarisation qui est prédictive. De plus elle est similaire (équation 1.4) à celle utilisée expérimentalement (c.f. équation 1.28).

Grâce à cette définition moderne il est possible de prédire correctement la polarisation électrique, le tenseur de permittivité ou le tenseur de piézoélectricité avec une faible marge d'erreur ( $\approx 5-10\%$  [Ghosez 2011]). Par exemple, la polarisation spontanée de  $\text{KNbO}_3$  est calculée à  $P_{calc} = 0.35 \text{ C.m}^{-2}$  alors que la valeur expérimentale est  $P_{exp} = 0.37 \text{ C.m}^{-2}$ . Pour le  $\text{BaTiO}_3$ , les calculs prédisent  $0.24 \text{ C.m}^{-2}$  et se compare bien avec la valeur expérimentale de  $0.263 \text{ C.m}^{-2}$ .

Une des façons d'étudier le caractère ferroélectrique d'un matériau consiste à calculer les charges *effectives* des atomes dans le solide ainsi que la fréquence des modes de vibrations du cristal. La charge électrique d'un ion libre est bien définie et, pour  $\text{BaTiO}_3$ , le ferroélectrique qui nous intéresse, les charges nominales des ions libres Ba, Ti et O sont respectivement +2, +4 et -2. On attendrait qu'elles constituent une limite haute à la charge *effective* lorsqu'on

examine les constituant d'un solide. Cependant les données expérimentales existantes [Axe 1967] mesurant la charge *effective* sont bien plus élevées : baryum  $\approx +2.9$ , titane  $\approx +6.7$  et oxygène  $\approx -4.8$ . Cette charge *effective* de Born est définie comme le changement de polarisation électrique dans la direction  $\alpha$  en fonction du déplacement  $u_s$  d'un sous-réseau atomique  $s$  dans la direction  $\beta$  pour un champ externe nul :

$$Z_{s,\alpha\beta}^* = \frac{\Omega}{e} \frac{\partial P_\alpha}{\partial u_{s,\beta}} \quad (1.5)$$

L'anomalie de charge *effective* n'a guère suscité d'intérêt jusqu'en 1993 [Resta 1993] où les calculs *ab initio* confirmèrent ces anciennes données expérimentales. Par la suite d'autres confirmations de ces résultats ont été apportées par diverses méthodes, c.f. tableau 1.7. L'approche théorique moderne apporta ainsi la première interprétation de ce phénomène qui s'explique par une hybridation entre les orbitales 2p des oxygènes et 4d ou 5d du titane.

Puisqu'elle exprime le dipole électrique qui se développe lorsqu'un atome  $s$  est déplacé, la charge *effective* occupe une place prépondérante dans l'équilibre entre les interactions à courte distance (compromis entre les liaisons chimiques et le principe d'exclusion de Pauli) et celles dipolaires à longue distance. Elle intervient donc directement dans la dynamique d'excitation du réseau d'un cristal. Une structure cristalline est animée de vibrations collectives de ses atomes qui sont décrites dans la théorie des phonons. Les oxydes de formule  $ABO_3$  contiennent 5 atomes par maille et présentent donc 15 branches de phonons. 3 branches sont dites acoustiques et les 12 autres optiques.

		$Z_{Ba}^{*(T)}$	$Z_{Ti}^{*(T)}$	$Z_{O_\perp}^{*(T)}$	$Z_{O_\parallel}^{*(T)}$	Reference
Nominal		+2	+4	-2	-2	
Experiment		+2.9	+6.7	-2.4	-4.8	<b>Axe 1967</b>
Models	(shell model)	+1.63	+7.51	-2.71	-3.72	
	(SCAD model)	+2.9	+7.3	-2.2	-5.8	
First-principles	(linear response)	+2.77	+7.25	-2.15	-5.71	<b>Ghosez 1998</b>
	(Berry phase)	+2.75	+7.16	-2.11	-5.69	

FIGURE 1.7 – Comparaison entre mesure de charge effective de Born et calcul *ab initio*. Tableau reproduit de [Ghosez 1998]

Un cristal est stable à une température  $T$  donnée si la fréquence de tous ses modes est réelle. En venant des hautes températures, un mode subit un *softening* à mesure que la température approche une transition. Lorsque  $\omega = 0$  le cristal devient instable et il se déforme selon les vecteurs propres du *soft-mode* afin d'adopter une nouvelle structure à  $T < T_c$ . Cochran a fait remarquer

que pour un matériau ferroélectrique à transition *displacive*, la passage de la phase paraélectrique vers la phase ferroélectrique est associé à un *soft-mode* de phonon transverse optique qui prépare la distortion ferroélectrique à plus basse température [Cochran 1959]. La fréquence de ce mode optique transverse s'exprime ainsi comme :

$$\omega_{TO}^2 \propto R'_0 - 4\pi (\varepsilon + 2) (Z^* e)^2 / 9\Omega \quad (1.6)$$

$$\omega_{TO}^2 = \underbrace{\omega_{SR}^2}_{>0} + \underbrace{\omega_{LR}^2}_{<0} \quad (1.7)$$

$R'_0$  représente les forces de rappel induites par les interactions à courte distance,  $\varepsilon$  est la constante diélectrique haute fréquence,  $Z^*$  est la charge effective de Born,  $e$  la charge élémentaire et  $\Omega$  est le volume de la maille atomique. Le deuxième terme du membre de droite traduit l'interaction Coulombienne dipolaire.

Tandis que les interactions à courte distance (SR pour Short Range) favorisent une structure centrosymétrique paraélectrique, les interactions à longue distance (LR pour Long Range) dipolaires favorisent une structure non centrosymétrique ferroélectrique. A la transition vers la phase ferroélectrique, les interactions à longue distance dominent celles à courte distance, la structure paraélectrique n'est plus stable,  $\omega^2$  devient négatif et une polarisation spontanée apparaît grâce au décalage relatif des oxygènes et de l'atome B (c.f. figure 1.8). Ainsi une forte anomalie de charge effective  $Z^*$  est donc très souvent un bon indicateur d'une distortion ferroélectrique.

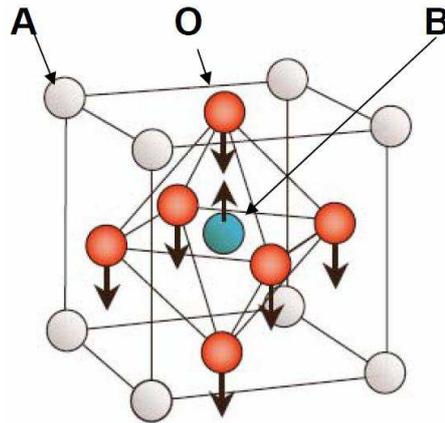


FIGURE 1.8 – Structure pérovskite ABO<sub>3</sub> : en noir les cations de type A, en bleu le cation de type B, en rouge les oxygènes. Les flèches indiquent la direction des déplacements associés à un mode de phonon optique transverse.

La fréquence du *soft-mode* de phonon transverse optique et l'anomalie de charge dynamique sont des indicateurs de la ferroélectricité particulièrement utiles lors de la recherche de nouveaux composés ferroélectriques, ou lors de l'étude de l'influence de paramètres, comme la contrainte, sur la stabilité de la ferroélectricité d'un matériau. C'est aussi une des façons d'étudier l'épaisseur critique d'un matériau ferroélectrique.

### 1.1.5 Dynamique de renversement de polarisation électrique

Alors que les calculs *ab initio* prédisent avec une bonne précision la polarisation ou la forme de la maille atomique, le comportement réel du matériau diffère souvent pour certaines caractéristiques (constante diélectrique, élastique, piézoélectrique, etc.). En effet, le cristal réel est imparfait et les défauts qu'il contient ont une grande influence sur la dynamique des domaines. Dans notre cas, le concept de memristor ferroélectrique exploite la configuration en domaine d'une couche ultramince de BaTiO<sub>3</sub>, il est donc important de comprendre le processus de renversement de la polarisation.

Considérons une structure capacitive constituée d'une couche mince ferroélectrique prise en sandwich entre deux électrodes métalliques, de sorte que le champ électrique soit appliqué uniformément. De manière classique, le renversement total de la polarisation se déroule en trois étapes comme l'illustre la figure 1.9. Tout d'abord, des nucléi de polarisation inverse se forment au niveau de centres spécifiques. Ces nucléi croissent à travers l'épaisseur de la couche afin de rejoindre la contre-électrode et former des nanodomains. Ces derniers grandissent alors latéralement par propagation de paroi pour finalement ne produire qu'un unique domaine de polarisation inverse à l'initiale. Les deux premières étapes sont très rapides tandis que la propagation de parois est plutôt lente. La dynamique de retournement a récemment été expérimentalement observée par des mesures de microscopie électronique en transmission, avec une résolution temporelle à la milliseconde [Nelson 2011, Gao 2011, Gao 2012]. Ces résultats dévoilent notamment un comportement dynamique des nanodomains qui confirment diverses prédictions théoriques tel que le *backswitching* ou la propagation verticale très rapide et celle latérale plus lente.

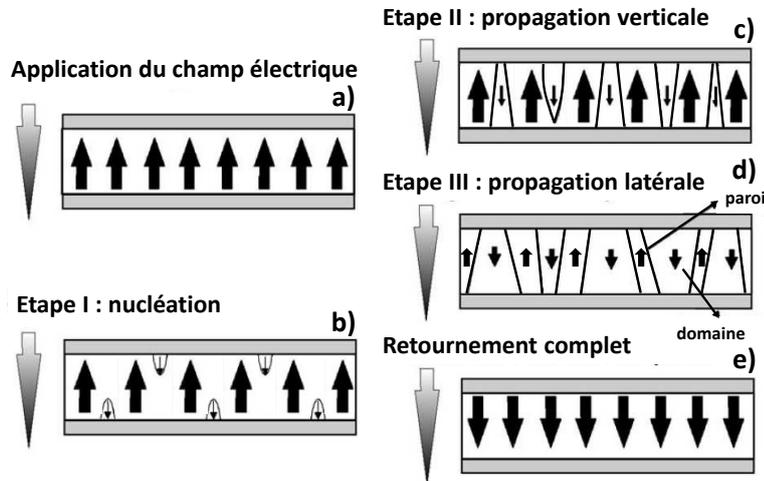


FIGURE 1.9 – a) Etat initial de polarisation uniforme. b) Nucléation de domaines de polarisation inverse. c) Croissance verticale de ces domaines. d) Les domaines ont rejoint la contre-électrode et grandissent latéralement. e) tous les domaines ont fusionné et la polarisation est complètement retournée. Figures reproduites de [Dawber 2005].

Il existe divers modèles de dynamique de retournement de polarisation, tous fondés sur la nucléation de domaines et/ou propagation de paroi.

### 1.1.5.1 Kolmogorov-Avrami-Ishibashi

Avrami a étudié le changement de phase d'un matériau en considérant, dans une matrice de l'ancienne phase, l'existence de germes de nucléation de la nouvelle phase à partir desquels cette dernière se propage [Avrami 1939, Avrami 1940, Avrami 1941]. Par la suite, Ishibashi et Orihara proposent d'employer la méthode Kolmogorov, initialement développée pour le problème de la croissance de cristaux, afin d'adapter le modèle d'Avrami au phénomène de renversement de polarisation dans les ferroélectriques [Ishibashi 1971, Orihara 1994] : c'est le modèle Kolmogorov-Avrami-Ishibashi (KAI). Dans ce modèle, en partant d'un état initial de polarisation uniforme, les auteurs cherchent à exprimer le volume de matériau dont la polarisation a été retournée en fonction du temps d'application d'un champ électrique constant. Supposons que sous l'action de ce champ, un domaine nucléé à partir d'un germe de rayon  $r_c$  à un instant  $\tau$ . Si on considère que le domaine croît à une vitesse constante  $v$ , le volume  $S$  de matériau dont la polarisation est retournée à l'instant  $t$  est donné par :  $S = C [r_c + v(t - \tau)]^n$ .

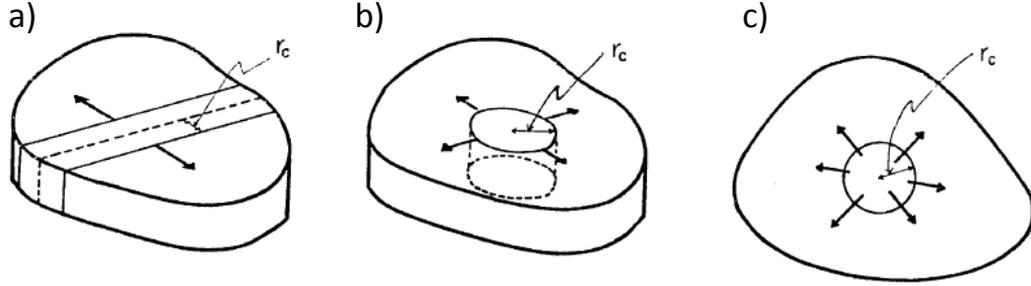


FIGURE 1.10 – a) Domaine de forme lamellaire avec une croissance selon une seule direction,  $n = 1$ . b) Domaine cylindrique avec une croissance selon deux directions,  $n = 2$ . c) Domaine sphérique avec une croissance selon les trois directions,  $n = 3$ . Figures reproduites de [Ishibashi 1971]

Le paramètre  $n$  rend compte de la dimensionalité de la croissance du domaine (c.f. figure 1.10). Ce volume  $S$  ne participe plus au processus de retournement, i.e. les domaines retournés demeurent retournés. Les auteurs considèrent que la nucléation des domaines est spatialement *aléatoire* et que le taux de nucléation  $R$  par unité de volume et de temps est constant. On peut alors exprimer la probabilité qu'un nucléus se forme dans le volume non retourné entre l'instant  $\tau$  et  $\tau + \Delta\tau$  comme :  $1 - R\Delta\tau S$ . Ainsi, si on considère un volume de matériau infini, la probabilité qu'un domaine ne se crée pas dans le volume  $S(i\Delta\tau, j\Delta\tau)$  – le volume  $S$  dépend aussi de l'instant de nucléation  $\tau = i\Delta\tau$  – à l'instant  $t = j\Delta\tau$  est donc donné par :

$$q(t) = \prod_{i=0}^j [1 - R(i\Delta\tau)S(i\Delta\tau, j\Delta\tau)] \quad (1.8)$$

Le produit est transformé en somme en prenant :

$$\ln(q(t)) = \sum_{i=0}^j \ln [1 - R(i\Delta\tau)S(i\Delta\tau, j\Delta\tau)] \quad (1.9)$$

Comme le volume est considéré infini, le développement limité de la somme de logarithmes donne :

$$\ln(q(t)) \approx - \sum_{i=0}^j R(i\Delta\tau)S(i\Delta\tau, j\Delta\tau) \quad (1.10)$$

$$= - \int_0^t R(\tau)S(t, \tau)d\tau \quad (1.11)$$

$$= -A \quad (1.12)$$

La fraction  $Q(t)$  du volume retourné correspond à  $Q(t) = 1 - q(t) = 1 - \exp(-A)$ . L'objectif est de calculer  $A$  qui correspond au *volume étendu* d'Avrami [Avrami 1940]. Les auteurs calculent  $A$  dans deux scénarii à champ constant. Dans le premier, ils considèrent que le taux de nucléation  $R$  est constant durant l'application du champ. Si on néglige le rayon  $r_c$  du germe à partir duquel le nucléus se forme, on obtient :

$$-A = - \int_0^t R(\tau) S(t, \tau) d\tau \quad (1.13)$$

$$= - \int_0^t CR(\tau)(v(t - \tau))^n d\tau \quad (1.14)$$

$$= - \frac{CR(vt)^{n+1}}{v(n+1)} \quad (1.15)$$

Si on prend en compte le rayon des germes, l'expression devient :

$$-A = - \frac{CR}{v(n+1)} [(r_c + vt)^{n+1} - r_c^{n+1}] \quad (1.16)$$

Dans le deuxième scénario, les germes sont en nombre fini et tous les domaines sont nucléés à  $t = 0$ . Aucun nouveau nucléus n'apparaît ensuite, i.e.  $R(t > 0)\Delta\tau = 0$ , et le volume  $A$  est obtenu par expansion des domaines :

$$-A = -CR\Delta\tau (r_c + vt)^n \quad (1.17)$$

Le renversement de la polarisation est classiquement mesuré par le courant transitoire créé par les charges libres qui viennent écranter les charges de polarisation au niveau des électrodes. Ce courant est relié à la fraction de volume retourné par  $j = -dq(t)/dt$ . Cette approche reproduit assez bien les données expérimentales mais l'exposant  $n$ , qui traduit la dimension de croissance, est souvent non entier. Cela est souvent interprété comme un mélange de plusieurs mode de croissance même si l'approche KAI requiert que  $n$  soit entier. Il est probable que cela soit dû au fait que l'échantillon est de taille fini et que la probabilité de nucléation n'est pas spatialement aléatoire.

### 1.1.5.2 Nucleation-limited-switching (NLS)

Expérimentalement, on sait que le retournement de polarisation s'effectue région par région [Colla 1998, Gruverman 2008] et qu'un domaine créé à partir d'un nucleus ne se propage pas sans restriction contrairement aux hypothèses du modèle KAI. Tagantsev *et al.* ont adopté une approche qui divise le volume du matériau en plusieurs régions élémentaires  $i$  de taille  $S_i$  avec des paramètres de cinétiques indépendants [Tagantsev 2002]. Ils supposent qu'une région est

retournée dès qu'un domaine nucléé après un temps d'attente  $\tau_i$ , i.e. la durée d'expansion du domaine dans la région est négligeable devant  $\tau_i$ . Les auteurs développent donc un modèle pour lequel le retournement de la polarisation est régi par la nucléation de domaines, contrairement au modèle KAI où la propagation de paroi contrôle le processus de renversement. La fraction du volume retourné s'exprime simplement comme :

$$p(t) = 1 - \frac{\sum_{NS} S_i}{\sum_{all} S_i} \quad (1.18)$$

$NS$  signifie *nonswitched* et le rapport reflète la fraction de volume non retourné à l'instant  $t$ . Le cas particulier où toutes les régions sont identiques est décrit par l'équation différentielle de décroissance :

$$dN_{NS} = -N_{NS} \frac{dt}{\tau} \quad (1.19)$$

Elle admet pour solution  $N_{NS} = N_0 e^{-t/\tau}$ , avec  $N_0$  le nombre total de régions élémentaires. Ainsi, la fraction de volume retourné devient similaire à l'expression d'Avrami :

$$p(t) = 1 - e^{-t/\tau} \quad (1.20)$$

Si on suppose maintenant que les régions sont hétérogènes avec une distribution des  $\tau_i$  et des surfaces  $S_i$ , l'expression 1.20 devient :

$$p(t) = 1 - \left\langle \frac{S_i}{\langle S_i \rangle} e^{-t/\tau_i} \right\rangle \quad (1.21)$$

$S_i/\langle S_i \rangle$  est le rapport de la surface de la région  $i$  sur la surface moyenne des régions élémentaires. Les auteurs négligent ce quotient par rapport à la contribution de  $\tau_i$  qui est exponentielle :

$$\left\langle \frac{S_i}{\langle S_i \rangle} e^{-t/\tau_i} \right\rangle \approx \langle e^{-t/\tau_i} \rangle \quad (1.22)$$

La distribution des temps d'attente couvre plusieurs décades et les auteurs utilisent une approximation issue de la théorie des systèmes désordonnés afin d'évaluer la moyenne des exponentielles :

$$\langle e^{-t/\tau_i} \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-t/\tau} g(\log \tau) d(\log \tau) \quad (1.23)$$

$g$  est la fonction de distribution des  $\tau$  et elle satisfait la condition de normalisation :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} g(z) d(z) = 1 \quad (1.24)$$

En posant les changements de variable  $z_0 = \log t$  et  $z = \log \tau$ , la moyenne devient :

$$\langle e^{-t/\tau_i} \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} \exp(10^{z_0-z}) g(z) dz \quad (1.25)$$

Les auteurs remplacent la double exponentielle par une fonction d'Heaviside centrée en  $z_0$  car elle croît plus vite comparée à  $g(z)$  :

$$\langle e^{-t/\tau_i} \rangle = \int_{z_0=\log t}^{+\infty} g(z) dz \quad (1.26)$$

Finalement, on obtient la fraction du volume retourné :

$$p(t) = 1 - \langle e^{-t/\tau_i} \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} g(z) dz - \int_{\log t}^{+\infty} g(z) dz = \int_{-\infty}^{\log t} g(z) dz \quad (1.27)$$

La fraction de volume retourné à l'instant  $t$  dépend ainsi uniquement de la fonction de distribution  $g(z)$ . Le cœur du modèle NLS repose donc sur la fonction  $g$  de distribution des  $\tau$  caractéristiques des différentes cinétiques d'évolution des régions du matériau. Les auteurs prennent une distribution  $g(z)$  constante dans un intervalle  $[z_1, z_2]$  qui décroît en  $1/z^2$  en dehors de cette intervalle. Ils ne justifient toutefois pas ce choix de fonction [Tagantsev 2002]. Dans la référence [Jo 2007], les auteurs prennent une distribution de type Lorentzienne afin d'interpréter leurs données expérimentales, et ils justifient leur choix par les variations du champ local de leur système désordonné en présence d'interactions dipôle-dipôle.

## 1.1.6 Mesure de la ferroélectricité

### 1.1.6.1 P(E) loop

Par définition, la mesure directe de la ferroélectricité d'un matériau s'effectue en exploitant le fait que sa polarisation est commutable sous l'action d'un champ électrique. Si on considère une structure capacitive de type métal/ferroélectrique/métal en court-circuit, le retournement de la polarisation s'accompagne d'un courant transitoire dans le circuit extérieur qui correspond aux charges libres qui viennent écranter les charges de polarisation. Ainsi la variation de polarisation est fonction de la densité de courant s'écoulant lors de son retournement :

$$\Delta P = P(\Delta t) - P(0) = \int_0^{\Delta t} j(t) dt \quad (1.28)$$

Dans la limite adiabatique,  $\Delta t$  tend vers l'infini et  $j(t)$  tend vers 0. La polarisation est mesurée en intégrant le courant de retournement conformément à

l'équation 1.28 (c.f. figure 1.11). La polarisation spontanée correspond alors à la moitié de la différence entre les deux états de polarisation rémanente (i.e. à champ électrique nul).

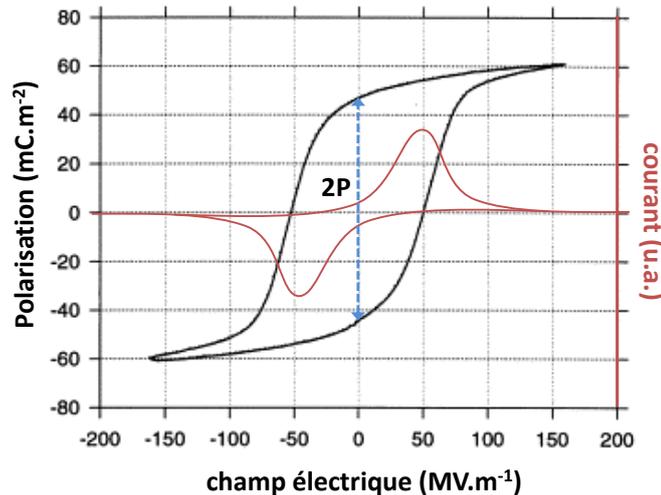


FIGURE 1.11 – Mesure de polarisation vs. champ électrique. La polarisation (en noir) est obtenue en intégrant le courant transitoire de retournement (en rouge).

### 1.1.6.2 Microscopie à force piézoélectrique : spectroscopie

Le microscope à force piézoélectrique (PFM) utilise un microscope à force atomique (AFM) avec une pointe conductrice. Ce genre d'instrument permet de mesurer l'état de polarisation locale d'un matériau ferroélectrique en exploitant l'effet piézoélectrique inverse, c'est donc une mesure indirecte du caractère ferroélectrique d'un matériau. Sous l'effet d'une tension appliquée entre la pointe et l'échantillon, la déformation mécanique  $\eta$  (c.f. figure 1.12a) va dépendre de l'orientation de la polarisation *via* le signe du coefficient piézoélectrique  $d_{33}$  selon la relation 1.35  $\eta = d_{33}E$ . Ainsi, si on applique une excitation AC, selon le sens de la polarisation, la vibration mécanique de piézoréponse et le signal AC de lecture seront en phase ou en anti-phase. En positionnant la pointe de l'AFM à un endroit de l'échantillon, sans balayer la surface (c.f. figure 1.13), il est possible de mesurer le sens de la polarisation et le champ coercitif de la région du ferroélectrique en contact avec la pointe : on parle alors de spectroscopie PFM.

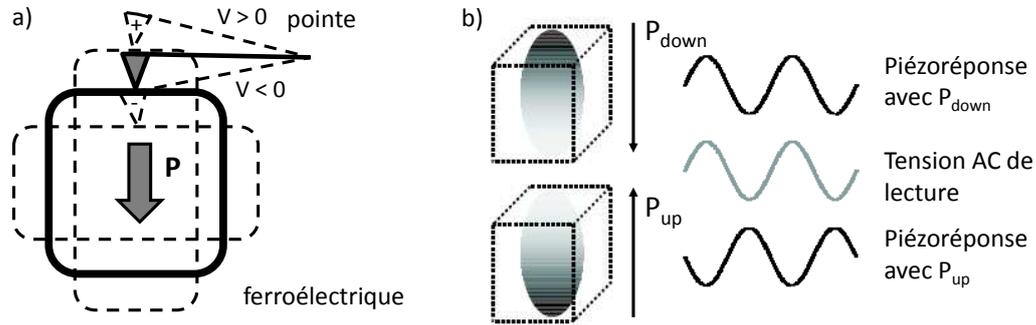


FIGURE 1.12 – a) Déformation mécanique par effet piézoélectrique inverse, i.e. piézoréponse, sous l'action d'une tension alternative de lecture. b) Selon l'orientation de la polarisation, la piézoréponse est en phase ou anti-phase avec le signal AC de lecture (figure reproduite de [Paruch 2003]).

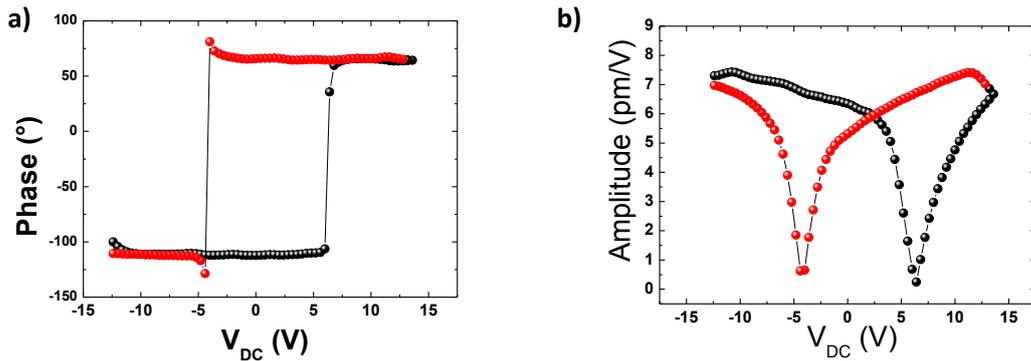


FIGURE 1.13 – a) Mesure de la phase de la réponse piézoélectrique inverse en fonction de la tension  $V_{DC}$ . b) Mesure de l'amplitude de la réponse piézoélectrique inverse en fonction de la tension  $V_{DC}$ . Echantillon de référence de BFO (70 nm) épitaxié sur une électrode de LSMO.

Afin de mesurer les champs coercitifs, on rajoute une composante continue croissante à la tension AC d'excitation :  $V_{appl} = V_{DC} + V_{AC} \cos(\omega t)$ . Alors que l'amplitude du signal AC est constante, on mesure la phase de la réponse mécanique en variant progressivement la tension continue. Lorsque  $V_{DC}$  atteint la tension coercitive, la polarisation se retourne et la phase de la réponse s'inverse. La différence de phase entre les deux états de polarisation est égale à  $180^\circ$ , c.f. figure 1.13a, et la mesure phase vs.  $V_{DC}$  décrit un cycle hystérique. A l'approche des tensions coercitives, l'amplitude du signal chute car la

moyenne temporelle de l'amplitude des vibrations mécaniques est quasi nulle (c.f. figure 1.13b).

### 1.1.6.3 Microscopie à force piézoélectrique : imagerie

L'imagerie PFM reprend la technique de spectroscopie PFM avec généralement seulement l'application de la tension alternative  $V_{AC}$ . Cependant, au lieu de mesurer un endroit fixe, la pointe balaie la surface du matériau. Il est ainsi possible de réaliser une cartographie de l'état de polarisation de l'échantillon. On peut aussi manipuler spatialement l'état de polarisation en balayant la surface avec la pointe tout en appliquant une tension continue supérieure au coercitif. La polarité de la tension détermine le sens de la polarisation et les domaines ainsi écrits sont identifiable en imageant les zones concernées.

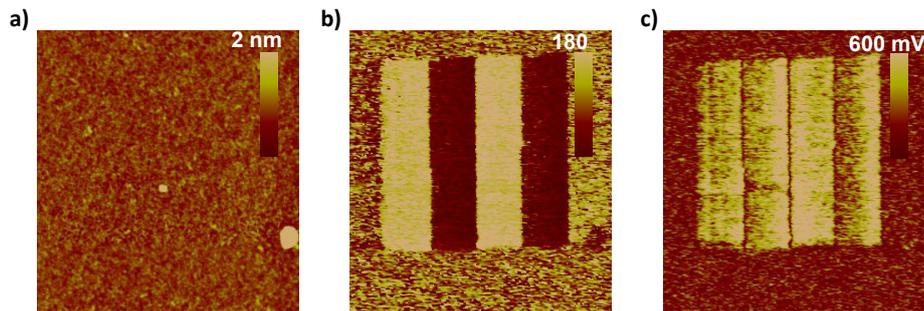


FIGURE 1.14 – Imagerie PFM sur un échantillon BTO(2 nm)/LSMO. a) Topographie, b) Phase, c) Amplitude.

La figure 1.14a montre la topographie de la surface d'un échantillon BTO(2 nm)/ $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$  (LSMO) dans une zone où nous avons créé artificiellement des domaines de polarisation *up* (blanc) et *down* (noir). La surface n'est pas marquée et suggère que le BTO n'est pas endommagé. La réponse piézoélectrique présente une phase uniforme (c.f. figure 1.14b) ainsi qu'une amplitude bien définie (c.f. figure 1.14c). En dehors des bandes écrites, le matériau vierge est multidomaine comme l'atteste la nuée de petites zones blanches et noires dans l'image de phase et le faible signal dans l'image d'amplitude.

## 1.2 Ferroélectricité en couche ultra-mince

### 1.2.1 Effet de taille : épaisseur critique

La ferroélectricité est un ordre qui provient d'un équilibre entre les interactions à courte distance et longue distance, cette dernière favorisant un comportement collectif des dipôles électriques du matériau. En conséquence, il est communément admis qu'il existe une épaisseur critique en deçà de laquelle le caractère ferroélectrique disparaît en raison d'un déséquilibre en faveur des interactions à courte distance. En outre, pour une structure métal/ferroélectrique/métal, les charges de polarisation accumulées aux deux interfaces sont écrantées par des porteurs libres sur une distance finie  $\lambda_{eff}$  de l'ordre de l'Angström pour les métaux et de l'ordre du nanomètre pour les oxydes conducteurs (c.f. figure 1.15). Le potentiel dans les électrodes suit une distribution de type Thomas-Fermi : (SCHEMA)

$$\Phi(z) = \begin{cases} -\frac{\sigma\lambda_1}{\varepsilon_1} & z \leq 0 \\ \frac{\sigma\lambda_2}{\varepsilon_2} & z \geq t \end{cases} \quad (1.29)$$

En utilisant la continuité du champ électrique de déplacement,  $\varepsilon E + P - \sigma = 0$ , on obtient la densité de charge :

$$\sigma = \frac{Pt}{t + \varepsilon_{FE} \left( \frac{\lambda_1}{\varepsilon_1} + \frac{\lambda_2}{\varepsilon_2} \right)} \quad (1.30)$$

Le champ dépolarisant est obtenu, en supposant le champ électrique constant dans le ferroélectrique,  $\Phi(t) - \Phi(0) = E \times t$  :

$$E = \frac{P \left( \varepsilon_{FE} \left( \frac{\lambda_1}{\varepsilon_1} + \frac{\lambda_2}{\varepsilon_2} \right) \right)}{t \varepsilon_{FE} + \varepsilon_{FE}^2 \left( \frac{\lambda_1}{\varepsilon_1} + \frac{\lambda_2}{\varepsilon_2} \right)} \quad (1.31)$$

$t$  étant l'épaisseur de la couche ferroélectrique, plus la couche est mince plus le champ dépolarisant s'oppose à l'établissement de la ferroélectricité.

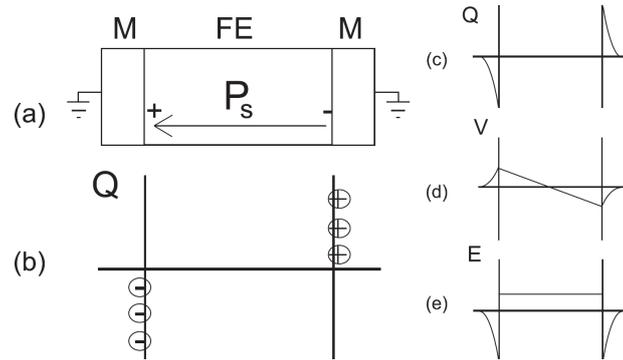


FIGURE 1.15 – a) Structure capacitive métal/ferroélectrique/métal avec charges de polarisation + et -. b) Ecrantage idéal des charges de polarisation. c) Ecrantage réel, d) Potentiel et e) Champ résultant. Figures reproduites de [Dawber 2003]

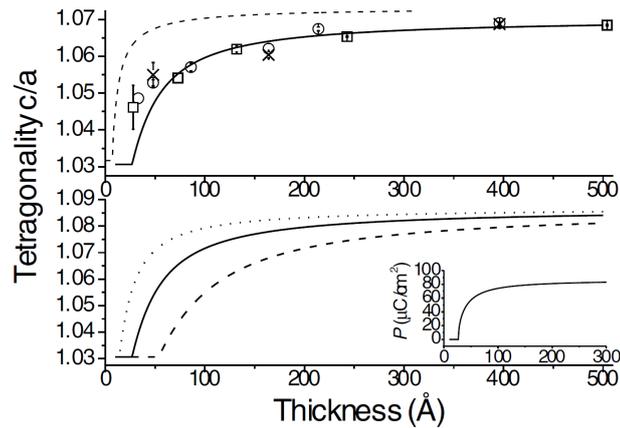


FIGURE 1.16 – Panneau supérieur : En symbole, mesure de tetragonality. En pointillé, résultat de calcul avec un modèle phénoménologique. En trait plein, résultat de calcul *ab initio* avec une longueur d'écrantage  $\lambda_{eff} = 0.12 \text{ \AA}$ . Panneau inférieur : résultats de calculs *ab initio* pour  $\lambda_{eff} = 0.23 \text{ \AA}$  (pointillé),  $\lambda_{eff} = 0.12 \text{ \AA}$  (trait plein) et  $\lambda_{eff} = 0.06 \text{ \AA}$  (trait en tiret). Insert : polarisation électrique en fonction de l'épaisseur.

La tétragonalité, rapport entre les paramètres de maille  $c$  et  $a$ , est un bon indicateur de la ferroélectricité pour les structures quadratiques. Lichtensteiger *et al.* l'ont mesurée dans le  $\text{PbTiO}_3$  en fonction de l'épaisseur et les auteurs constatent que la tétragonalité diminue progressivement à par-

tir d'une épaisseur d'environ 100 nm [Lichtensteiger 2005]. Les auteurs ont montré que ce résultat s'interprète bien par l'écrantage imparfait des charges de polarisation (figure 1.16). La valeur de la longueur d'écrantage peut être calculée dans le cadre du modèle de Thomas-Fermi et donne un bon ordre de grandeur. Cependant, ce modèle peine parfois à expliquer certains résultats [Plonka 2005, Hwanga 2002] car des effets d'interfaces peuvent intervenir afin soit de renforcer la distortion ferroélectrique, soit de s'y opposer. Les calculs *ab initio* expliquent ces effets par la combinaison entre la force des liaisons métal/ferroélectrique et l'anomalie de charge effective portée par les atomes métalliques et les atomes du ferroélectrique à l'interface [Stengel 2009]. Ainsi, de faibles liaisons métal/ferroélectrique auront tendance à renforcer le caractère ferroélectrique du matériau. La question de l'épaisseur critique pour la rétention de la ferroélectricité est donc toujours d'actualité et, en plus des effets inhérents à l'épaisseur des couches ainsi qu'aux interfaces, la contrainte épitaxiale peut avoir une influence déterminante comme nous allons le voir.

## 1.2.2 Effet de la contrainte

### 1.2.2.1 Stabilisation de la ferroélectricité

La ferroélectricité dépend aussi d'autres paramètres que l'épaisseur [Petraru 2008, Takahashi 2008] comme la contrainte [Pertsev 1998, Choi 2004, Li 2006]. Une contrainte se définit simplement par  $\eta = (a_i - a_f)/a_i$ ,  $a_i$  et  $a_f$  étant respectivement les paramètres de maille en *bulk* et final. La contrainte peut être positive, on parle alors de contrainte en tension, ou négative, c'est alors une contrainte en compression (c.f. figure 1.17). Elle peut s'exercer dans une ou plusieurs directions mais dans le cas de couche minces épitaxiées, la contrainte est biaxiale dans le plan *ab*. La polarisation se couple à ce paramètre de contrainte  $\eta$  et l'expression de l'énergie libre 1.1 devient :

$$F(P) = \frac{1}{2}aP^2 + \frac{1}{4}bP^4 + \frac{1}{6}cP^6 + D\eta^2 + Q\eta P^2 \quad (1.32)$$

$$= \frac{1}{2}(a + Q\eta)P^2 + \frac{1}{4}bP^4 + \frac{1}{6}cP^6 + D\eta^2 \quad (1.33)$$

Donc même pour une couche mince dont l'épaisseur est inférieure à l'épaisseur critique, une contrainte  $\eta$  en compression ou en tension peut être suffisante pour stabiliser la distortion ferroélectrique.

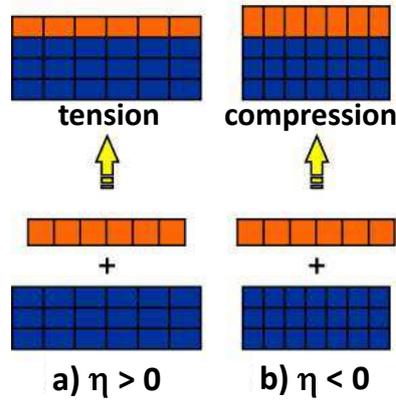


FIGURE 1.17 – Illustration vue de côté d’une hétéroépitaxie sous contrainte entre un substrat (en bleu) et une couche mince (en orange). Selon le désaccord de maille avec le substrat, le couche mince peut être sous contrainte en tension  $\eta > 0$  ou en compression  $\eta < 0$ .

Les calculs prédisent qu’une contrainte compressive sur le BTO stabilise sa phase tétragonale ferroélectrique (figure 1.18), augmentant ainsi sa température de Curie. Il serait ainsi possible de diminuer l’épaisseur critique du BTO en imposant une contrainte par le biais du substrat.

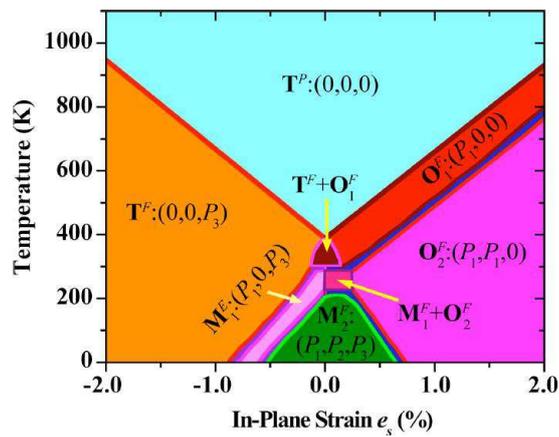


FIGURE 1.18 – Diagramme de phase du BTO température vs. contrainte reproduit de [Schlom 2011]. T : tétragonale, M : monoclinique et O : orthorombique. L’exposant indique que la phase est ferroélectrique (F) ou paraélectrique (P). L’orientation de la polarisation est indiquée entre parenthèses.

En 1963 une épaisseur critique d'environ 100 nm est mesurée pour le BTO [Feuersanger 1963], en 1971 cette épaisseur critique est mesurée à 40 nm [Slack 1971] pour atteindre 23 nm en 1973 [Tomashpolski 1974]. La ferroélectricité est directement sondable à ces épaisseurs par des mesures classiques de  $P(E)$ . Cependant, avec la diminution de l'épaisseur les courants de fuite augmentent et empêchent de tels mesures. Il faut alors procéder par des mesures indirects tels que la technique PFM ou diffraction de rayons X (GIXRD) par exemple. Au fil des années, avec l'accroissement de la qualité d'élaboration des couches minces l'épaisseur critique n'a cessé de diminuer comme l'illustre la figure 1.19. En utilisant une stratégie de contrainte épitaxiale, il a été possible en 2009 d'élaborer des couches minces de BTO ferroélectrique de 1 nm d'épaisseur mesurées par PFM [Garcia 2009]. Les calculs *ab initio* prédisent des épaisseurs critiques de 1.2 nm pour le  $\text{PbTiO}_3$  [Despont 2006] et 2.4 nm pour le BTO [Junquera 2003]. L'épaisseur critique du BTO est plus élevée que les données expérimentales [Garcia 2009] car Junquera *et al.* ont étudié le cas d'une contrainte de -2 % imposé par un substrat de  $\text{SrTiO}_3$  alors que Garcia *et al.* ont utilisé un substrat de  $\text{NdGaO}_3$  (NGO) qui impose une contrainte de -3.2 %.

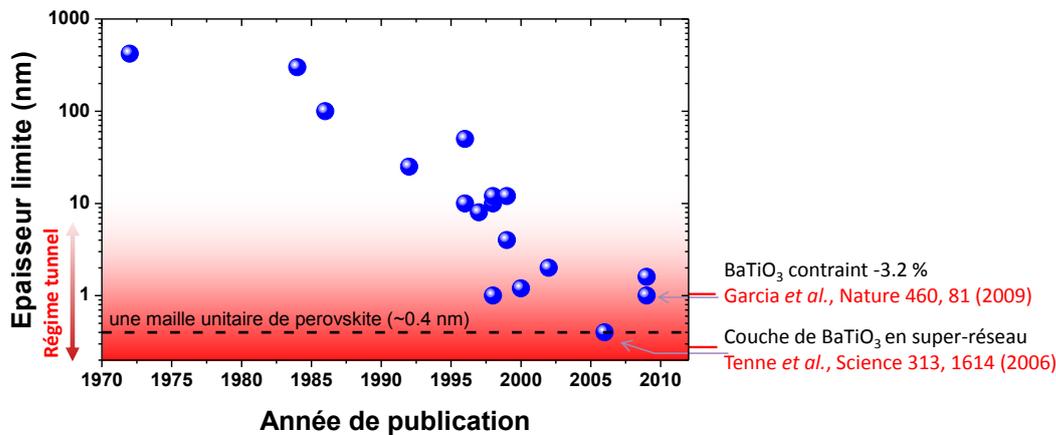


FIGURE 1.19 – Evolution de l'épaisseur critique pour différents matériaux. Figure adapté de [Kohlstedt 2002]

D'autre part, il semblerait que la perte du caractère ferroélectrique serait aussi très dépendante de propriétés extrinsèques [Kohlstedt 2002] : joints de grain, lacunes d'oxygène, *dead layer*, etc. Ainsi l'amélioration des techniques de dépôt a permis de mesurer des épaisseurs critiques de 2 nm dans le  $\text{BiFeO}_3$  [Béa 2006], 1 nm pour le composé organique P(VDF-TrFE 70 :30) [Bune 1998] et 0.4 nm (soit une maille atomique de pérovskite) pour

le BTO en super-réseaux [Tenne 2006]. Il est donc possible depuis quelques années d'élaborer des couches minces de matériaux ferroélectriques dont l'épaisseur est compatible avec le régime de transport tunnel.

### 1.2.2.2 Influence sur la polarisation et le champ coercitif

Une loi semi-empirique de la dépendance du champ coercitif en fonction de l'épaisseur du ferroélectrique a été proposée [Janovec 1958, Kay 1962] :

$$E_c = C.t^{-2/3} \quad (1.34)$$

$t$  est l'épaisseur et  $C$  une constante qui dépend du matériau. Cette dépendance a été vérifiée sur 5 décades [Dawber 2003], en prenant en compte les corrections dues au champ dépolarisant, pour des épaisseurs allant de 100  $\mu\text{m}$  à 1 nm. Le changement d'épaisseur a pour effet d'augmenter le champ coercitif à mesure que l'épaisseur de la couche mince diminue.

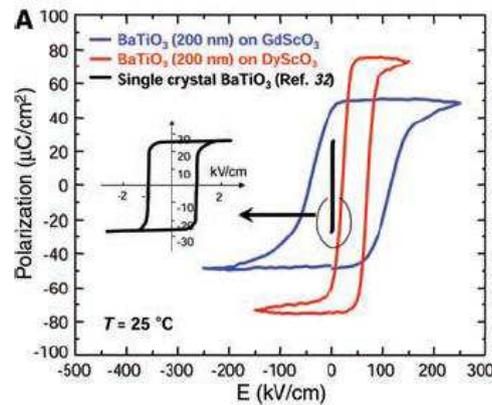


FIGURE 1.20 – Mesure de polarisation vs. champ électrique pour le BaTiO<sub>3</sub>. En noir, monocristal. En bleu, BaTiO<sub>3</sub> contraint à -1 % déposé sur GdScO<sub>3</sub>. En rouge, BaTiO<sub>3</sub> contraint à -1.7 % déposé sur DyScO<sub>3</sub>. Figure reproduite de [Choi 2004]

En plus de cette contribution de l'épaisseur, la contrainte augmente aussi le champ coercitif de plusieurs manières. Dans le *bulk*, on peut estimer le champ coercitif intrinsèque d'un matériau ferroélectrique par  $E_c = P_s/2\varepsilon_0\varepsilon$ . Dans le cas du BaTiO<sub>3</sub> cela correspond à un champ de 196 MV/m [Fridkin 2001]. La contrainte a pour effet de renforcer la polarisation et augmenter la température de transition [Choi 2004] (exemple du BTO en figure 1.20). En conséquence, la constante diélectrique  $\varepsilon$  de la couche mince contrainte devrait être plus basse que dans le *bulk*. Par ce double effet sur la

polarisation et la constante diélectrique, le champ coercitif doit croître d'au moins un ordre de grandeur [Pertsev 2003, Visinoiu 2002, Natori 1998].

### 1.2.3 Jonction tunnel ferroélectrique

#### 1.2.3.1 Principe

La stabilisation de la ferroélectricité dans des couches minces d'épaisseur compatible avec l'effet tunnel permet d'étudier le concept proposé en 1971 par Esaki *et al.* sous le nom de *polar switch* [Esaki 1971]. Le principe consiste à utiliser une barrière tunnel ferroélectrique dont l'orientation de la polarisation modifie la conductance tunnel de la jonction 1.21.

Aujourd'hui de tels structures sont appelées jonctions tunnel ferroélectriques et elle exploitent l'effet d'électrorésistance tunnel (TER pour Tunnel ElectroResistance). Les mécanismes à la base de cet effet sont passés en revue en 2005 [Zhuravlev 2005, Kohlstedt 2005] et les premières preuves expérimentales ont été apportées récemment [Garcia 2009, Gruverman 2009]. Comme l'illustre la figure 1.22, cet effet a trois origines possibles : ① Une modification de l'épaisseur de barrière associée à l'effet piézoélectrique inverse. ② Un effet d'interface lié aux recouvrements des orbitales atomiques de l'électrode et de la barrière. ③ Un effet électrostatique venant de l'écrantage partiel des charges de polarisation.

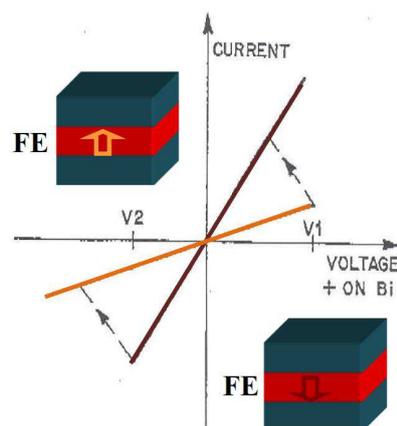


FIGURE 1.21 – Concept originel de *polar switch*. Le courant tunnel dépend de l'orientation de la polarisation électrique de la barrière. Illustration adaptée de [Esaki 1971].

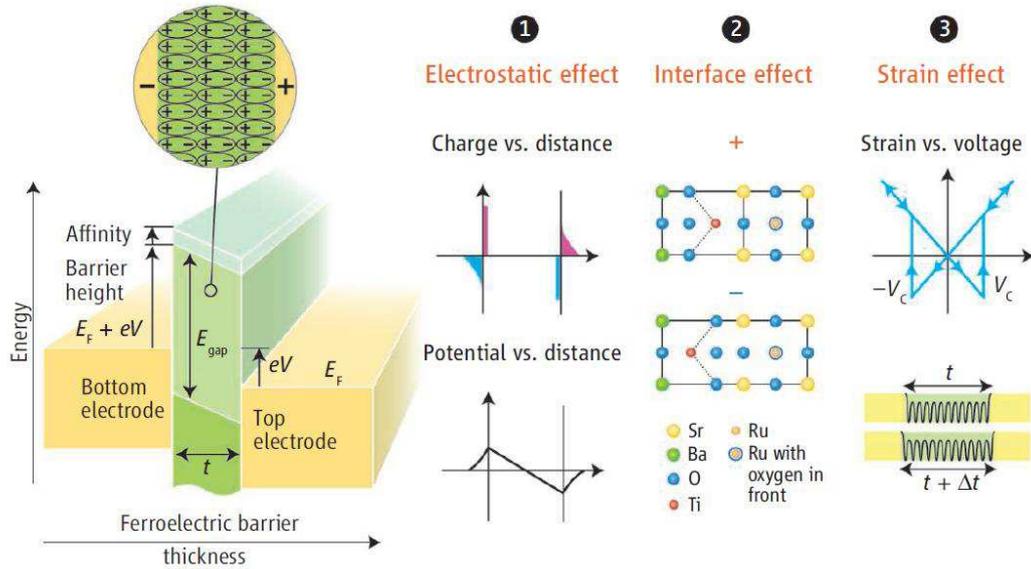


FIGURE 1.22 – Illustration des mécanismes responsables de l’effet de TER. Figure reproduite de [Tsymbol 2006]

**1.2.3.1.1 Effet piézoélectrique inverse** Tous les matériaux ferroélectriques sont piézoélectriques, caractéristique qui rend compte de l’apparition d’une différence de potentiel aux bornes du matériau lorsqu’on lui applique une contrainte mécanique. L’effet piézoélectrique inverse décrit alors la déformation élastique qui est produite par l’application d’une tension aux bornes du matériau. L’effet piézoélectrique résulte ainsi d’un couplage entre un champ électrique et une contrainte mécanique :

$$\eta = dE \tag{1.35}$$

La grandeur  $d$  est le tenseur des coefficients piézoélectriques. Étant donné que nous étudions exclusivement le cas du  $\text{BaTiO}_3$  en phase tetragonale dont la polarisation est selon  $[001]$ , le coefficient qui nous intéresse est le  $d_{33}^*$  effectif : c’est à dire la relation entre un champ appliqué selon  $[001]$  et une mesure de la contrainte selon la même direction.  $d_{33}^*$  est différent du coefficient  $d_{33}$  du cristal libre car il prend en compte le *clamping* dû au substrat. La figure 1.23 représente une mesure de la contrainte vs. tension appliquée, courbe en « papillon » qui présente deux sauts abrupts lorsque la tension coercitive est atteinte. En fonction de l’orientation de la polarisation, le champ produit une contrainte en tension ou en compression du matériau et le coefficient  $d_{33}^*$

est identifiable à la pente des segments de courbe : il change donc de signe à chaque renversement de polarisation.

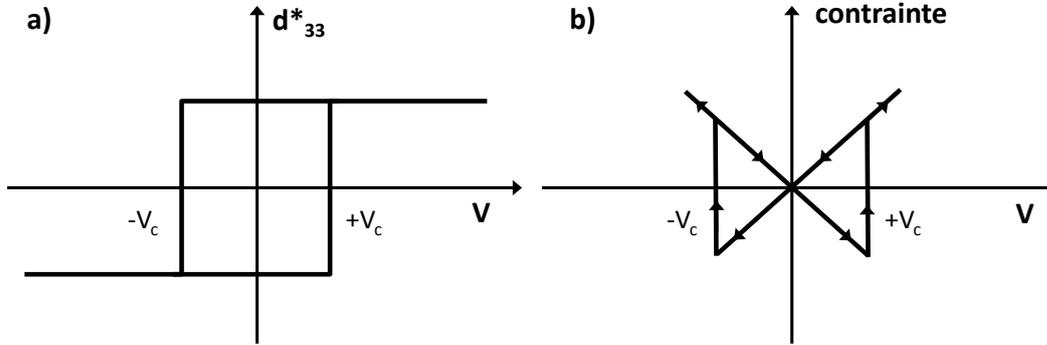


FIGURE 1.23 – Illustration schématique de mesure de  $d_{33}$  vs. tension (a) et de contrainte vs. tension (b).

Suivant le modèle de Simmons, Kohlstedt *et al.* ont dérivé une expression de la densité de courant sous la forme d'une série de puissance  $J = C_1V + C_2V^2 + C_3V^3$ . Alors que le coefficient  $C_1$  est indépendant de  $d_{33}^*$  et que  $C_3 \propto d_{33}^{*2}$ , les auteurs déterminent  $C_2 \propto d_{33}^*$ . Le fait que  $d_{33}^*$  change de signe selon l'orientation de la polarisation induit un changement de conductance si la mesure est toujours réalisée à la même tension, i.e. l'épaisseur de la barrière augmente ou diminue. Les variations attendues sont faibles mais comme le courant dépend exponentiellement de l'épaisseur de la barrière, la contribution de l'effet piézoélectrique inverse doit être non négligeable. Avec un coefficient  $d_{33}$  standard de 50 pm/V, Kohlstedt *et al.* calculent un effet de TER de 70 % pour un barrière de 2 nm d'épaisseur [Kohlstedt 2005].

**1.2.3.1.2 Effet d'interface** Dans le  $\text{BaTiO}_3$  la ferroélectricité est due aux décalages des sous-réseaux d'oxygènes et de titane. Le retournement de la polarisation modifie les recouvrements d'orbitales aux interfaces et change donc les densités locales d'états. Cela peut générer divers effets selon les systèmes étudiés. Par exemple, Garcia *et al.* ont montré que les densités locales des spin majoritaires et minoritaires dépendent de l'orientation de la polarisation et donc que cette dernière affecte l'effet de magnétorésistance tunnel dans des jonctions  $\text{Fe}/\text{BaTiO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  [Garcia 2010, Pantel 2012]. D'autre part, pour ce même type de système, à l'interface avec le fer (ou du cobalt) un moment magnétique est induit sur le titane [Valencia 2011] rendant artificiellement le  $\text{BaTiO}_3$  multiferroïque. Quant à la conductance tunnel, elle doit dépendre linéairement de la densité d'état [Duan 2006b, Duan 2006a,

[Gerra 2007, Gerra 2006, Velev 2007], la contribution attendue pour l'effet d'électrorésistance tunnel est donc faible.

**1.2.3.1.3 Effet électrostatique** Les charges de polarisation aux deux surfaces de la barrière tunnel ferroélectrique sont écrantées dans les électrodes par une accumulation de charges sur une distance finie dite longueur de Thomas-Fermi. L'utilisation de matériaux d'électrode avec différentes longueurs d'écrantage, figure 1.24a, rend le profil électrostatique de la barrière tunnel asymétrique en fonction de l'orientation de la polarisation, figure 1.24b. Zhuravlev *et al.* ont calculé la variation de hauteur moyenne de barrière produit par le retournement de la polarisation [Zhuravlev 2005] (c.f. figure 1.24c et d) :

$$\Delta\Phi = \frac{dP(\lambda_L - \lambda_R)}{2\varepsilon_0\varepsilon_r(\lambda_L + \lambda_R)} \quad (1.36)$$

$d$  est l'épaisseur de la barrière,  $P$  est la polarisation électrique,  $\lambda_R$  et  $\lambda_L$  sont les longueurs d'écrantage respectivement de l'électrode de droite et de gauche et  $\varepsilon_r$  est la constante diélectrique du ferroélectrique. Comme la conductance tunnel dépend exponentiellement de la racine carré de la hauteur moyenne de barrière  $\Phi$  [Brinkman 1970, Simmons 1963], même un faible  $\Delta\Phi$  induit une forte variation de conductance. L'expression 1.36 fait apparaître que la variation de conductance augmente avec l'épaisseur de barrière ainsi qu'avec la polarisation et diminue avec la constante diélectrique du ferroélectrique. D'autre part, plus les longueurs d'écrantage sont différentes, plus la variation de conductance est importante.

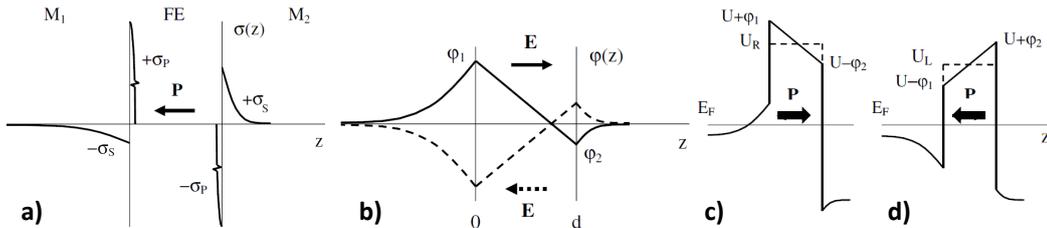


FIGURE 1.24 – a) Profil de densité des charges d'écrantage  $\sigma_s$  et des charges de polarisation  $\sigma_p$ . b) Profils de potentiel électrostatique pour les deux orientations de polarisation. c) et d) Profils de barrière pour les deux orientations de polarisation. Figure reproduite de [Zhuravlev 2005]

L'effet électrostatique est peut-être celui dominant parmi les trois contributions à l'effet d'électrorésistance. L'étude *ab initio* de Bilc *et al.* concernant des jonctions totalement symétriques (interfaces et électrodes)

Au/BaZrO<sub>3</sub>/Au prédit également que l'effet piézoélectrique inverse contribue faiblement à l'effet d'électrorésistance [Bilc 2012]. Ainsi, l'asymétrie des longueurs d'écrantage des électrodes est nécessaire afin de produire un effet de TER de forte amplitude [Zhuravlev 2005, Kohlstedt 2005]. Cependant elle induit aussi une déstabilisation du double puits au profit d'une des orientations *via* un renforcement du champ dépolarisant. Le couplage d'électrodes aux travaux de sortie différents induit aussi un champ additionnel délétère à la ferroélectricité. Enfin, certaines terminaisons d'interfaces pourraient être défavorables à la ferroélectricité [Lu 2012]). En résumé, le compromis entre stabilité de la ferroélectricité et amplitude de l'effet de TER s'effectue par le biais des matériaux d'électrodes ainsi que du type des interfaces.

### 1.2.3.2 Etat de l'art

En 2003, Contreras *et al.* publient les premiers résultats de *resistive switching* dans une structure tunnel ferroélectrique métal/ferroélectrique/métal [Contreras 2003] (c.f. figure 1.25a). Les auteurs observent une dépendance en tension du champ coercitif ferroélectrique, mesuré par *P(E) loop* dans des jonctions épaisses ( $t > 7$  nm), en bon accord avec les champs coercitif de commutation de résistance dans les jonctions tunnels.

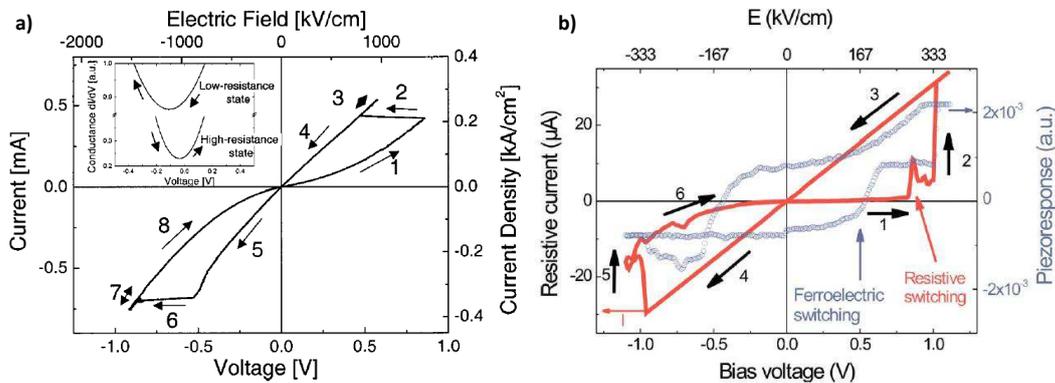


FIGURE 1.25 – a) Mesure courant vs. tension dans une structure Pt/PZT/SRO//STO. En insert : mesure de conductance vs. tension. Reproduction de [Contreras 2003] b) Mesures réalisées sur une structure Pt/PZT/SRO//STO. Courbe bleue : mesure du coefficient  $d_{33}$  vs. tension. Courbe rouge : mesure courant vs. tension. Reproduction de [Kohlstedt 2008]

Ils en concluent que cette dernière est lié à la ferroélectricité. Les auteurs

procèdent ensuite à une analyse des paramètres issus d'ajustement de mesure  $I(V)$  à l'aide du modèle de Brinkman. Ces résultats ont été très discutés et ont stimulé la recherche sur les jonctions tunnel ferroélectriques.

En 2008, Kohlstedt *et al.* étudient une structure capacitive de type Pt/PZT/SRO//STO pour laquelle ils mesurent simultanément la piézoréponse de la couche ferroélectrique et la résistance de la jonction [Kohlstedt 2008]. En prenant soin d'écartier les effets nuisibles au signal de piézoréponse, comme l'effet Joule lors du basculement vers un état de basse résistance, les auteurs montrent que la commutation de résistance qu'ils observent n'est pas lié à la ferroélectricité car les champs coercitifs des deux phénomènes ne coïncident pas (c.f. figure 1.25b). Ce critère est nécessaire afin de relier les deux effets et il doit donc être systématiquement vérifié.

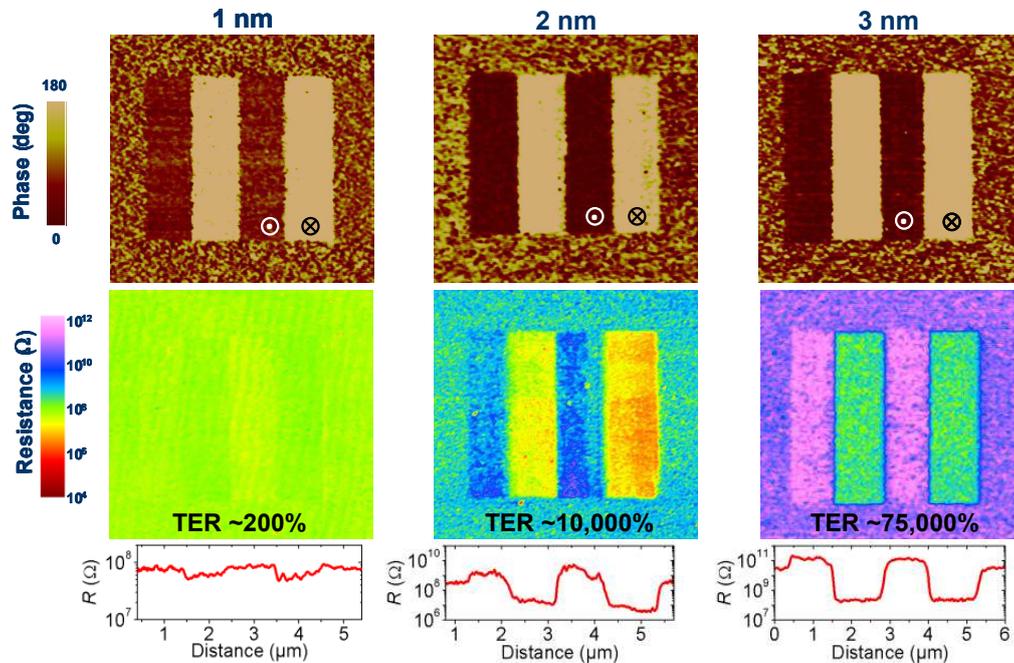


FIGURE 1.26 – Mesures réalisées pour trois épaisseurs d'un empilement tunnel électrorésistif BTO/LSMO//NGO. Rangée du haut : la mesure de phase PFM indique l'orientation de la polarisation électrique. Elle pointe vers le LSMO pour les bandes blanches et vers la pointe AFM pour les bandes noires. Rangée du bas : la résistance locale est cartographiée. Figures reproduites de [Garcia 2009]

En 2009, Garcia *et al.* et Gruverman *et al.* publient les premiers résultats

révélant l'effet de TER dans des jonctions tunnel ferroélectriques. En combinant la technique PFM avec une technique de mesure locale de résistance, les deux groupes montrent la corrélation entre niveau de résistance et état de polarisation électrique dans une structure BTO/LSMO//NGO [Garcia 2009] (c.f. figure 1.26) et le BTO/SRO//STO ([Gruverman 2009]). Ces résultats constituent la première démonstration de l'effet de TER et l'amplitude du rapport OFF/ON atteint 750 pour Garcia *et al.* et 80 pour Gruverman *et al.*.

# Jonction tunnel ferroélectrique BaTiO<sub>3</sub>

## 2.1 Structures étudiées

Les hétérostructures BTO (2 nm)/LSMO étudiées ont été déposées sur des substrats mono-cristallin (001) de gallate de néodyme NdGaO<sub>3</sub> par ablation laser pulsé à l'aide d'un laser excimer KrF de longueur d'onde  $\lambda = 248$  nm. Le substrat impose une forte contrainte en compression de -3.2 % et comme nous l'avons vu cela favorise la stabilisation de la ferroélectricité à température ambiante. Le LSMO (30 nm) est déposé à 775 °C sous une pression partielle d'oxygène de 0.15 mbar. Le BTO (2 nm) est déposé à 775 °C sous une pression partielle d'oxygène de 0.1 mbar. Les échantillons sont ensuite recuits pendant une heure à 750 °C sous atmosphère d'oxygène (500 mbar) puis refroidis à température ambiante à une vitesse de 10 °C.min<sup>-1</sup>.

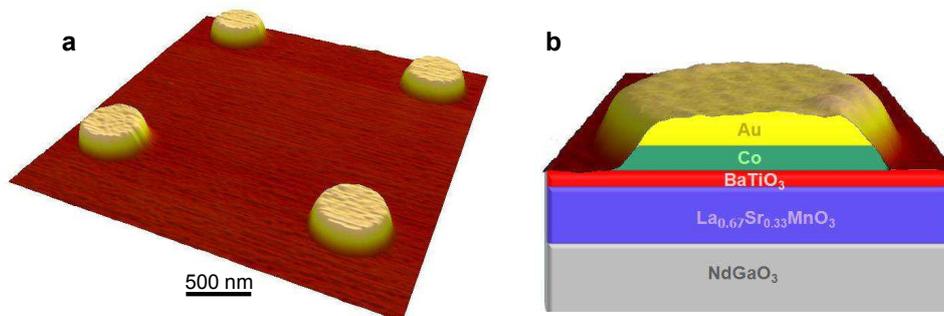


FIGURE 2.1 – a) Réseau de 2 x 2 structures capacitives de 2  $\mu\text{m}$  de pas imagé par AFM. b) Coupe schématique transverse d'un dispositif.

Les épaisseurs des films sont calibrées par mesures de réflectivité de rayon X et confirmées par des coupes de microscope électronique à transmission (MET). Les contacts supérieures submicroniques sont définis par *e-beam* et

*lift-off* d'électrode cobalt (10 nm)/or (10 nm) déposée par pulvérisation cathodique. Les contacts sont circulaires avec divers diamètres allant de 200 nm à 1  $\mu\text{m}$ . Ils sont définis sous la forme de matrice de 100 x 100 contacts identiques avec un espacement de 2  $\mu\text{m}$  (c.f. figure 2.1a). Nous disposons ainsi de plusieurs dizaines de milliers de jonctions capacitives. Les dispositifs sont connectés électriquement à l'aide de la pointe conductrice de l'AFM selon un schéma que nous allons maintenant décrire.

## 2.2 Principe de mesure

Nous utilisons un AFM à pointe conductrice pour mesurer à la fois les propriétés ferroélectriques et les propriétés de transport de nos jonctions. L'instrumentation PFM comprend toute l'électronique permettant de réaliser une détection synchrone du signal de réponse piézoélectrique. Elle est séparée de la partie électronique qui réalise les mesures de transport. Un premier montage simple permet l'application d'impulsion de 100  $\mu\text{s}$  de durée au minimum (figure 2.2). Pour appliquer des impulsions plus brèves (entre 500 ns et 10 ns), un autre montage est employé en combinant une branche DC découplée d'une branche AC par un té de polarisation (c.f. schéma 2.3).

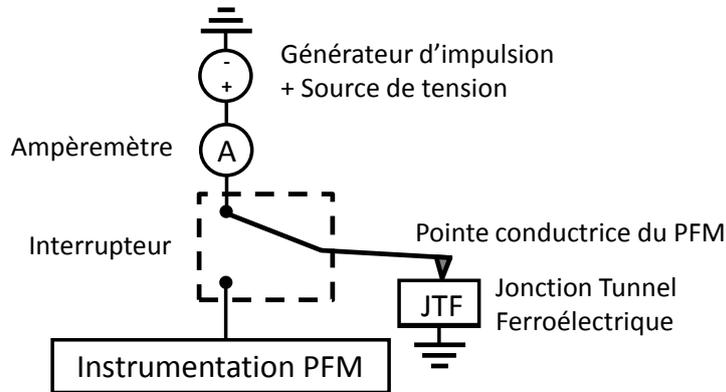


FIGURE 2.2 – Illustration du schéma de montage de mesure à faible bande passante. La jonction tunnel ferroélectrique est électriquement connectée par le biais de la pointe conductrice du PFM.

La procédure de mesure consiste en une impulsion de tension d'écriture d'une durée  $\Delta t$  suivi d'une mesure de la résistance à l'aide d'une tension de lecture non perturbatrice (c.f. figure 2.4). Pour les mesures de transport, la résistance est évaluée simplement par le rapport entre la tension appliquée et le courant qui traverse la jonction tunnel ferroélectrique. Pour la spectroscopie

PFM, la tension de lecture est alternative et son amplitude est inférieure aux tensions coercitives.

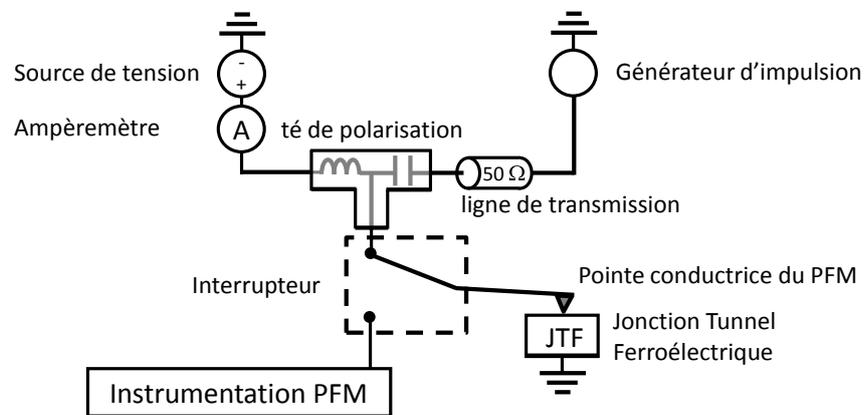


FIGURE 2.3 – Illustration du schéma de montage de mesure à haute bande passante. Les parties DC et AC sont découplées par un té de polarisation. La jonction tunnel ferroélectrique est électriquement connectée par le biais de la pointe conductrice du PFM.

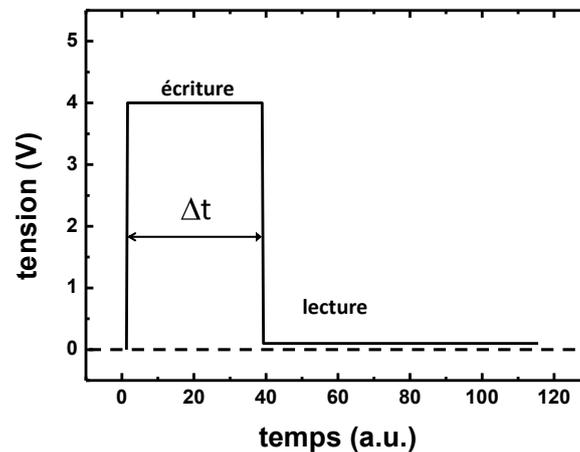


FIGURE 2.4 – Illustration du principe de mesure. La tension d'écriture est appliquée pendant un temps  $\Delta t$  pouvant varier de quelques secondes à  $100 \mu\text{s}$  et de  $500 \text{ ns}$  à  $10 \text{ ns}$  selon le montage utilisé. La mesure de la résistance est réalisée à l'aide d'une faible tension de lecture (typiquement  $100 \text{ mV}$ ).

## 2.3 Performances des jonctions

Les résultats présentés dans ce chapitre 2 concernent principalement des jonctions de 500 nm de diamètre [Chanthbouala 2012a]. Il est possible de contrôler l'état ON (basse résistance) ou OFF (haute résistance) d'une jonction par l'application d'une simple impulsion comme le montre la figure 2.5. Les états sont stables sur plusieurs milliers de lecture avec une faible tension de 100 mV. Le rapport OFF/ON est d'environ 100, ce qui est compatible avec les précédents résultats [Garcia 2009] obtenus sur des surfaces libres de BTO dans une structure pointe diamant/BTO/LSMO.

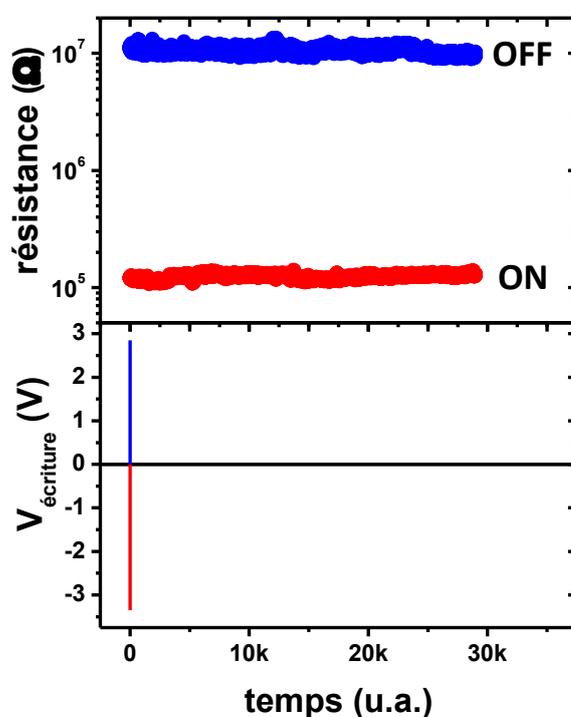


FIGURE 2.5 – Commutation ON/OFF à l'aide d'une unique impulsion de 100  $\mu$ s. La tension de lecture est de 100 mV

En choisissant correctement les amplitudes des impulsions, on peut commuter la jonction entre les états ON et OFF. La figure 2.6a) montre des basculements successifs entre les états ON et OFF à l'aide d'impulsions monocoup de 100  $\mu$ s et d'amplitude  $\pm 3.5$  V. Il est aussi possible de commuter les jonctions à l'aide d'impulsion de 10 ns comme le montre la figure 2.6b) pour une autre

jonction. Les amplitudes nécessaires sont alors de 4.3 V et -7 V. La vitesse de commutation est potentiellement plus rapide mais notre montage est limité à des impulsions de 10 ns.

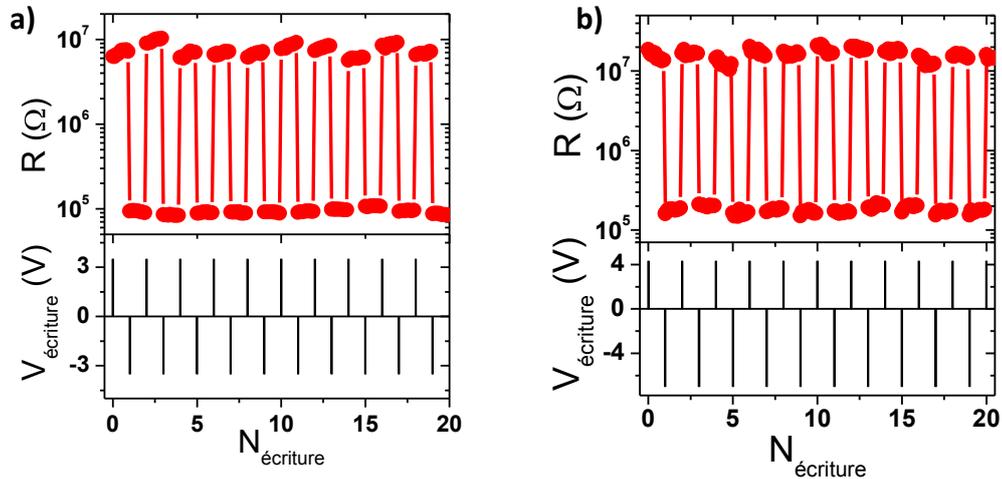


FIGURE 2.6 – a) Commutation ON/OFF à l'aide d'impulsions de 100  $\mu$ s. b) Commutation ON/OFF à l'aide d'impulsions de 10 ns. La tension de lecture est de 100 mV

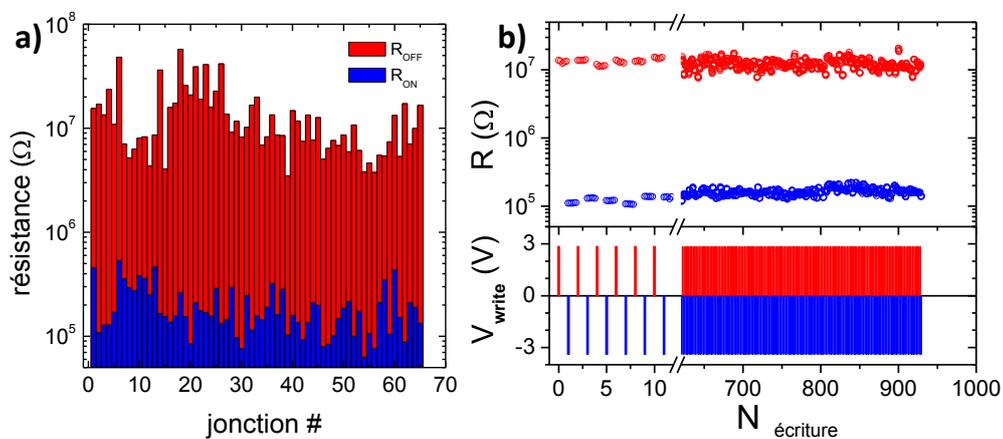


FIGURE 2.7 – a) Statistiques sur les niveaux de résistance des états ON et OFF sur 64 jonctions. b) Commutation ON/OFF sur près de 1000 cycles.

Les états ON et OFF sont similaires sur les 64 jonctions mesurées et le rapport OFF/ON s'élève à environ 83 en moyenne (c.f. figure 2.7a). On peut basculer entre l'état ON et OFF de manière stable et reproductible comme le montre la figure 2.7b pour 900 cycles d'écriture.

Garcia *et al.* ont montré le potentiel d'intégration en écrivant des matrices de nanodomains de 70 nm de diamètre par PFM (c.f. figure 2.8). La taille de ces nanodomains constitue une limite haute car elle approche la résolution du PFM. A l'aide d'une technique de nanoindentation [Bouzehouane 2003] nous avons fabriqué des nanojonctions d'environ 50 nm de diamètre (c.f. figure 2.8c). Une courbe de force est réalisée entre la pointe conductrice de l'AFM et l'échantillon. Le courant devient non nul lorsque la pointe approche la barrière tunnel de BTO. L'indentation s'arrête à ce moment, puis le nanotrou est élargi et nettoyé par un plasma d'oxygène. Le dépôt de l'électrode supérieure se fait par pulvérisation cathodique et complète la structure capacitive. La figure 2.8d montre la commutation d'une nanojonction à l'aide d'impulsions de 10 ns.

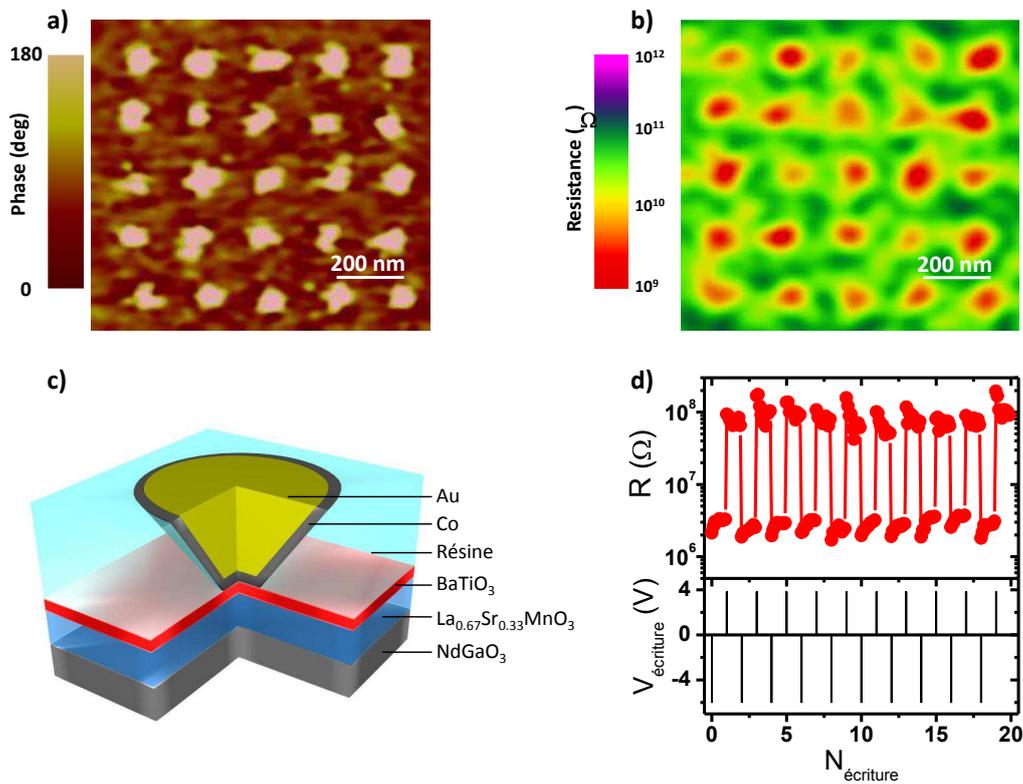


FIGURE 2.8 – a) Matrice de nanodomains écrits par PFM dans une structure BTO(2 nm)/LSMO. b) Cartographie de la résistance dans la zone écrite (figures extraite de [Garcia 2009]). c) Coupe schématique d'une nanojonction fabriquée par nanoindentation. d) Commutation ON/OFF d'une nanojonction par impulsions de 10 ns.

Le rapport OFF/ON mesuré est similaire à celui des jonctions de 500 nm de diamètre. Nous montrons ainsi le fort potentiel d'intégration de ce genre de dispositif. De plus, en extrapolant le courant d'écriture à l'aide de la dépendance de la TER en fonction de la tension, nous estimons la limite haute d'énergie d'écriture à 10 fJ.

## 2.4 Origines du *resistive switching*

Nous venons de montrer le potentiel de nos jonctions en tant qu'élément de mémoire binaire à lecture non-destructrice. Nous allons maintenant tenter de déterminer l'origine de la modulation de résistance dans nos dispositifs.

### 2.4.1 Indications de transport en régime tunnel

#### 2.4.1.1 Produit RA

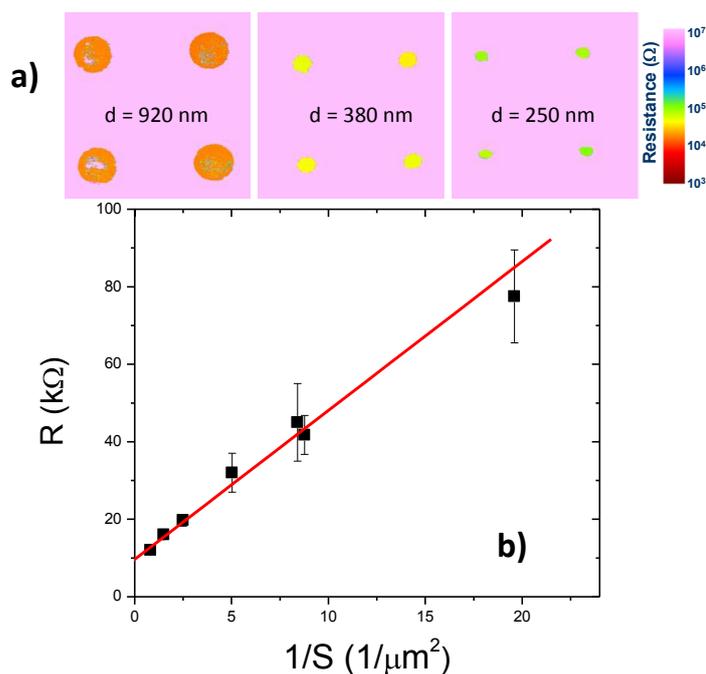


FIGURE 2.9 – a) Image résiscope : cartographie de la résistance mesurée sur plusieurs décades par AFM à pointe conductrice pour 3 diamètres de jonctions. b) Evolution de la résistance des jonctions en fonction de l'inverse de leurs surfaces.

Une barrière tunnel présente une caractéristique essentielle qui relie simplement la surface A de la jonction à sa résistance R par :  $RA = \text{constante}$ . La figure 2.9a montre des mesures réalisées au résiscope, technique de mesure de résistance locale sur plusieurs décades et à grande bande passante. Les jonctions mesurées ont des tailles allant de 250 nm à 920 nm de diamètre. Cette technique permet de cartographier la résistance de l'échantillon, autorisant ainsi la mesure de la résistance de plusieurs jonctions très rapidement. Ainsi, la couleur, i.e. la résistance, doit être uniforme sur l'électrode. Les points de l'image plus résistifs sur les électrodes de 920 nm de diamètre sont causés par des pertes temporaires de contact avec la pointe. L'analyse de l'image dans les régions des jonctions nous permet de déterminer la résistance moyenne que nous avons tracée sur la figure 2.9b en fonction de  $1/A$ . La dépendance obtenue est linéaire conformément à ce qu'on attend d'une jonction tunnel. Nous pouvons donc exclure un mécanisme de conduction locale par des filaments.

### 2.4.1.2 Mesure I(V)

Le courant dans les états ON et OFF est suffisant pour être facilement mesurable et nous permettre de réaliser des mesures de courant vs. tension I(V) dans les deux états saturés. Pour ce faire, nous étudions des jonctions de 700 nm de diamètre que nous saturons dans l'état ON et OFF à l'aide d'impulsions d'amplitude de respectivement -3.2 V et +2.9 V et d'une durée de 100  $\mu\text{s}$ . L'expression de la densité de courant pour une jonction tunnel à barrière trapézoïdale peut s'écrire comme [Gruverman 2009] :

$$J = C \frac{\exp \left\{ \alpha(V) \left[ \left( \varphi_2 - \frac{eV}{2} \right)^{3/2} - \left( \varphi_1 + \frac{eV}{2} \right)^{3/2} \right] \right\}}{\alpha^2(V) \left[ \left( \varphi_2 - \frac{eV}{2} \right)^{1/2} - \left( \varphi_1 + \frac{eV}{2} \right)^{1/2} \right]^2} \times \sinh \left\{ \frac{3}{2} \alpha(V) \left[ \left( \varphi_2 - \frac{eV}{2} \right)^{1/2} - \left( \varphi_1 + \frac{eV}{2} \right)^{1/2} \right] \frac{eV}{2} \right\} \quad (2.1)$$

Avec

$$C = -\frac{4em}{9\pi^2\hbar^3} \quad (2.2)$$

$$\alpha(V) = \frac{4d(2m)^{1/2}}{3\hbar(\phi_1 + eV - \phi_2)} \quad (2.3)$$

La figure 2.10a montre une mesure I(V) dans les états ON et OFF pour des tensions  $V_{lecture}$  inférieures aux tensions coercitives, comprises entre -0.5 V et +0.5 V. Les deux courbes sont non-linéaires et sans discontinuités. Des courbes I(V) additionnelles ont été mesurées dans un AFM à basse température, T

= 85 K, avec une pointe conductrice diamant. Les résultats ne montrent que peu de variations par rapport à la température ambiante (figure 2.10b). Le courant diminue d'un facteur 3 dans les deux états et le rapport OFF/ON demeure d'environ 100 à 85 K, ce qui est compatible avec un transport en régime tunnel.

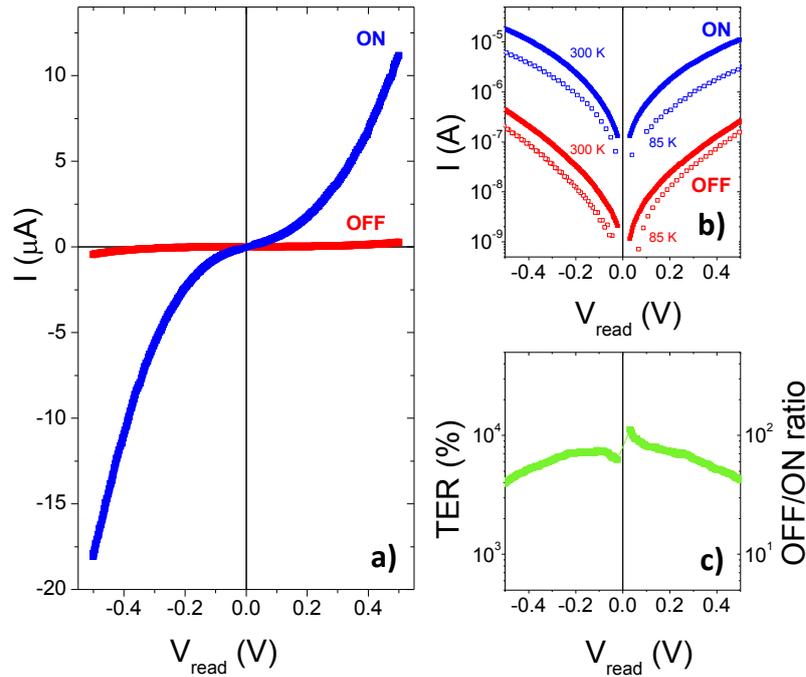


FIGURE 2.10 – a)  $I(V)$  dans une gamme de faible tension pour les états ON et OFF. b)  $|I(V)|$  dans les états ON et OFF à température ambiante et à basse température (85 K) en échelle semi-log. c) Evolution de la TER en fonction de la tension.

La convention d'application de la tension montre que pour l'état ON de basse résistance, la polarisation est orientée vers le cobalt. Le LSMO pourrait laisser pénétrer la polarisation dans l'électrode, à l'instar du SRO [Gerra 2006], et l'écrantage serait alors plus efficace car il s'effectuerait *in situ*. L'électrode inférieure de LSMO, déposée *in situ*, est cristalline et épitaxiée contrairement à l'électrode supérieure de Co, déposée *ex situ*, qui est texturée. L'interface avec le cobalt pourrait présenter des plans atomiques oxydés qui peuvent modifier l'écrantage effectif [Bocher 2012]. Stengel *et al.* ont montré que le type de liaison ferroélectrique/métal affecte aussi l'écrantage effectif de l'électrode [Stengel 2009]. Ces effets pourraient expliquer que le sens de l'effet de TER est inversé par rapport à ce qu'on attend des modèles basés sur un changement

de profil électrostatique sous l'hypothèse que l'écrantage du cobalt est plus efficace que celui du LSMO [Zhuravlev 2005, Kohlstedt 2005, Pantel 2010].

L'ajustement des courbes  $I(V)$  en figure 2.11 à l'aide de l'équation 2.1 est excellent. La surface de la jonction est mesurée par imagerie AFM et donne un diamètre d'environ 700 nm. La barrière a une épaisseur de 2 nm et l'effet piézoélectrique est négligé. En passant de l'état ON vers l'état OFF,  $\Phi_1$  augmente tandis que  $\Phi_2$  diminue. Cela reflète l'effet électrostatique qui déforme la barrière selon un point de bascule. La qualité des ajustements est très sensible à la valeur de la masse effective, et nous obtenons des valeurs qui sont assez proches de la masse de l'électron libre. Le changement de masse effective issu des ajustements pourrait traduire des changements dans structure de bande complexe. Les ajustements indiquent que le transport peut être décrit par une conduction tunnel à travers une barrière trapézoïdale dont la modulation de hauteur moyenne est responsable de l'effet de TER.

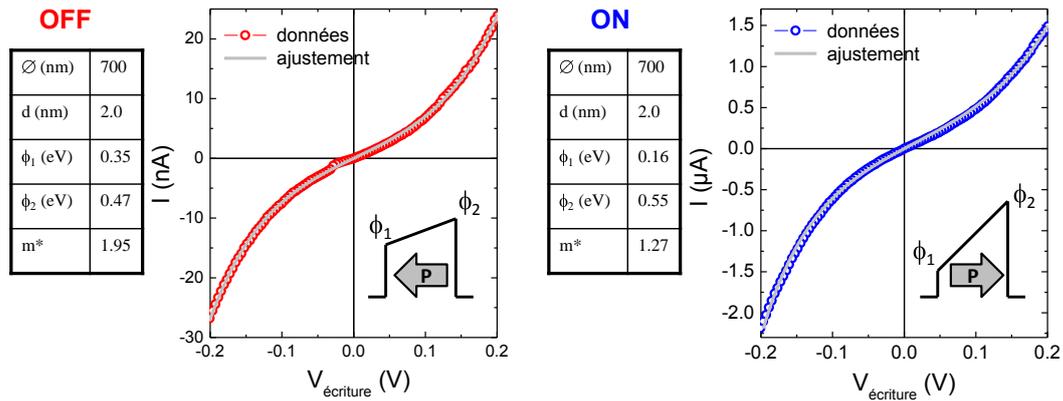


FIGURE 2.11 – Caractéristiques  $I(V)$  dans les états OFF (en rouge) et ON (en bleu). Les ajustements des données expérimentales à l'aide de l'équation 2.1 avec les paramètres des tableaux sont en trait plein gris.

## 2.4.2 Caractérisation ferroélectrique

### 2.4.2.1 Stabilité de la piézoréponse

Nous avons entrepris de vérifier que le BTO est ferroélectrique en écrivant des domaines *up* et *down* dans des échantillons similaires à ceux lithographiés. Après l'écriture des domaines avec un pointe platine de raideur 40 N/m, le contraste de phase est visuellement toujours présent après 3 jours ce qui exclut les artefacts dus à des accumulations de charges (c.f. figure 2.12). Par ailleurs, l'épaisseur du BTO étant de 2 nm, on pourrait s'attendre à une relaxation des

domaines vers un état multi-domaines sous l'effet du champ dépolarisant résiduel [Kim 2005]. Cependant, Pertsev *et al.* ont prédit qu'un état monodomaine pouvait être stable même à quelques nanomètres d'épaisseur [Pertsev 2007]. Ainsi, la stabilité des monodomaines sur une échelle de temps de 3 jours est une indication forte de ferroélectricité.

Dans le cas des échantillons sans électrode supérieure, des adsorbats écrantent partiellement ou totalement les charges de polarisation. Les échantillons lithographiés disposent d'une électrode supérieure de Co (10 nm)/Au (10 nm) et les conditions à l'interface sont donc modifiées. Afin de mesurer la réponse de la barrière ferroélectrique sous l'électrode, nous avons procédé à des mesures de spectroscopie PFM.

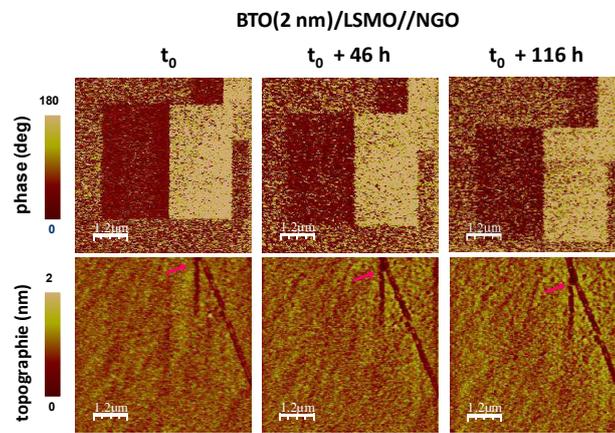


FIGURE 2.12 – Ecriture de monodomaines avec un microscope PFM. Rétention des monodomaines après 46 h et 116 h.

#### 2.4.2.2 Spectroscopie PFM à travers l'électrode

Nos jonctions sont élaborées sur la base d'une couche mince de BTO de 2 nm fortement contrainte (-3.2 %). La faible épaisseur peut réduire l'amplitude de la piézoréponse. De plus, la contrainte et le *clamping* du substrat a potentiellement pour effet de réduire le coefficient  $d_{33}$  et donc aussi l'amplitude de la piézoréponse. D'autre part, en raison de la faible épaisseur, la tension coercitive impose l'utilisation d'une faible tension alternative pour la lecture des domaines et cela diminue encore l'amplitude de la piézoréponse ( $\Delta t = d_{33}V_{AC}$ ). Enfin, l'électrode supérieure de 20 nm d'épaisseur et peut encore amortir l'amplitude du signal. C'est pourquoi nous avons utilisé une technique commerciale dénommée DART (pour Dual AC Resonance Tracking) afin d'augmenter le rapport signal/bruit. Cette technique consiste à exciter le

système complet levier/pointe/ferroélectrique proche de sa fréquence de résonance. L'amplitude de la réponse mécanique est ainsi fortement amplifiée et cela facilite la détection du signal de piézoréponse à travers l'électrode (figure 2.13a). Les résultats 2.13 présentent les points caractéristiques de mesure de spectroscopie PFM d'un matériau ferroélectrique. La phase est bien définie et son contraste atteint quasiment 180° (figure 2.13b). L'amplitude sature bien vers les tensions maximales appliquées et les minima correspondent aux tensions coercitives relevées sur la mesure de la phase (figure 2.13c). L'application d'impulsions de durée 100  $\mu$ s et d'amplitudes  $V_{pulse}$  négativement croissants provoque le basculement de l'état OFF vers l'état ON pour  $V_{pulse} < -2.25$  V (figure 2.13d).

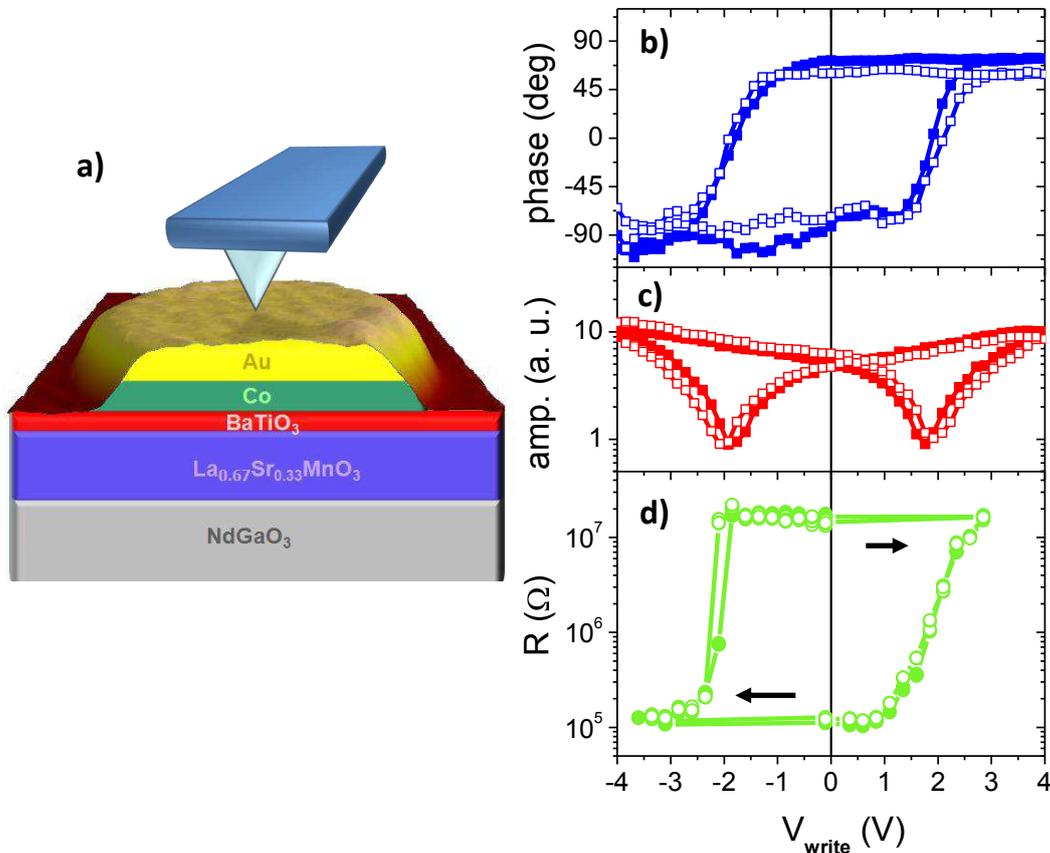


FIGURE 2.13 – a) Spectroscopie PFM à travers l'électrode supérieure. b) Phase et c) Amplitude du signal PFM pour deux mesures successives (symboles creux et pleins). d) Résistance vs. tension d'écriture mesurée à faible tension de lecture.

Le retour vers l'état OFF par l'application d'impulsions positives n'est pas aussi abrupt et traduit un comportement memristif que nous analyserons

dans le prochain chapitre. Les tensions coercitives du *resistive switching* sont en accord avec celles du renversement de la polarisation ( $\pm 2$  V).

Finalement, nous avons montré dans nos dispositifs que le transport s'établissait en régime tunnel et que le BTO était ferroélectrique en couche tunnel ultra-mince. La coïncidence des tensions coercitives du basculement ferroélectrique et du basculement de la résistance apporte un indice important, et nécessaire [Kohlstedt 2008], de modulation de conductance tunnel par la ferroélectricité *via* une modification de la transmission de la barrière tunnel.

### 2.4.2.3 Imagerie PFM à travers l'électrode

Afin de réaliser de l'imagerie PFM à travers l'électrode supérieure, nous avons étudié un autre échantillon dont la barrière est plus épaisse (3 nm de BTO), et dont l'électrode supérieure est plus fine (Co (3 nm)/Au (3 nm)). Nous avons vu pour l'échantillon précédent de BTO (2 nm) que le passage de l'état ON vers OFF pouvait être progressif (c.f. figure 2.13d). Cette échantillon de BTO (3 nm) se comporte de façon similaire. Nous avons donc fait varier la résistance et pour chaque niveau intermédiaire, nous avons cherché à réaliser une image PFM à travers l'électrode. La tâche s'est avérée délicate en raison de nombreux problèmes : détérioration de l'électrode consécutive aux multiples passages de la pointe, contact électrique intermittent en raison de la faible force de contact utilisée afin de préserver les électrodes, faible signal de piézoréponse pour les raisons déjà expliquées. Malgré tout nous avons réussi à obtenir les images PFM correspondant à plusieurs niveaux de résistance intermédiaires dans des jonctions de 300 nm de diamètre (c.f. figure 2.14a, 2.15a). Afin d'obtenir une amplitude de signal piézoréponse mesurable, une tension AC de  $V_{pp} = 1$  V est appliquée. Cette tension est suffisante pour déstabiliser l'état de polarisation intermédiaire. C'est pourquoi une faible tension DC négative  $V_{DC} = -0.1$  V a été ajoutée à la tension AC de lecture afin préserver l'état de polarisation. La rémanence de l'état de polarisation est chaque fois vérifiée par la mesure de la résistance *avant* et *après* l'image PFM. Dans l'état ①, la phase est noire dans la quasi totalité de la jonction, indiquant une polarisation homogène pointant vers le cobalt (domaine *up*). La résistance correspondant à cet état ① est proche du niveau de l'état ON ( $R = 3 \cdot 10^5 \Omega$ ). A mesure que la résistance augmente, états ① à ⑤, les images PFM correspondantes révèlent une fraction croissante de domaines pointant vers le LSMO (domaines *down*). L'état ⑤ est majoritairement constitué de domaines pointant vers le LSMO et la résistance correspondante est proche de l'état OFF ( $R = 2 \cdot 10^7 \Omega$ ). De manière inverse, la baisse progressive de la résistance, états ⑤ à ⑧, est corrélée avec une fraction croissante de domaines *up* orientés vers le cobalt.

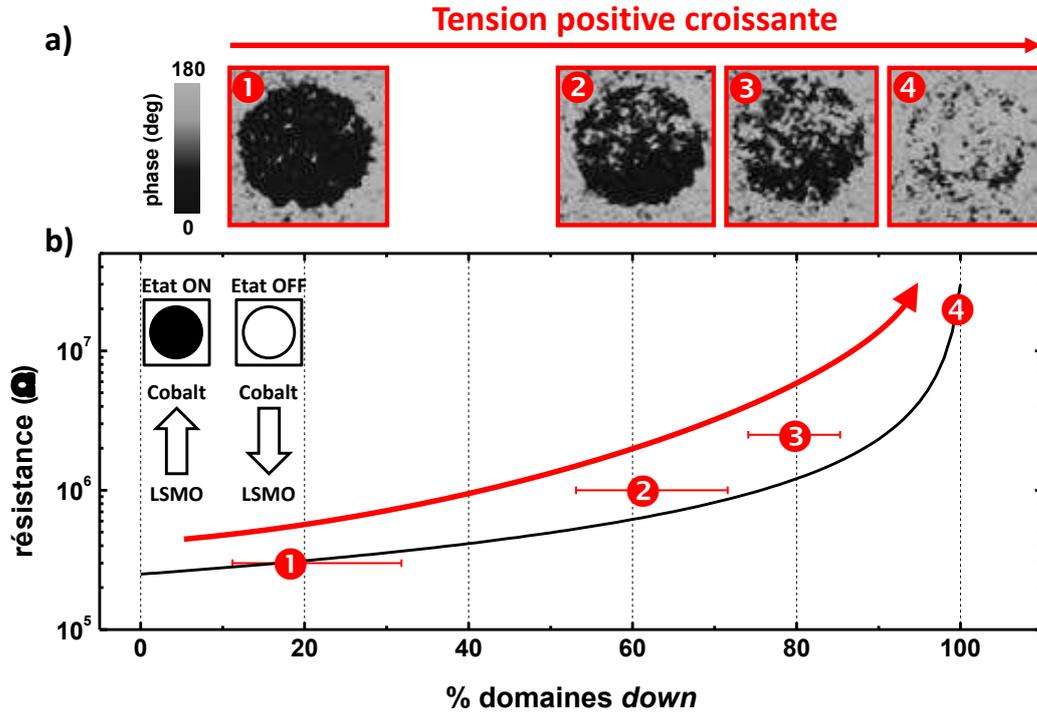


FIGURE 2.14 – a) Images PFM obtenues à divers niveaux de résistance intermédiaire. b) Mesure de la résistance les états intermédiaires (symboles numérotés). Trait noir : résistance calculée à partir d’un modèle de canaux de résistance en parallèle. En insert, illustration schématique des images PFM de phase attendues dans les états saturés.

Ces résultats indiquent une fois de plus que la modulation de résistance est bien liée à la ferroélectricité.

On considère un modèle simple de canaux de résistance en parallèle correspondant à la conductance des régions de polarisation orientée vers le cobalt et vers le LSMO (c.f. figure 2.16). Nous pouvons calculer la résistance totale en fonction de la fraction relative de domaines *down* pointant vers le LSMO définie par

$$\frac{1}{R} = \frac{s}{R_{OFF}} - \frac{(1-s)}{R_{on}} \quad (2.4)$$

Cette proportion varie donc de 1 pour l’état OFF  $P_{down}$  à 0 pour l’état ON  $P_{up}$ . Les calculs de la résistance dans les figures 2.14b et 2.15b en trait noir plein décrivent bien les variations de résistance mesurées expérimentalement en fonction des proportions de surface des domaines *down* issues des images PFM. Les parois ferroélectriques peuvent être conductrices lorsqu’elles sont chargées.

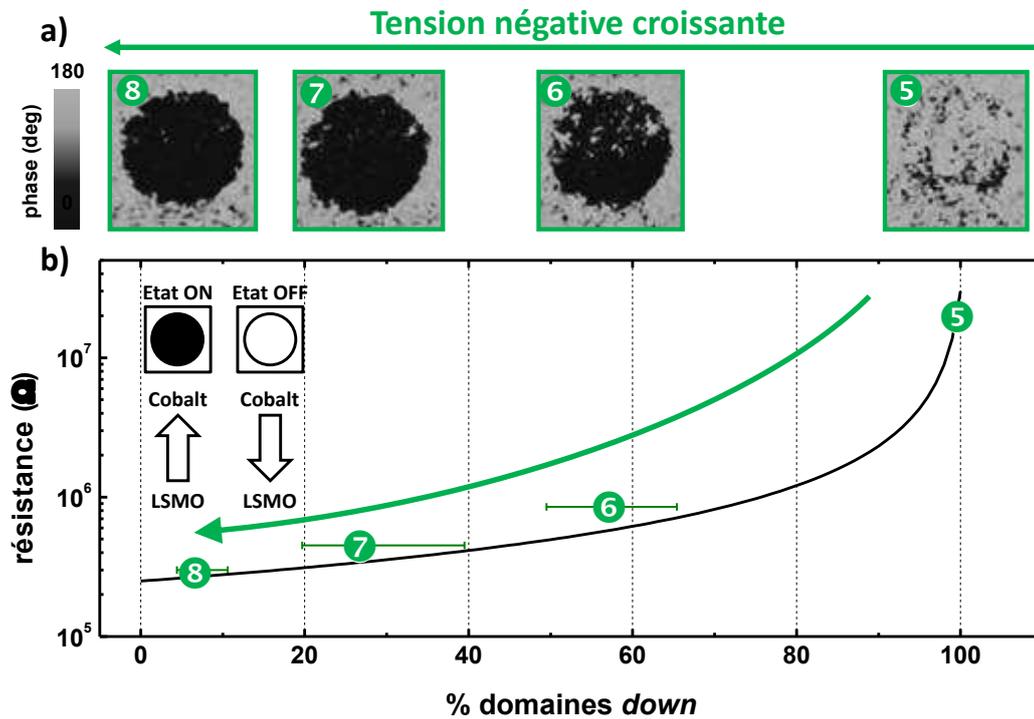


FIGURE 2.15 – Idem figure 2.14 pour des diminutions de résistance.

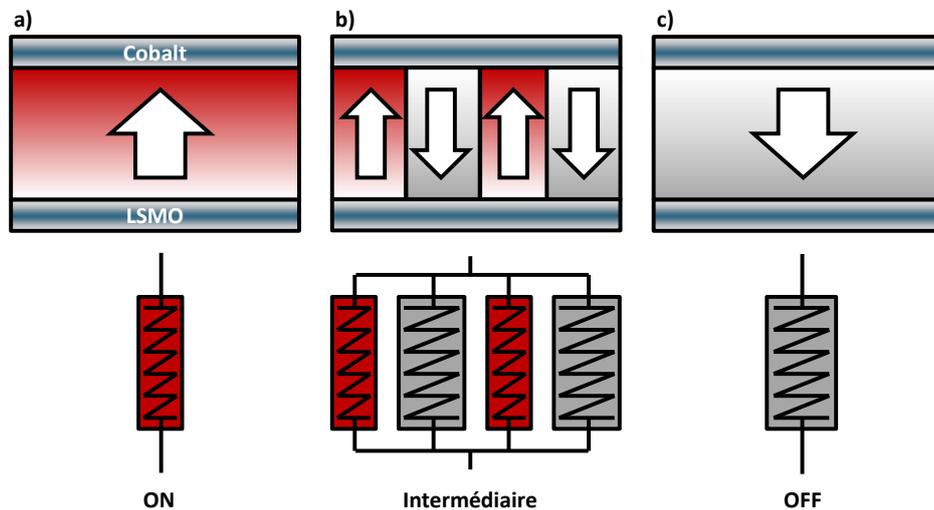


FIGURE 2.16 – a) Etat ON : polarisation orientée vers le cobalt. b) Etat intermédiaire : polarisation multi-domaines. c) Etat OFF : polarisation orientée vers le LSMO.

Le bon accord des données expérimentales avec la description à partir du modèle est compatible avec notre description du système en termes de parois à 180° (non chargées). Ces résultats viennent renforcer le fait que la modulation de résistance dans nos jonctions est bien d'origine ferroélectrique.

## 2.5 Discussion

La conception et l'étude de structures capacitives nous a permis de valider le concept de jonction tunnel ferroélectrique tout solide. Les rapports OFF/ON mesurés s'élèvent à 100 et varient peu avec la tension appliquée. La commutation est possible avec des impulsions de 10 ns correspondant à une énergie d'écriture de 10 fJ. Comme le résume le tableau en figure 2.17, le concept de mémoire tunnel ferroélectrique (FTRAM) à lecture non-destructrice est comparé dans le tableau ci-dessous avec les technologies existantes ou émergentes.

	DRAM	SRAM	NAND Flash	Trapping charge	FeRAM	MRAM	PCM	FTRAM
<b>Mécanisme de stockage</b>	Capacité chargée	Assemblage de portes logiques	Grille flottante chargée	Charges piégées dans grille isolante	Polarisation ferroélectrique	Aimantation	Phase amorphe/cristalline	Polarisation ferroélectrique
	1T1C	6T	1T	1T	1T1C	1(2)T1C	1T1R	1T1R
<b>Éléments de cellule</b>	50	65	90	50	180	130	65	50
<b>Taille du motif (nm)</b>	6F <sup>2</sup>	140F <sup>2</sup>	5F <sup>2</sup>	6F <sup>2</sup>	22F <sup>2</sup>	45F <sup>2</sup>	16F <sup>2</sup>	16F <sup>2</sup>
<b>Aire de la cellule</b>	<10 ns	0.3 ns	0.1 ms	20 μs	10 ns	20 ns	50 ns	10 ns
<b>temps écriture</b>	64 ms	0	> 10 y	> 10 y	> 10 y	>10 y	>10 y	> 5 days
<b>temps de rétention</b>	>1E16	>1E16	>1E5	>1E5	1.00E+14	>1E16	1.00E+09	>900
<b>Endurance (cycles)</b>	2.5	2.5	15	8	0.9-3.3	1.5	3	3
<b>Tension d'écriture</b>	1.8	1	2	1.6	0.9-3.3	1.5	3	0.1-1
<b>Tension de lecture</b>	5 fJ	0.7 fJ	10 fJ	100 fJ	30 fJ	100 pJ	6 pJ	<10fJ
<b>Energie d'écriture</b>								

FIGURE 2.17 – Tableau récapitulatif des technologies de mémoires actuelles et émergentes.

L'énergie minimale d'écriture est potentiellement inférieure à 10 fJ. L'extrapolation de données expérimentales prévoit un temps de retournement de polarisation ferroélectrique inférieur à la picoseconde dans le cas du PZT [Jiang 2012], ce qui est bien inférieur aux performances obtenues ( $\approx 100$  ps) dans les systèmes à électromigration [Torrezan 2011]. Le gain en énergie pourrait alors être de plusieurs ordres de grandeur. Il serait donc intéressant de sonder les dynamiques ultra-rapides dans nos structures. Il faudrait concevoir une configuration avec électrodes déportées afin de connecter une chaîne de mesure à grande bande passante. Nos expériences de fatigue n'ont mesuré que des cycles allant jusqu'à 1000 écritures. L'étude de la fatigue devra être approfondie par exemple en changeant les électrodes.

# Memristor ferroélectrique BaTiO<sub>3</sub>

---

Comme nous l'avons précédemment vu, l'orientation de la polarisation électrique d'une jonction tunnel ferroélectrique influence grandement sa conductance. Le contraste de résistance entre l'état ON et OFF étant typiquement de plusieurs ordres de grandeur, le principe est très attrayant pour la conception de mémoires binaires de type FTRAM. Il est aussi possible d'exploiter un degré de liberté supplémentaire du système, la structure en domaines ferroélectriques, afin de produire un effet memristif. Cet effet est déjà observable pour les tensions positives sur la courbe  $R(V)$  mesurée lors de l'étude sur les FTRAMs (c.f. figure 2.13). Nous allons donc étudier le comportement memristif de nos jonctions et nous allons tenter d'en comprendre les mécanismes.

## 3.1 Echantillons étudiés

Les échantillons utilisés sont les mêmes que pour l'étude sur les FTRAMs. Les résultats sont donc présentés pour des structures Au (10 nm)/Co (10 nm)/BTO (2 nm)/LSMO. Le montage expérimental utilisé reste identique. Il permet d'appliquer des impulsions de durée comprise entre 10 ns et 200 ns. La faible tension non perturbatrice de lecture est  $V_{read} = 100$  mV. Le diamètre des jonctions mesurées est de 350 nm.

## 3.2 Comportement memristif

### 3.2.1 Influence de l'amplitude des impulsions

La figure 3.1a montre plusieurs cycles de mesure de résistance en fonction de l'amplitude des impulsions appliquées, la durée des impulsions étant fixée à 20 ns. Lorsque nous appliquons successivement des impulsions d'amplitude variant progressivement entre +4.2 V et -5.6 V, nous observons un cycle hystérétique entre les deux valeurs de résistance haute,  $R_{OFF} \sim 4.6 \cdot 10^7 \Omega$ , et de résistance basse,  $R_{ON} \sim 1.6 \cdot 10^5 \Omega$ . Le rapport OFF/ON est d'environ 300 pour cette jonction.

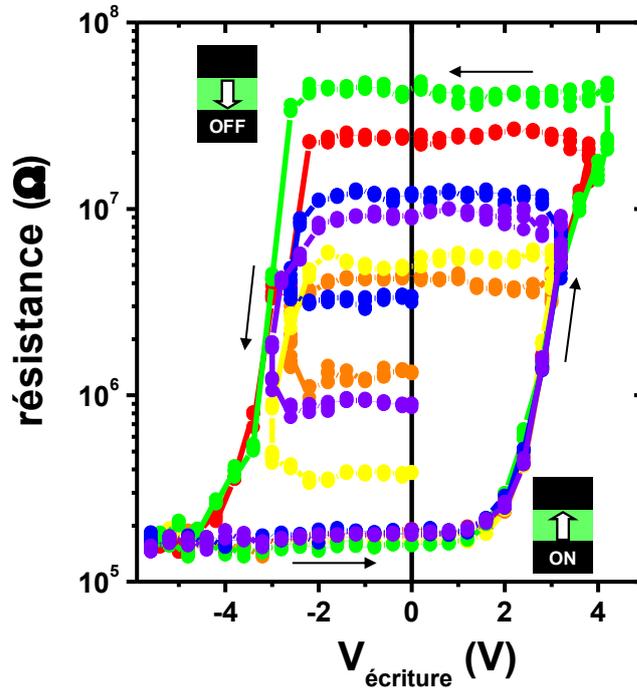


FIGURE 3.1 – Cycles hystérétiques de résistance en fonction de l’amplitude d’impulsion. A partir de l’état ON, les courbes de différentes couleurs correspondent à diverses excursions en amplitude.

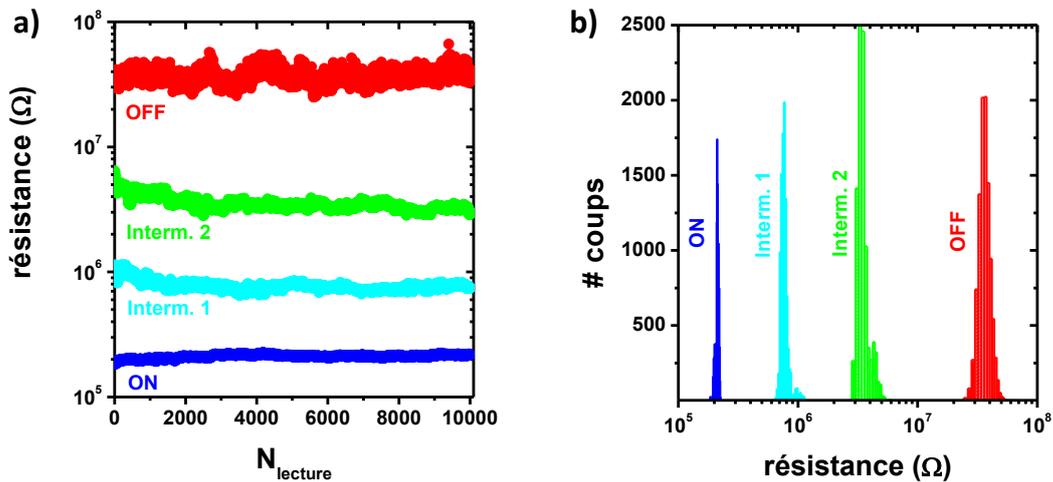


FIGURE 3.2 – a) Stabilité à la lecture des états ON, OFF et de deux niveaux de résistance intermédiaires. La tension de lecture est de 100 mV et la mesure dure environ une heure. b) Histogramme cumulatif des niveaux de résistance.

Cette commutation résistive est asymétrique en fonction de la tension appliquée, ce qui pourrait être expliqué par des dipôles électriques figés qui favorisent la croissance ou la nucléation de domaines ferroélectriques orientés vers le LSMO. En changeant l'excursion de l'amplitude des impulsions appliquées, nous pouvons stabiliser la résistance de la jonction sur de nombreux niveaux comme illustré par les cycles de différentes couleurs de la figure 3.1 [Chanthbouala 2012b]. A l'instar des états ON et OFF, les états intermédiaires sont aussi stables sous l'application de la faible tension de lecture comme l'illustre la figure 3.2a et b.

### 3.2.2 Influence de la durée des impulsions

Afin d'étudier l'influence de la durée des impulsions, une série d'expériences a été réalisée de manière systématique. ① L'état initial est établi à l'aide de 4 impulsions négatives « RESET », la résistance est alors basse ( $\approx 10^5 \Omega$ ). ② On applique ensuite 100 impulsions identiques, ce qui fait progressivement croître la résistance de la jonction (c.f. figure 3.3). Ce résultat montre l'influence de la durée des impulsions par un effet cumulatif. En répétant cette séquence pour des amplitudes croissantes, la résistance finale augmente ce qui confirme les résultats précédent. L'augmentation de la durée des impulsions entraîne aussi une augmentation de la résistance finale.

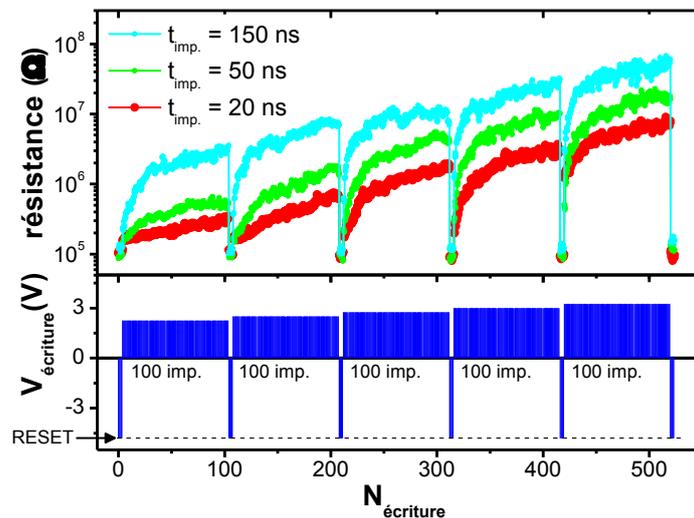


FIGURE 3.3 – Séquences de 100 impulsions identiques séparées par une réinitialisation à l'état ON. L'amplitude des impulsions est progressivement croissante. Les mesures sont montrées pour 3 durée d'impulsions (20, 50, 150 ns).

### 3.2.3 Evolution de la résistance : poids synaptique

Dans cette partie nous préparons la jonction dans l'état initial ON et nous appliquons des trains d'impulsions positives puis négatives d'amplitude constante suivi par des impulsions de réinitialisation vers l'état ON. Des séquences de 10 impulsions positives d'amplitude +2.9 V sont appliquées et amènent systématiquement la résistance à un niveau intermédiaire d'environ  $\sim 4.10^6 \Omega$  (c.f. figures 3.4a, b). Après chaque séquence d'impulsions positives, les impulsions négatives appliquées sont en nombre croissant et l'état de résistance final dépend du nombre d'impulsions négatives.

Dans une autre série d'expériences, des séquences impulsions positives en nombre croissant et d'amplitude +3 V sont appliquées, suivi par des séquences de 10 d'impulsions négatives d'amplitude -3 V (c.f. figures 3.4c, d). La résistance augmente avec le nombre d'impulsions positives, confirmant ainsi l'effet cumulatif déjà observé en figure 3.3. La résistance finale après la séquence d'impulsions négatives, juste avant la réinitialisation, dépend du niveau de résistance atteint après la séquence d'impulsions positives précédente.

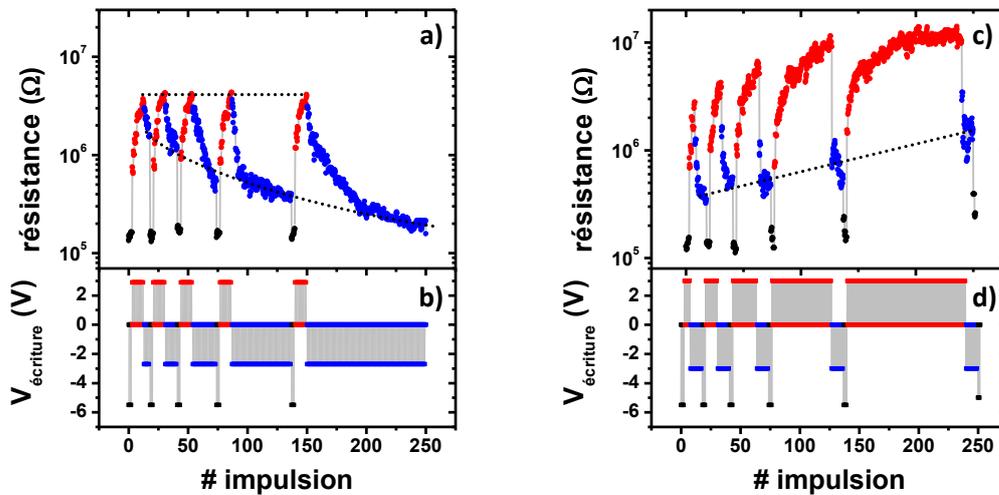


FIGURE 3.4 – Effet cumulatif des impulsions : influence du nombre d'impulsions négatives (a, b) en partant d'un état de résistance à peu près égal, et influence du nombre d'impulsions positives (c, d) sur le niveau final de résistance.

La résistance varie systématiquement de manière plus abrupte lorsqu'elle change de l'état OFF vers ON, le passage de l'état ON vers OFF étant plus doux. Cela reproduit l'asymétrie déjà observé lors de la mesure  $R(V_{écriture})$  en

fig. 2.13. Les mesures en figures 3.4a-d montrent qu'il est possible de contrôler la résistance entre les états ON et OFF en jouant sur la proportion d'impulsions positives et négatives d'amplitude adéquate. Cela facilite l'implémentation de la plasticité synaptique, notamment dans le cadre d'un apprentissage selon la règle STDP (avec la sommation d'impulsions pré et post-synaptique décalés temporellement). Nos dispositifs présentent donc un comportement memristif bipolaire qui facilite leur intégration dans des réseaux neuromorphiques contrairement à des dispositifs à changement de phase par exemple. Nous allons maintenant étudier les mécanismes à l'origine du comportement memristif de nos jonctions.

### 3.3 Interprétation : modèle de retournement de polarisation

A partir des mesures d'imagerie PFM présentées en figure 2.14a et 2.15a, nous avons constaté qu'il y avait une corrélation entre la proportion des domaines *up* et *down*. L'état ON correspond à une polarisation saturée qui pointe vers le cobalt, et l'état OFF correspond à une polarisation saturée qui pointe vers le LSMO. Les niveaux de résistance intermédiaires correspondent ainsi à une configuration multi-domaines.

A partir des mesures de résistance, nous pouvons retracer l'évolution de la fraction  $s$  (équation 2.4) en fonction du temps total cumulé d'impulsions. Chaque mesure est réalisée pour une même amplitude d'impulsion et pour une durée d'impulsion de 10 ns (c.f. figures 3.5a-f et 3.6a-f). Pour les impulsions positives l'état initial est ON avec  $s = 0$ , pour les impulsions négatives l'état initial est OFF avec  $s = 1$ . Tandis que la polarisation commence à se retourner dès la première impulsion positive, un temps d'attente est nécessaire avant d'amorcer le retournement de la polarisation de  $P_{down}$  vers  $P_{up}$  pour les impulsions négatives.

Ce comportement peut être expliqué par une asymétrie dans les processus de retournement. Des dipôles électriques orientés *down* sont piégés aux interfaces et stables à fort champ (c.f. figure 3.7). Le passage de  $P_{down}$  vers  $P_{up}$  s'opère à partir d'un état initial saturé uniforme  $P_{down}$ . Il faut donc activer des centres de nucléation, ce qui explique le temps d'attente observés pour les pulses négatifs en figure 3.5a-c. En revanche, l'état ON de polarisation  $P_{up}$  n'est donc jamais totalement saturé, les dipôles servent alors de centre de nucléation lors de l'application de pulses positifs pour le retournement rapide de  $P_{up}$  vers  $P_{down}$  (c.f. figure 3.5d-f). Le temps d'attente a été systématiquement observé comme l'illustre les mesures en figures 3.6a-c pour une autre jonction.

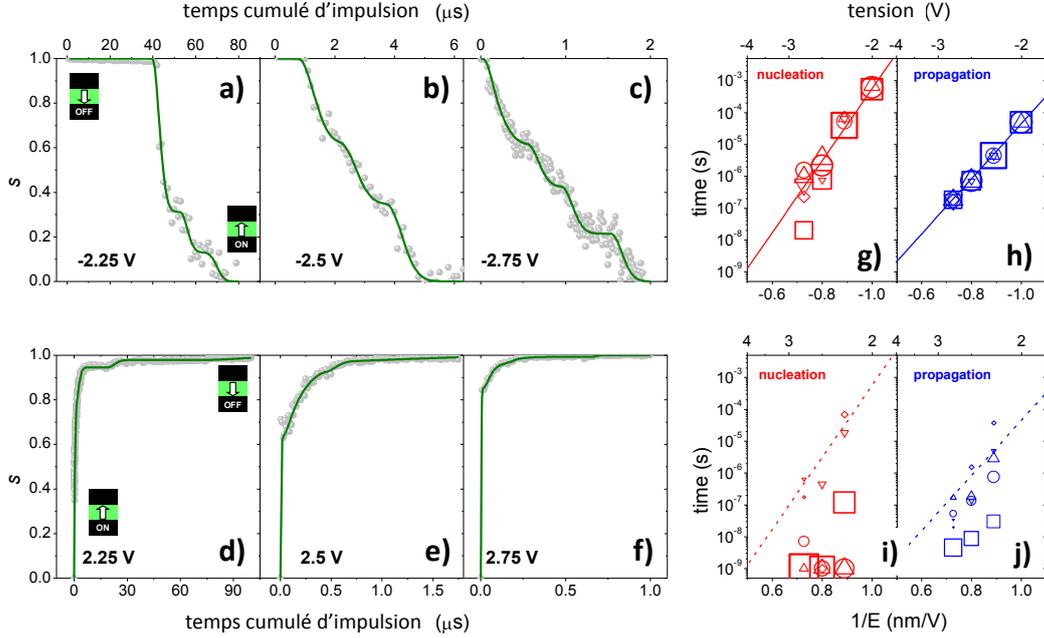


FIGURE 3.5 – a-c) Etat initial OFF : évolution du paramètre  $s$  vs. temps d’impulsions négatives cumulés. d-f) Etat initial ON : évolution du paramètre  $s$  vs. temps d’impulsions positives cumulés. Temps caractéristiques extraits des ajustements pour les transitions OFF vers ON (g, h) et ON vers OFF (i, j).

Pour les deux polarités d’impulsion, l’évolution du paramètre  $s$  présente des épaulements que nous interprétons comme étant des zones du matériau ayant des propriétés dynamiques différentes. On considère que le retournement de la polarisation s’effectue par propagation de paroi. On suppose que la surface de nos jonctions est partitionnée en plusieurs zones avec des cinétiques différentes : différents temps de nucléation, vitesses de propagation et nombre de centres de nucléation. Chaque zone est régie par le formalisme KAI et pour une zone  $i$  donnée, nous supposons que tous les centres de nucléation sont activés pour le même temps d’activation  $\tau_N^i$ , puis les domaines se propagent avec un temps caractéristique  $\tau_P^i$ , ces deux paramètres étant dépendants de la tension appliquée. Dès lors, pour un retournement de  $P_{up}$  vers  $P_{down}$ , le paramètre  $s$  peut être exprimé comme :

$$s = \sum_{i=1}^{N(i)} S_i * h(t - \tau_N^i) * \left\{ 1 - \exp \left[ -\frac{t - \tau_N^i}{\tau_P^i} \right]^2 \right\} \quad (3.1)$$

### 3.3. Interprétation : modèle de retournement de polarisation 143

Pour un retournement de  $P_{down}$  vers  $P_{up}$  :

$$s = 1 - \sum_{i=1}^{N(i)} S_i * h(t - \tau_N^i) * \left\{ 1 - \exp \left[ -\frac{t - \tau_N^i}{\tau_P^i} \right] \right\} \quad (3.2)$$

$S_i$  correspond à l'aire de chaque zone normalisée par rapport à la surface totale de la jonction ( $\sum_{i=1}^{N(i)} S_i = 1$ ) et  $h(t)$  est la fonction marche d'Heaviside.

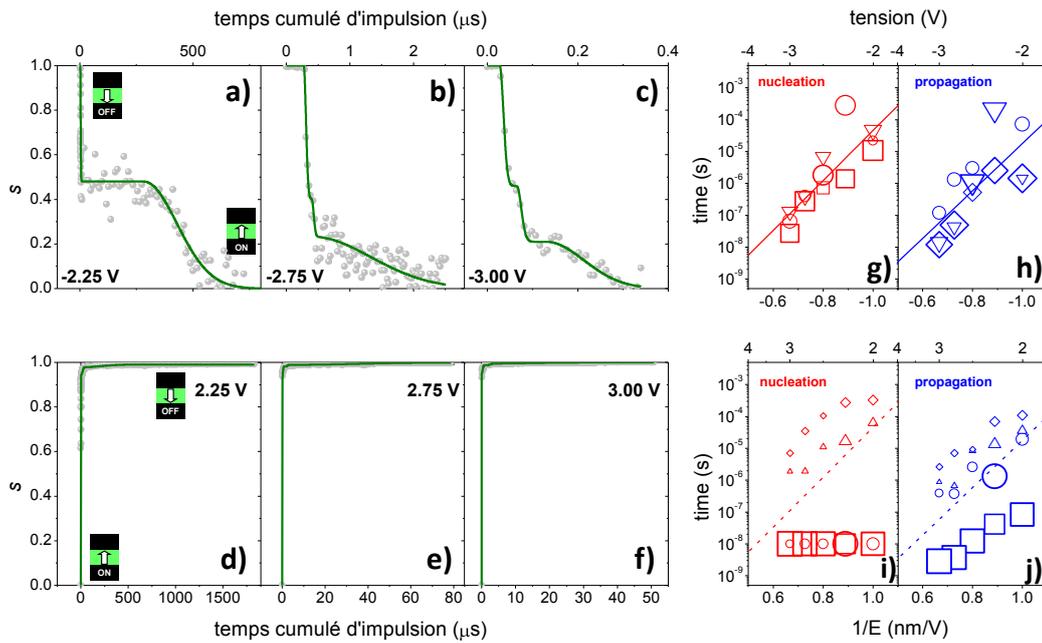


FIGURE 3.6 – Idem figure 3.5 pour une autre jonction

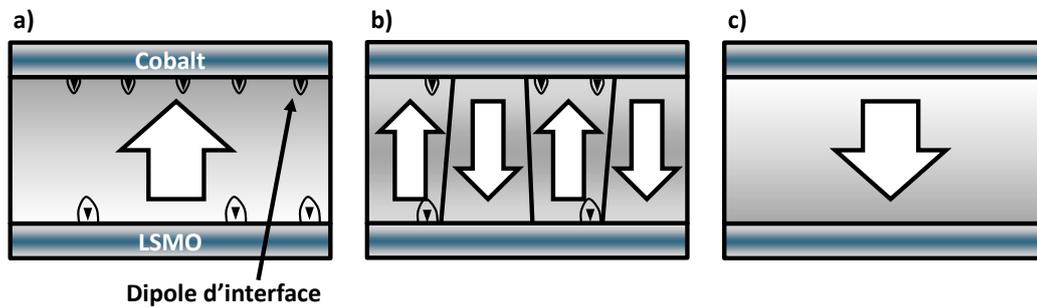


FIGURE 3.7 – a) Etat ON : existence de dipole aux interfaces. b) Etat intermédiaire : les dipôles peuvent servir de centre de nucléation. c) Etat OFF : la polarisation est saturée

Les figures 3.5a-c et d-f montrent des données expérimentales typiques en symboles gris ainsi que les ajustements, en tracé plein vert, à l'aide de l'équation 3.2 pour les impulsions négatives (figure 3.5a-c) et de l'équation 3.1 pour les impulsions positives (figure 3.5d-f) d'amplitude  $\pm 2.25$  V,  $\pm 2.5$  V et  $\pm 2.75$  V. Le modèle reproduit les données expérimentales sur plusieurs ordres de grandeur de temps cumulé. D'autre part, il permet aussi de reproduire les épaulements de l'évolution du paramètre  $s$  pour un nombre de zone  $N \leq 5$ . A partir des ajustements nous pouvons avoir accès aux temps caractéristiques de nucléation et de propagation pour chaque zone, récapitulés en fonction de l'inverse du champ électrique sur les figures 3.5g, h pour les impulsions négatives et 3.5i, j pour les impulsions positives. La taille de chacun des symboles est proportionnelle à la surface  $S_i$  de la zone concernée.

Nous nous concentrons d'abord sur le cas des impulsions négatives des figures 3.5a-c. Pour une tension donnée, un temps caractéristique unique de propagation permet de décrire l'expérience tandis que les temps caractéristiques de nucléation sont dispersés. Chaque zone est ainsi caractérisée par ses propriétés de nucléation qui diffèrent par une densité et/ou des énergies d'activation non uniformes concernant les centres d'activation. Néanmoins après nucléation, la propagation des domaines est homogène sur la surface de la jonction. Les deux paramètres de nucléation et de propagation suivent la loi de Merz, proportionnelle à  $\exp(-E_a/E)$  (figure 3.5g, h). Les champs d'activation pour la nucléation  $E_a(N)$  et la propagation  $E_a(P)$  sont du même ordre de grandeur, respectivement  $2.6 \cdot 10^{10}$  V/m et  $2.0 \cdot 10^{10}$  V/m. La littérature rapporte des valeurs très dispersées pour les champs d'activation, allant de  $4 \times 10^5$  V/m dans le bulk à  $2 \times 10^8$  V/m pour des nano-capacités de dimensions similaires à nos jonctions mais de 35 nm d'épaisseur. Les valeurs supérieures que nous trouvons peuvent être dues à la très forte contrainte imposée afin de stabiliser le caractère ferroélectrique de nos films tunnel de BTO.

Pour les tensions positives, le mécanisme de retournement est très différent. La majeure partie de la surface de la jonction est retournée sur un temps très court, figure 3.5d-f. La majorité des événements de nucléation s'opère pendant les 10 premières nanosecondes, soit en dessous de la résolution de notre montage expérimental. Ce résultat correspond aux symboles en figure 3.5i placés à  $t = 1$  ns. Ces temps caractéristiques de nucléation inférieurs à 10 ns sont cohérents avec l'hypothèse de dipôles électriques piégés aux interfaces qui servent de centres de nucléation pré-existants. Les domaines ainsi nucléés croissent rapidement, les temps caractéristiques de propagation obtenus sont inférieurs à 30 ns (figure 3.5j). Plusieurs raisons peuvent expliquer cette propagation rapide comme par exemple une forte densité de dipôles électriques piégés et/ou une contribution additionnelle au champ électrique effectif provenant de ces dipôles. Il se pourrait aussi que la densité de centres de nucléation soit très

importante et que le renversement soit en réalité limité par la nucléation. Ce cas de figure est en contradiction avec les hypothèses du modèle KAI.

Bien que la majorité de la surface de la jonction soit retournée très rapidement, la surface restante présente une dynamique comparable au cas des impulsions négatives. En effet, comme l'indique la figure 3.5i, pour les zones représentant une petite fraction de surface totale, les temps caractéristiques de nucléation pour les impulsions positives sont très supérieurs à 10 ns. Pour ces domaines qui ne sont pas issus de la croissance de domaines pré-existants, les temps de nucléation et propagation sont similaires à ceux du cas des impulsions négatives (en figure 3.5i et j), les symboles sont proches des ajustements en lignes pointillées provenant des impulsions négatives). Des résultats similaires ont été obtenus sur d'autres jonctions comme le montre la figure 3.6.

Nous proposons ainsi une expression analytique qui prévoit le comportement de notre memristor sur la base d'une description physique de la dynamique de domaine ferroélectrique. De manière générale, un système memristif peut être décrit ainsi :

$$V(t) = \mathfrak{R}(\sigma, V, i)i(t) \quad (3.3)$$

$$\frac{d\sigma}{dt} = f(\sigma, V, i)i(t) \quad (3.4)$$

où  $\sigma$  représente une ou plusieurs variables d'état,  $V$  est la tension,  $i$  le courant,  $t$  le temps et  $\mathfrak{R}$  et  $f$  sont des fonctions caractéristiques du système. La memristance  $\mathfrak{R}$  dépend de  $V$ ,  $t$  et  $\sigma$  qui est fonction du temps  $t$  comme l'indique l'équation 3.4. Les équations 3.3 et 3.4 impose un cadre strict pour la définition d'un memristor.

Dans nos jonctions tunnel ferroélectriques, nous prenons comme variable d'état la fraction de volume  $s$  dont la polarisation est orientée vers le bas, i.e.  $s = \sigma$ . En conséquence, en considérant un retournement de polarisation via une unique zone, l'évolution du paramètre peut être exprimée ainsi :

$$\frac{ds}{dt} = (1 - s) \times \left\{ \frac{2}{\tau_P(V)} \left( \frac{t - \tau_- N(V)}{\tau_P(V)} \right) \right\} = f(s, V, t) \quad (3.5)$$

La dynamique du memristor ferroélectrique peut être modélisée par une expression analytique basée sur des paramètres physiques du ferroélectrique.

## 3.4 Discussion

Nous avons démontré le comportement memristif de nos jonctions tunnel ferroélectriques à l'aide d'impulsions de courtes durées. Les impulsions ont

un effet cumulatif et leur amplitude a une influence sur la vitesse de variation de la résistance. L'équation 3.4 implique une variation continue de la résistance en fonction de  $V$ . Or dans notre cas, il existe une tension seuil à partir de laquelle les événements de nucléation peuvent se produire. Les jonctions ne sont donc pas formellement des memristors mais elles présentent un comportement memristif. Combiné aux nombreux niveaux intermédiaires de résistance sur plus de deux décades, ce comportement memristif est adapté aux applications neuromorphiques.

L'interprétation que nous avons donnée de la dynamique de retournement de la polarisation dans nos jonctions souffre de quelques lacunes. Tout d'abord, les images PFM ne reflètent pas la partition en plusieurs zones aux cinétiques différentes. Les images révèlent une nucléation progressive de nanodomains de manière assez uniforme sur la surface de la capacité. Ce comportement rappelle le travail de Merz [Merz 1954] dans lequel il est montré que dans un monocristal de BTO, le retournement de la polarisation s'effectue par nucléation de domaines plutôt que par propagation de paroi. Il interprète ce résultat en estimant que l'énergie de nucléation est inférieure au coût énergétique pour déplacer une paroi. Dans notre cas, nous pourrions être dans un état intermédiaire où la nucléation s'effectue en parallèle d'un déplacement de paroi en régime de *creep*. Cependant, l'interprétation des images PFM demeure un exercice délicat en raison d'un manque de résolution du PFM.

## Troisième partie

### Conclusion et perspectives

Durant ce travail de thèse, nous avons exploré deux nouveaux concepts de memristors. Dans des jonctions tunnel magnétiques ou ferroélectrique, en exploitant les effets de TMR et TER, le comportement memristif est obtenu grâce au retournement progressif de, respectivement, l'aimantation et de la polarisation électrique. Dans les jonctions tunnel magnétiques que nous avons étudiées, une paroi magnétique mesure environ 100 nm de large. Etant donné les dimensions latérales des jonctions, l'idée est de déplacer une unique paroi par effet de transfert de spin. Dans les jonctions tunnel ferroélectriques, la taille d'une paroi est de l'ordre du nanomètre. Le comportement memristif peut donc être obtenu soit par nucléation et croissance d'un ou quelques domaines, soit par nucléation de nombreux nanodomains. Ces scénarii dépendent principalement du désordre dans la couche ferroélectrique.

Généralement, le déplacement de paroi par transfert de spin est réalisé en injectant le courant dans le plan de la couche contenant la paroi. Cette configuration latérale nécessite de fortes densités de courant ( $\approx 10^8 \text{ A.cm}^{-2}$ ) et génère de modestes vitesses de déplacement ( $< 150 \text{ m.s}^{-1}$ ). De plus, cela nécessite trois contacts électriques pour l'injection de courant et la mesure de résistance, ce qui limite fortement le potentiel d'intégration. Afin de répondre à ces problèmes, le memristor spintronique est basé sur le déplacement de paroi en injection perpendiculaire. L'utilisation de jonctions tunnel magnétiques permet de traduire les déplacements de la paroi en une variation notable de résistance. L'injection perpendiculaire permet de profiter de la forte amplitude des couples de transfert de spin, notamment du couple hors-plan qui est autrement pratiquement nul dans les jonctions métalliques de type vanne de spin. Nous avons ainsi montré que le déplacement de paroi magnétique est plus efficace en injection perpendiculaire ( $10^6$  vs.  $10^8 \text{ A.cm}^{-2}$ ). Les mesures en temps réel de déplacement de paroi ont relevé des vitesses proches de 600 m/s, ce qui se révèle bien plus rapide que dans la configuration d'injection latérale ( $< 150 \text{ m.s}^{-1}$ ). L'amélioration de la chaîne de mesure par le nouveau doctorant Steven Lequeux et le post-doctorant Joao Sampaio a permis de mesurer le déplacement de paroi en *single shot*. Les mesures de la vitesse en fonction de la densité de courant ne montrent pas de phénomène de *Walker breakdown*. Grâce à des simulations micromagnétiques, nous pouvons attribuer cet effet à l'inertie de la paroi dans une couche mince de faible longueur (résultats en attente de publication).

Dans nos systèmes où les aimantations de la couche de référence et de la couche libre sont colinéaires, c'est le couple de transfert de spin hors-plan qui est responsable du déplacement de la paroi. Nous avons pu mesurer ce couple par technique de spin-diode. L'asymétrie des jonctions (épaisseur

---

et composition des électrodes) modifie sa dépendance en tension de sorte que son signe change avec celui du courant, et permet le déplacement de la paroi dans les deux sens. L'origine du couple hors-plan est encore le sujet de nombreuses études et la possibilité d'optimiser sa dépendance en tension ainsi que son amplitude permettrait de maximiser son efficacité dans de nombreuses applications (déplacement de paroi pour les DW-STT-MRAM, STT-MRAM ou encore détection de signal RF). L'efficacité de l'injection CPP se compare bien avec les structures avec effet Rashba ou effet de spin-Hall, elle est potentiellement plus importante dans la configuration où les aimantations du polariseur et de la couche libre sont perpendiculaires.

Les structures magnétorésistives actuelles sont matures et compatibles avec la technologie CMOS comme le montre l'implantation à un niveau *end-of-back-end* dans des dispositifs MRAM commerciaux (Everspin<sup>®</sup>, NEC<sup>®</sup>). Le memristor spintronique est donc très proche du dispositif opérationnel, il lui manque une plus grande gamme de niveaux intermédiaires de résistance qui pourrait être obtenue par une ingénierie de piégeage par exemple. Cependant une plus grande amplitude de TMR serait souhaitable pour l'intégration du memristor spintronique dans un réseau de neurones artificiels (la TMR record étant de plus de 600 %).

Concernant les jonctions tunnel ferroélectriques, nous avons démontré le fort potentiel applicatif pour des mémoires binaires. La commutation de la résistance est possible avec l'application d'impulsion de 10 ns de durée et l'énergie d'écriture correspondante est de l'ordre de 10 fJ. L'origine de l'effet de TER était controversée depuis les travaux pionniers de Garcia *et al.* et Gruverman *et al.*. Aujourd'hui, grâce à la corrélation entre structure en domaines et niveau de résistance, nous apportons la preuve du lien entre modulation de résistance et ferroélectricité. L'activité de recherche sur l'effet de TER s'intensifie depuis quelques années et des stratégies innovantes ont récemment émergé afin d'augmenter son amplitude. Yin *et al.* induisent par la ferroélectricité un changement de phase d'une fine couche de LCMO insérée à une interface d'une jonction LSMO/LCMO/BTO/LSMO [Yin 2013]. Les auteurs rapportent ainsi un effet de TER de 10<sup>4</sup> % dont l'origine magnétoélectrique diffère des mécanismes classiques [Kohlstedt 2005, Zhuravlev 2005]. Wen *et al.* rapportent un effet de TER de 10<sup>6</sup> % dans des jonctions de type Pt/BTO/Nb :STO. Les auteurs interprètent leurs résultats par la modulation de l'épaisseur de barrière effective liée à la déplétion du semiconducteur par effet de champ électrique [Wen 2013]. Si le concept est très prometteur pour fabriquer des mémoires binaires non-volatile, contrairement aux jonctions tunnel magnétiques, les jonctions tunnel ferroélectriques que nous avons

étudiées ne sont pas compatibles avec la technologie CMOS en raison du caractère cristallin et épitaxié contraint des couches minces.

Nous avons montré que les jonctions tunnel ferroélectriques présentaient un comportement memristif. Nous avons pu le décrire sur la base des paramètres physiques de la couche ferroélectrique grâce aux mesures de transport et à l'imagerie PFM. Cependant la faiblesse du signal de piézoréponse ainsi que la résolution spatiale des mesures limitent l'interprétation des images. D'autres systèmes avec un plus fort signal d'amplitude se prêtent mieux à l'imagerie comme c'est le cas pour les résultats obtenus dans notre groupe par Yamada *et al.* qui fait directement suite à ce travail de thèse. Les auteurs étudient le  $\text{BiFeO}_3$  en phase super tétragonale [Yamada 2013] et leurs mesures PFM de phase semblent montrer la croissance d'un unique domaine. Le rapport OFF/ON atteint  $10^6\%$  à température ambiante. L'amplitude de l'effet couplée à l'imagerie PFM permet une analyse plus fine, comparée à nos jonctions à base de BTO, de la dynamique de nucléation et de propagation de domaines dans ce système. Nous montrons à l'aide de l'effet de TER que les mesures de transport constituent une sonde très sensible à l'état de polarisation et permettent donc d'étudier la dynamique de retournement de polarisation dans des couches ultraminces ferroélectriques. Un nouveau doctorant dans le groupe, Sören Boyn, approfondit actuellement l'étude la dynamique de retournement de polarisation dans le  $\text{BiFeO}_3$  avec divers matériaux et formes d'électrodes.

Concernant les applications, le memristor ferroélectrique est particulièrement performant en raison du continuum de niveaux intermédiaires, du rapport OFF/ON, du comportement bipolaire et de la vitesse d'écriture. Il montre donc un fort potentiel et des projets sont déjà en cours avec la collaboration du Laboratoire IMS à Bordeaux et de l'INRIA à Saclay afin d'intégrer ces memristors ferroélectriques en tant que synapses artificielles dans des réseaux de neurones dont le schéma d'apprentissage serait de type STDP. Une autre collaboration avec le centre TRT Thales a pour but de coupler ce type de réseaux de neurones artificiels avec une architecture de calcul classique.

# Bibliographie

- [Alibart 2010] F. Alibart, S. Pleutin, D. Guérin, C. Novembre, S. Lenfant, K. Lmimouni, C. Gamrat et D. Vuillaume. *An Organic Nanoparticle Transistor Behaving as a Biological Spiking Synapse*. *Adv. Func. Mater.*, vol. 20, pages 330–337, 2010. (Cité en pages 8 et 18.)
- [Alibart 2012] F. Alibart, S. Pleutin, O. Bichler, C. Gamrat, T. Serrano-Gotarredona, B. Linares-Barranco et D. Vuillaume. *A Memristive Nanoparticle/Organic Hybrid Synapstor for Neuroinspired Computing*. *Adv. Func. Mater.*, vol. 22, pages 609–616, 2012. (Cité en page 8.)
- [Anderson 1958] P. W. Anderson. *Absence of diffusion in certain random lattices*. *Phys. Rev.*, vol. 109, pages 1492–1507, 1958. (Cité en page 18.)
- [Avrami 1939] Melvin Avrami. *Kinetics of Phase Change. I. General Theory*. *J. Chem. Phys.*, vol. 7, page 1103, 1939. (Cité en page 100.)
- [Avrami 1940] Melvin Avrami. *Kinetics of Phase Change. II. Transformation-time relations for random distribution of nuclei*. *J. Chem. Phys.*, vol. 8, page 212, 1940. (Cité en pages 100 et 102.)
- [Avrami 1941] Melvin Avrami. *Kinetics of Phase Change. III. Granulation, phase change, and microstructure*. *J. Chem. Phys.*, vol. 9, page 177, 1941. (Cité en page 100.)
- [Axe 1967] J. D. Axe. *Apparent Ionic Charges and Vibrational Eigenmodes of BaTiO<sub>3</sub> and Other Perovskites*. *Phys. Rev.*, vol. 157, page 429, 1967. (Cité en page 97.)
- [Béa 2006] H. Béa, S. Fusil, K. Bouzehouane, M. Bibes, M. Sirena, G. Herranz, E. Jacquet, J.-P. Contour et A. Barthélémy. *Ferroelectricity Down to at Least 2 nm in Multiferroic BiFeO<sub>3</sub> Epitaxial Thin Films*. *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 45, pages L187–L189, 2006. (Cité en page 112.)
- [Baibich 1988] M.N. Baibich et al. *Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices*. *Phys. Rev. Lett.*, vol. 61, page 2472, 1988. (Cité en page 24.)
- [Benedek 2012] N. A. Benedek, A. T. Mulder et C. J. Fennie. *Polar octahedral rotations : A path to new multifunctional materials*. *J. Solid State Chem.*, vol. 195, pages 11–20, 2012. (Cité en page 94.)
- [Berger 1978] L. Berger. *Low field magnetoresistance and domain drag in ferromagnets*. *J. Appl. Phys.*, vol. 49, page 2156, 1978. (Cité en page 34.)
- [Berger 1984] L. Berger. *Exchange interaction between ferromagnetic domain wall and electric current in very thin metallic films*. *J. Appl. Phys.*, vol. 55, page 1954, 1984. (Cité en page 34.)

- [Berger 1988] L. Berger. *Exchange interaction between electric current and magnetic domain wall containing Bloch lines*. J. Appl. Phys., vol. 63, page 1663, 1988. (Cit  en page 34.)
- [Berger 1996] L. Berger. *Emission of spin waves by a magnetic multilayer traversed by a current*. Phys. Rev. B 54, pages 9353–9358, 1996. (Cit  en page 29.)
- [Bi 1998] G. Q. Bi et M. M. Poo. *Synaptic modifications in cultured Hippocampal neurons : dependence on spike timing, synaptic strength, and postsynaptic cell type*. J. Neurosci., vol. 18, no. 24, pages 10464–10472, 1998. (Cit  en page 7.)
- [Bibes 2010] M. Bibes, J. Grollier, A. Barth el my et J-C Mage. *Ferroelectric device with adjustable resistance*. patent, page WO 2010142762 A1, 2010. (Cit  en page 19.)
- [Bilc 2012] D. I. Bilc, F. D. Novaes, J.  niguez, P. Ordej n et P. Ghosez. *Electroresistance Effect in Ferroelectric Tunnel Junctions with Symmetric Electrodes*. ACS Nano, vol. 6, no. 2, pages 1473–1478, 2012. (Cit  en page 118.)
- [Binasch 1989] G. Binasch, P. Gr nberg, F. Saurenbach et W. Zinn. *Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange*. Phys. Rev. B, vol. 39, pages 4828–4830, 1989. (Cit  en page 24.)
- [Bliss 1970] J.C. Bliss, M.H. Katcher, C. H. Rogers et R.P. Shepard. *Optical-to-tactile image conversion for the blind*. IEEE Transaction Man-Machine Systems, vol. 11, no. 1, pages 58–65, 1970. (Cit  en page 6.)
- [Bocher 2012] L. Bocher, A. Gloter, A. Crassous, V. Garcia, K. March, A. Zobelli, S. Valencia, S. Enouz-Vedrenne, X. Moya, N.D. Mathur, C. Deranlot, S. Fusil, K. Bouzehouane, M. Bibes, A. Barth el my, C. Colliex et O. Stephan. *Atomic and Electronic Structure of the BaTiO<sub>3</sub>/Fe Interface in Multiferroic Tunnel Junctions*. Nanoletters, vol. 12, pages 376–382, 2012. (Cit  en page 129.)
- [Borghetti 2010] J. Borghetti, G. S. Snider, P. J. Kuekes, J. J. Yang, D. R. Stewart et R. S. Williams. *'Memristive' switches enable 'stateful' logic operations via material implication*. Nature, vol. 464, no. 8, pages 873–876, 2010. (Cit  en page 10.)
- [Boulle 2008] O. Boulle et al. *Nonadiabatic spin transfer torque in high anisotropy magnetic nanowires with narrow domain walls*. Phys. Rev. Lett., vol. 101, page 216601, 2008. (Cit  en page 38.)
- [Bouzehouane 2003] K. Bouzehouane, S. Fusil, M. Bibes, J. Carrey, T. Blon, M. Le D , P. Seneor, V. Cros et L. Vila. *Nanolithography Based on*

- Real-Time Electrically Controlled Indentation with an Atomic Force Microscope for Nanocontact Elaboration.* Nanoletters, vol. 3, page 1599, 2003. (Cité en page 126.)
- [Brinkman 1970] W. F. Brinkman, R. C. Dynes et J. M. Rowell. *Tunneling conductance of asymmetrical barriers.* J. Appl. Phys., vol. 41, pages 1915–1921, 1970. (Cité en page 117.)
- [Bruno 1991] P. Bruno et C. Chappert. *Oscillatory coupling between ferromagnetic layers separated by a nonmagnetic metal spacer.* Phys. Rev. Lett., vol. 67, no. 1602, 1991. (Cité en page 49.)
- [Bune 1998] A. V. Bune, V. M. Fridkin, S. Ducharme, L. M. Blinov, S. P. Palto, A. V. Sorokin, S. G. Yudin et A. Zlatkin. *Two-dimensional ferroelectric films.* Nature, vol. 391, page 874, 1998. (Cité en page 112.)
- [Burrowes 2009] C. Burrowes et al. *Non-adiabatic spin-torques in narrow magnetic domain walls.* Nature Physics, vol. 6, page 19, 2009. (Cité en page 38.)
- [Butler 2001] W.H. Butler, X.-G. Zhang, T.C. Schulthess et J.M. MacLaren. *Spin-dependent tunneling conductance of Fe/MgO/Fe sandwiches.* Phys. Rev. B, vol. 63, no. 54416, 2001. (Cité en page 49.)
- [Chanthbouala 2011] A. Chanthbouala, R. Matsumoto, J. Grollier, V. Cros, A. Anane, A. Fert, A. V. Khvalkovskiy, K. A. Zvezdin, K. Nishimura, Y. Nagamine, H. Maehara, K. Tsunekawa, A. Fukushima et S. Yuasa. *Vertical-current-induced domain-wall motion in MgO-based magnetic tunnel junctions with low current densities.* Nature Phys., vol. 7, pages 626–630, 2011. (Cité en page 41.)
- [Chanthbouala 2012a] A. Chanthbouala, A. Crassous, V. Garcia, K. Bouzouhouane, S. Fusil, X. Moya, J. Allibe, B. Dlubak, J. Grollier, S. Xavier, C. Deranlot, A. Moshar, R. Proksch, N. D. Mathur, M. Bibes, et A. Barthélémy. *Solid-state memories using ferroelectric tunnel junctions.* Nature Nanotech., vol. 7, pages 101–104, 2012. (Cité en page 124.)
- [Chanthbouala 2012b] A. Chanthbouala, V. Garcia, R. O. Cherifi, K. Bouzouhouane, S. Fusil, X. Moya, S. Xavier, H. Yamada, C. Deranlot, N. D. Mathur, M. Bibes, A. Barthélémy et J. Grollier. *A ferroelectric memristor.* Nature Mater., vol. 11, pages 860–864, 2012. (Cité en page 139.)
- [Chauleau 2010] J.-Y. Chauleau, R. Weil, A. Thiaville et J. Miltat. *Magnetic domain walls displacement : automotion vs. spin-transfer torque.* Phys. Rev. B, vol. 82, page 214414, 2010. (Cité en page 38.)

- [Chen 2011] A. B. K. Chen, S. G. Kim, Y. Wang, W.-S. Tung et I-W. Chen. *A size-dependent nanoscale metal-insulator transition in random materials*. Nature Nanotech., vol. 6, pages 237–241, 2011. (Cité en page 19.)
- [Choi 2004] K. J. Choi, M. Biegalski, Y. L. Li, A. Sharan, J. Schubert, R. Uecker, P. Reiche, Y. B. Chen, X. Q. Pan, V. Gopalan, L.-Q. Chen, D. G. Schlom et C. B. Eom. *Enhancement of ferroelectricity in strained BaTiO<sub>3</sub> thin films*. Science, vol. 306, pages 1005–1009, 2004. (Cité en pages 110 et 113.)
- [Chua 1971] L. O. Chua. *Memristor the missing circuit element*. IEEE Trans. Circuit Theory 18, pages 507–519, 1971. (Cité en page 8.)
- [Chua 2011] L. Chua. *Resistance switching memories are memristors*. Appl. Phys. A, pages 765–783, 2011. (Cité en page 10.)
- [Cochran 1959] W. Cochran. *Crystal stability and the theory of ferroelectricity*. Phys. Rev. Lett., vol. 3, no. 9, pages 412–414, 1959. (Cité en page 98.)
- [Colla 1998] E. L. Colla, S. Hong, D. V. Taylor, A. K. Tagantsev, K. No et N. Setter. *Direct observation of region by region suppression of the switchable polarization (fatigue) in Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> thin film capacitors with Pt electrodes*. Appl. Phys. Lett., vol. 72, page 2763, 1998. (Cité en page 102.)
- [Contreras 2003] J. Rodríguez Contreras, H. Kohlstedt, U. Poppe, R. Waser, C. Buchal et N. A. Pertsev. *Resistive switching in metal-ferroelectric-metal junctions*. Appl. Phys. Lett., vol. 83, pages 4595–4597, 2003. (Cité en page 118.)
- [Craig 1981] J.C. Craig. *Tactile letter recognition : Pattern duration and modes of pattern generation*. Perception & Psychophysics, vol. 30, pages 540–546, 1981. (Cité en page 6.)
- [Dawber 2003] M. Dawber, P. Chandra, P. B. Littlewood et J. F. Scott. *Depolarization corrections to the coercive field in thin-film ferroelectrics*. Journal of Physics Condensed Matter, vol. 15, page L393, 2003. (Cité en pages 109 et 113.)
- [Dawber 2005] M. Dawber, K. M. Rabe et J. F. Scott. *Physics of thin-film ferroelectric oxides*. Rev. Mod. Phys., vol. 77, pages 1083–1130, 2005. (Cité en page 100.)
- [Demokritov 1992] S. Demokritov, J. A. Wolf, P. Grünberg et W. Zinn. *Oscillation in the interlayer coupling of Fe films across Cr films*. MRS Proceedings Series, vol. 231, page 133, 1992. (Cité en page 49.)
- [Despont 2006] L. Despont, C. Koitzsch, F. Clerc, M. G. Garnier, P. Aebi, C. Lichtensteiger, J.-M. Triscone, F. J. Garcia de Abajo, E. Bousquet

- et Ph. Ghosez. *Direct evidence for ferroelectric polar distortion in ultrathin lead titanate perovskite films*. Phys. Rev. B, vol. 73, page 094110, 2006. (Cité en page 112.)
- [Doidge 2008] N. Doidge. Les étonnants pouvoirs de transformation du cerveau : Guérir grâce à la neuroplasticité. Belfond, avril 2008. (Cité en page 6.)
- [Dovesi 2000] R. Dovesi, R. Orlando, C. Roetti, C. Pisani et V. R. Saunders. *The periodic Hartree-Fock method and its implementation in the CRYSTAL code*. Phys. Stat. Sol. B, vol. 217, page 63, 2000. (Cité en page 95.)
- [Driscoll 2009] T. Driscoll, H.-T. Kim, B.-G. Chae, M. Di Ventra et D. N. Basov. *Phase-transition driven memristive system*. Appl. Phys. Lett., vol. 95, page 043503, 2009. (Cité en page 8.)
- [Duan 2006a] C. G. Duan, S. S. Jaswal et E. Y. Tsymbal. *Predicted Magnetoelectric Effect in Fe BaTiO<sub>3</sub> Multilayers Ferroelectric Control of Magnetism*. Phys. Rev. Lett., vol. 97, page 047201, 2006. (Cité en page 117.)
- [Duan 2006b] C. G. Duan, R. F. Sabirianov, W. N. Mei, S. S. Jaswal et E. Y. Tsymbal. *Interface Effect on Ferroelectricity at the Nanoscale*. Nanoletters, vol. 6, page 483, 2006. (Cité en page 117.)
- [Dussaux 2010] A. Dussaux, B. Georges, J. Grollier, V. Cros, A.V. Khvalkovskiy, A. Fukushima, M. Konoto, H. Kubota, K. Yakushiji, S. Yuasa, K.A. Zvezdin, K. Ando et A. Fert. *Large microwave generation from current-driven magnetic vortex oscillators in magnetic tunnel junctions*. Nature Commun., vol. 1, 2010. (Cité en page 33.)
- [Eltschka 2010] M. Eltschka et al. *Non-adiabatic spin torque investigated using thermally activated magnetic domain wall dynamics*. Phys. Rev. Lett., vol. 105, page 056601, 2010. (Cité en page 38.)
- [Erokhin 2008] V. Erokhin et M.P. Fontana. *Electrochemically controlled polymeric device : a memristor (and more) found two years ago*. <http://arxiv.org/abs/0807.0333>, 2008. (Cité en pages 8 et 18.)
- [Esaki 1971] L. Esaki, R. B. Laibowitz et P. J. Stiles. *Polar switch*. IBM Tech. Discl. Bull., vol. 13, no. 2161, 1971. (Cité en page 114.)
- [Fert 1968] A. Fert et I. A. Campbell. *Two-current conduction in Nickel*. Phys. Rev. Lett., vol. 21, no. 16, pages 1190–1192, 1968. (Cité en page 24.)
- [Fert 1971] A. Fert et I. A. Campbell. *Transport properties of ferromagnetic transition metals*. J. Phys. Colloques, vol. 32, no. C1, pages C1–46–C1–50, 1971. (Cité en page 24.)

- [Fert 1976] A. Fert et I. A. Campbell. *Electrical resistivity of ferromagnetic nickel and iron based alloys*. J. Phys F : Met. Phys., vol. 6, page 849, 1976. (Cité en page 24.)
- [Feuersanger 1963] A. E. Feuersanger et P. Lublin. *Electrical properties and structure of barium titanate films*. J. Electrochem. Soc., vol. 110, no. C192, 1963. (Cité en page 112.)
- [Freitas 1985] P.P. Freitas et L. Berger. *Observation of s-d exchange force between domain walls and electric current in very thin Permalloy films*. J. Appl. Phys., vol. 57, page 1266, 1985. (Cité en page 34.)
- [Fridkin 2001] V. M. Fridkin et S. Ducharme. *General features of the intrinsic ferroelectric coercive field*. Phys. Solid State, vol. 43, page 1320, 2001. (Cité en page 113.)
- [Fukami 2009] S. Fukami, T. Suzuki, K. Nagahara, N. Ohshima, Y. Ozaki, S. Saito, R. Nebashi, N. Sakimura, H. Honjo, K. Mori, C. Igarashi, S. Miura, N. Ishiwata et T. Sugibayashi. *Low-current perpendicular domain wall motion cell for scalable high-speed MRAM*. 2009 Symposium on VLSI Technology, pages 230–231, 2009. (Cité en page 34.)
- [Gao 2011] P. Gao, C. T. Nelson, J. R. Jokisaari, S.-H. Baek, C. W. Bark, Y. Zhang, E. Wang, D. G. Schlom, C.-B. Eom et X. Pan. *Revealing the role of defects in ferroelectric switching with atomic resolution*. Nature Communications, vol. 2, page 591, 2011. (Cité en page 99.)
- [Gao 2012] P. Gao, C. T. Nelson, J. R. Jokisaari, Y. Zhang, S.-H. Baek, C. W. Bark, E. Wang, Y. Liu, J. Li, C.-B. Eom et X. Pan. *Direct Observations of Retention Failure in Ferroelectric Memories*. Adv Mater., vol. 24, pages 1106–1110, 2012. (Cité en page 99.)
- [Garate 2009] I. Garate, K. Gilmore, M.D. Stiles et A.H. MacDonald. *Nonadiabatic spin-transfer torque in real materials*. Phys. Rev. B, vol. 79, page 104416, 2009. (Cité en page 37.)
- [Garcia 2009] V. Garcia, S. Fusil, K. Bouzehouane, S. Enouz-Vedrenne, N. D. Mathur, A. Barthélémy et M. Bibes. *Giant tunnel electroresistance for non-destructive readout of ferroelectric states*. Nature, vol. 460, pages 81–84, 2009. (Cité en pages 21, 112, 114, 119, 120, 124 et 126.)
- [Garcia 2010] V. Garcia, M. Bibes, L. Bocher, S. Valencia, F. Kronast, A. Crassous, X. Moya, S. Enouz-Vedrenne, A. Gloter, D. Imhoff, C. Deranlot, N. D. Mathur, S. Fusil, K. Bouzehouane et A. Barthélémy. *Ferroelectric control of spin polarisation*. Science, vol. 327, pages 1106–1110, 2010. (Cité en page 116.)
- [Gergel-Hackett 2009] N. Gergel-Hackett, B. Hamadani, B. Dunlap, J. Suehle, C. Richter, C. Hacker et D. Gundlach. *A Flexible Solution-Processed*

- Memristor*. IEEE Electron Device Letters, vol. 30, no. 7, pages 706–708, 2009. (Cité en page 8.)
- [Gerra 2006] G. Gerra, A. K. Tagantsev, N. Setter et K. Parlinski. *Ionic Polarizability of Conductive Metal Oxides and Critical Thickness for Ferroelectricity in BaTiO<sub>3</sub>*. Phys. Rev. Lett., vol. 96, page 107603, 2006. (Cité en pages 117 et 129.)
- [Gerra 2007] G. Gerra, A. K. Tagantsev et N. Setter. *Ferroelectricity in Asymmetric Metal-Ferroelectric-Metal Heterostructures A Combined First-Principles Phenomenological Approach*. Phys. Rev. Lett., vol. 98, page 207601, 2007. (Cité en page 117.)
- [Ghosez 1998] P. Ghosez, J.-P. Michenaud et X. Gonze. *Dynamical atomic charges : The case of ABO<sub>3</sub> compounds*. Phys. Rev. B, vol. 58, no. 10, 1998. (Cité en page 97.)
- [Ghosez 2011] P. Ghosez. *No title*. International School of Oxide Electronics, 2011. (Cité en page 96.)
- [Grollier 2003] J. Grollier, P. Boulenc, V. Cros, A. Hamzic, A. Vaurès, A. Fert et G. Faini. *Switching a spin valve back and forth by current-induced domain wall motion*. Appl. Phys. Lett., vol. 83, pages 509–511, 2003. (Cité en pages 21 et 36.)
- [Grollier 2010] J. Grollier, V. Cros et F. Nguyen Van dau. *Memristor device with resistance adjustable by moving a magnetic wall by spin transfer and use of said memristor in a neural network*. Patent, vol. WO/2010/125181, 2010. (Cité en pages 19 et 34.)
- [Gruverman 2008] A. Gruverman, D. Wu et J. F. Scott. *Piezoresponse force microscopy studies of switching behavior of ferroelectric capacitors on a 100-ns time scale*. Phys. Rev. Lett., vol. 100, page 097601, 2008. (Cité en page 102.)
- [Gruverman 2009] A. Gruverman, S. Jesse, P Yu, R. Ramesh, A. P. Baddorf et S. V. Kalinin. *Tunneling electroresistance effect in ferroelectric tunnel junctions at the nanoscale*. Nano Lett., vol. 9, pages 3539–3543, 2009. (Cité en pages 21, 114, 120 et 128.)
- [Hasegawa 2012] T. Hasegawa, K. Terabe, T. Tsuruoka et M. Aono. *Atomic Switch : Atom/Ion Movement Controlled Devices for Beyond Von-Neumann Computers*. Adv. Mater., vol. 24, pages 252–267, 2012. (Cité en pages 8 et 13.)
- [Hayashi 2008] M. Hayashi et al. *Dynamics of domain wall depinning driven by a combination of direct and pulsed currents*. Appl. Phys. Lett., vol. 92, page 162503, 2008. (Cité en page 37.)

- [Heiliger 2008] C. Heiliger et M. D. Stiles. *Ab Initio Studies of the Spin-Transfer Torque in Magnetic Tunnel Junctions*. Phys. Rev. Lett., vol. 100, page 186805, 2008. (Cité en page 41.)
- [Helmer 2010] A. Helmer, S. Cornelissen, T. Devolder, J.-V. Kim, W. van Roy, L. Lagae et C. Chappert. *Quantized spin-wave modes in magnetic tunnel junction nanopillars*. J. Appl. Phys., vol. 81, page 094416, 2010. (Cité en page 51.)
- [Hertz-Pannier 2007] L. Hertz-Pannier, P. Ciuciu, B. Thirion, D. Le Bihan et V. Lebon. *Comprendre le cerveau par l'image*. CLEFS CEA, vol. 56, pages 38–47, 2007. (Cité en page 3.)
- [Hung 1988] C.-Y. Hung et L. Berger. *Exchange forces between domain wall and electric current in permalloy films of variable thickness*. J. Appl. Phys., vol. 63, page 4276, 1988. (Cité en page 34.)
- [Hung 1990] C.-Y. Hung, L. Berger et C.Y. Shih. *Observation of a current-induced force on Bloch lines in Ni-Fe thin films*. J. Appl. Phys., vol. 67, page 5941, 1990. (Cité en page 34.)
- [Hwanga 2002] C. S. Hwanga. *Thickness-dependent dielectric constants of (Ba,Sr)TiO<sub>3</sub> thin films with Pt or conducting oxide electrodes*. J. Appl. Phys., vol. 92, page 432, 2002. (Cité en page 110.)
- [IBM 2004] IBM. *Blue Gene*. <http://www-03.ibm.com/ibm/history/ibm100/us/en/icons/bluegene/breakthroughs/>, 2004. (Cité en page 7.)
- [IDC-EMC 2013] IDC-EMC. *Etude IDC-EMC « Extracting value from chaos » citée par Delphine Cuny sous le titre « "Big data" : la nouvelle révolution »*. La tribune, no. 42, page 4, 2013. (Cité en page 7.)
- [Ishibashi 1971] Y. Ishibashi et Y. Takagi. *Note on ferroelectric domain switching*. J. Phys. Soc. Jap., vol. 31, no. 2, page 506, 1971. (Cité en pages 100 et 101.)
- [Ishibashi 2010] S. Ishibashi, T. Seki, T. Nozaki, H. Kubota, S. Yakata, A. Fukushima, S. Yuasa, H. Maehara, K. Tsunekawa, D. D. Djayaprawira et Y. Suzuki. *Large Diode Sensitivity of CoFeB/MgO/CoFeB Magnetic Tunnel Junctions*. Appl. Phys. Express, vol. 3, page 073001, 2010. (Cité en page 56.)
- [Ishida 2006] H. Ishida, D. Wortmann et A. Liebsch. *Electronic structure of SrVO<sub>3</sub> (001) surfaces : A local density approximation plus dynamical mean-field theory calculation*. Phys. Rev. B, vol. 73, page 245421, 2006. (Cité en page 95.)
- [ITRS 2011] ITRS. *International Technology Roadmap for Semiconductors 2011*.

- <http://www.itrs.net/Links/2011ITRS/2011Chapters/2011ERD.pdf>, 2011. (Cité en page 1.)
- [Izhikevich 2004] E. M. Izhikevich. *Which model to use for cortical spiking neurons?* IEEE transactions on Neural Networks, vol. 15, no. 5, pages 1063–1070, 2004. (Cité en pages 4 et 5.)
- [Jamaa 2009] M. H. Ben Jamaa, S. Carrara, J. Georgiou, N. Archontas et G. De Micheli. *Fabrication of Memristors with Poly-Crystalline Silicon Nanowires*. IEEE nano, 2009. (Cité en page 8.)
- [Janovec 1958] V. Janovec. *No title*. Czech. J. Phys. Sect. A, vol. 8, page 3, 1958. (Cité en page 113.)
- [Jansson 1983] G. Jansson. *Tactile guidance of movement*. International Journal of Neuroscience, vol. 19, no. 1-4, pages 37–46, 1983. (Cité en page 6.)
- [Jiang 2012] A. Q. Jiang, Z. H. Chen, W. Y. Hui, D. Wu et J. F. Scott. *Subpicosecond Domain Switching in Discrete Regions of  $Pb(Zr_{0.35}Ti_{0.65})O_3$  Thick Films*. Adv. Func. Mater., vol. 22, pages 2148–2153, 2012. (Cité en page 136.)
- [Jo 2007] J. Y. Jo, H. S. Han, J.-G. Yoon, T. K. Song, S.-H. Kim et T. W. Noh. *Domain switching kinetics in disordered ferroelectric thin films*. Phys. Rev. Lett., vol. 99, page 267602, 2007. (Cité en page 104.)
- [Jo 2009] S. H. Jo, K.-H. Kim et W. Lu. *High-Density Crossbar Arrays Based on a Si Memristive System*. Nanoletters, vol. 9, no. 2, pages 870–874, 2009. (Cité en page 10.)
- [Jo 2010] S. H. Jo, T. Chang, I. Ebong, B. B. Bhadviya, P. Mazumder et W. Lu. *Nanoscale Memristor Device as Synapse in Neuromorphic Systems*. Nanoletters, vol. 10, no. 4, pages 1297–1301, 2010. (Cité en pages 8 et 15.)
- [Junquera 2003] J. Junquera et P. Ghosez. *Critical thickness for ferroelectricity in perovskite ultrathin films*. Nature, vol. 422, pages 506–509, 2003. (Cité en page 112.)
- [Kaczmarek 2003] K. A. Kaczmarek et S. J. Haase. *Pattern Identification as a Function of Stimulation Current on a Fingertip-Scanned Electrotactile Display*. IEEE transaction on neural systems and rehabilitation engineering, vol. 11, no. 3, 2003. (Cité en page 6.)
- [Kay 1962] H. F. Kay et J. W. Dunn. *No title*. Philos. Mag., vol. 7, 1962. (Cité en page 113.)
- [Khvalkovskiy 2009] K. V. Khvalkovskiy, K. A. Zvezdin, Ya.V. Gorbunov, V. Cros, J. Grollier, A. Fert et A. K. Zvezdin. *High domain wall*

- velocities due to spin currents perpendicular to the plane.* Phys. Rev. Lett., vol. 102, no. 067206, 2009. (Cité en pages 42, 71 et 74.)
- [Kim 2003] N. S. Kim, T. Austin, D. Baauw, T. Mudge, K. Flautner, J. S. Hu, M. J. Irwin, M. Kandemir et V. Narayanan. *Leakage current : Moore's law meets static power.* IEEE computer, vol. 36, no. 12, pages 68–75, 2003. (Cité en page 1.)
- [Kim 2005] D. J. Kim, J.Y. Jo, Y. S. Kim, Y. J. Chang, J. S. Lee, Jong-Gul Yoon, T. K. Song et T.W. Noh. *Polarization Relaxation Induced by a Depolarization Field in Ultrathin Ferroelectric BaTiO<sub>3</sub> Capacitors.* Phys. Rev. Lett., vol. 95, page 237602, 2005. (Cité en page 131.)
- [Kim 2009] T. H. Kim, E. Y. Jang, N. J. Lee, D. J. Choi, K.-J. Lee, J. t. Jang, J. s. Choi, S. H. Moon et J. Cheon. *Nanoparticle Assemblies as Memristors.* Nano Letters, vol. 9, no. 6, pages 2229–2233, 2009. (Cité en page 8.)
- [Kiselev 2003] S. I. Kiselev, J. C. Sankey, I. N. Krivorotov, N. C. Emley, R. J. Schoelkopf, R. A. Buhrman et D. C. Ralph. *Microwave oscillations of a nanomagnet driven by a spin-polarized current.* Nature, vol. 425, pages 380–383, 2003. (Cité en page 33.)
- [Kloui 2003] M. Kloui, C. A. F. Vaz, J. A. C. Bland, W. Wernsdorfer, G. Faini, E. Cambri et L. J. Heyderman. *Domain wall motion induced by spin polarized currents in ferromagnetic ring structures.* Appl. Phys. Lett., vol. 83, pages 105–107, 2003. (Cité en pages 21 et 36.)
- [Kohlstedt 2002] H. Kohlstedt, N. A. Pertsev et R. Waser. *Size effects on polarization in epitaxial ferroelectric films and the concept of ferroelectric tunnel junctions including first results.* Mater. Res. Soc. Symp. Proc., vol. 688, no. C6.5, 2002. (Cité en page 112.)
- [Kohlstedt 2005] H. Kohlstedt, N. A. Pertsev, J. Rodríguez Contreras et R. Waser. *Theoretical current-voltage characteristics of ferroelectric tunnel junctions.* Phys. Rev. B, vol. 72, no. 125341, 2005. (Cité en pages 114, 116, 118, 130 et 149.)
- [Kohlstedt 2008] H. Kohlstedt, A. Petraru, K. Szot, A. Rüdiger, P. Meuffels, H. Haselier, R. Waser et V. Nagarajan. *Method to distinguish ferroelectric from nonferroelectric origin in case of resistive switching in ferroelectric capacitors.* Appl. Phys. Lett., vol. 92, no. 062907, 2008. (Cité en pages 118, 119 et 133.)
- [Kohno 2006] H. Kohno, G. Tatara et J. Shibata. *Microscopic calculation of spin torques in disordered ferromagnets.* J. Phys. Soc. Jpn., vol. 75, page 113706, 2006. (Cité en page 37.)

- [Kubota 2007] H. Kubota, A. Fukushima, K. Yakushiji, T. Nagahama, S. Yuasa, K. Ando, H. Maehara, Y. Nagamine, K. Tsunekawa, D. D. Djayaprawira, N. Watanabe et Y. Suzuki. *Quantitative measurement of voltage dependence of spin-transfer torque in MgO-based magnetic tunnel junctions*. Nature Phys., vol. 4, pages 37–41, 2007. (Cité en page 41.)
- [Kuekes 2005] P. J. Kuekes, D. R. Stewart et R. S. Williams. *The crossbar latch : Logic value storage, restoration, and inversion in crossbar circuits*. J. Appl. Phys., vol. 97, page 034301, 2005. (Cité en page 10.)
- [Kuzum 2011] D. Kuzum, R. G. D. Jeyasingh, B. Lee et H.-S. P. Wong. *Nanoelectronic Programmable Synapses Based on Phase Change Materials for Brain-Inspired Computing*. Nanoletters, vol. 12, pages 2179–2186, 2011. (Cité en pages 8 et 17.)
- [Kwon 2010] D.-H. Kwon, K. M. Kim, J. H. Jang, J. M. Jeon, M. H. Lee, G. H. Kim, X.-S. Li, G.-S. Park, B. Lee, S. Han, M. Kim et C. S. Hwang. *Atomic structure of conducting nanofilaments in TiO<sub>2</sub> resistive switching memory*. Nature Nanotech., vol. 5, pages 148–153, 2010. (Cité en page 12.)
- [Lee 2011] M.-J. Lee, C. B. Lee, D. Lee, S. R. Lee, M. Chang, J. H. Hur, Y.-B. Kim, C.-J. Kim, D. H. Seo, S. Seo, U-In Chung, I.-K. Yoo et Kinam Kim. *A fast, high-endurance and scalable non-volatile memory device made from asymmetric Ta<sub>2</sub>O<sub>5-x</sub>/TaO<sub>2-x</sub> bilayer structures*. Nature mater., vol. 10, pages 625–630, 2011. (Cité en pages 8 et 13.)
- [Lemaire 1999] L. Lemaire. *Approche comportementale de la question de Molybdeux*. Strasbourg, Université Louis Pasteur, 1999. (Cité en page 6.)
- [Lepadatu 2009] S. Lepadatu et al. *Dependence of domain-wall depinning threshold current on pinning profile*. Phys. Rev. Lett., vol. 102, page 127203, 2009. (Cité en page 37.)
- [Li 2006] Y. L. Li et L. Q. Chen. *Temperature-strain phase diagram for BaTiO<sub>3</sub> thin films*. Appl. Phys. Lett., vol. 88, page 072905, 2006. (Cité en page 110.)
- [Lichtensteiger 2005] C. Lichtensteiger, J.-M. Triscone, J. Junquera et Ph. Ghosez. *Ferroelectricity and Tetragonality in Ultrathin PbTiO<sub>3</sub> Films*. Phys. Rev. Lett., vol. 94, page 047603, 2005. (Cité en page 110.)
- [Locatelli 2011] N. Locatelli, V. V. Naletov, J. Grollier, G. de Loubens, V. Cros, C. Deranlot, C. Ulysse, G. Faini, O. Klein et A. Fert. *Dynamics of two coupled vortices in a spin valve nanopillar excited by spin transfer torque*. Appl. Phys. Lett., vol. 98, page 062501, 2011. (Cité en page 33.)

- [Loegel 1971] B. Loegel et F. Gautier. *Origines de la résistivité dans le cobalt et ses alliages dilués*. J. Phys. Chem. Sol., vol. 32, no. 12, page 2723, 1971. (Cité en page 24.)
- [Loomis 1980] J.M. Loomis. *Interaction of display mode and character size in vibrotactile letter recognition*. Bulletin of the Psychonomic Society, vol. 16, pages 385–387, 1980. (Cité en page 6.)
- [Lu 2012] H. Lu, X. Liu, J. D. Burton, C.-W. Bark, Y. Wang, Y. Zhang, D. J. Kim, A. Stamm, P. Lukashev, D. A. Felker, C. M. Folkman, P. Gao, M. S. Rzchowski, X. Q. Pan, C.-B. Eom, E. Y. Tsymbal et A. Gruverman. *Enhancement of Ferroelectric Polarization Stability by Interface Engineering*. Adv. Mater., vol. 24, pages 1209–1216, 2012. (Cité en page 118.)
- [Manchon 2008] A. Manchon, N. Ryzhanova, A. Vedyayev, M. Chschiev et B. Dieny. *Description of current-driven torques in magnetic tunnel junctions*. J. Phys. : Condens. Matter, vol. 20, page 145208, 2008. (Cité en page 41.)
- [Manchon 2012] A. Manchon, R. Matsumoto, H. Jaffres et J. Grollier. *Spin transfer torque with spin diffusion in magnetic tunnel junctions*. Phys. Rev. B, vol. 86, page 060404, 2012. (Cité en page 41.)
- [Markram 1997] H. Markram, J. Lubke, M. Frotscher et B. Sakmann. *Regulation of synaptic efficacy by coincidence of postsynaptic APs and EPSPs*. Science, vol. 275, pages 213–215, 1997. (Cité en page 7.)
- [Martin 2004] R. M. Martin. *Electronic structure : Basic theory and practical methods*. University Press, Cambridge, 2004. (Cité en page 95.)
- [Mathon 2001] J. Mathon et A. Umerski. *Theory of tunneling magnetoresistance of an epitaxial Fe/MgO/Fe(001) junction*. Phys. Rev. B, vol. 63, no. 220403, 2001. (Cité en page 49.)
- [Matsumoto 2011] R. Matsumoto, A. Chanthbouala, J. Grollier, V. Cros, A. Fert, K. Nishimura, Y. Nagamine, H. Maehara, K. Tsunekawa, A. Fukushima et S. Yuasa. *Spin-Torque diode measurements of MgO-based magnetic tunnel junctions with asymmetric electrodes*. Appl. Phys. Express, vol. 4, page 063001, 2011. (Cité en page 41.)
- [McGuire 1975] T. McGuire et R. Potter. *Anisotropic magnetoresistance in ferromagnetic 3d alloys*. IEEE Transactions on Magnetics, vol. 11, no. 4, pages 1018–1038, 1975. (Cité en page 24.)
- [McMichael 1997] R. D. McMichael et M. J. Donahue. *Head to head domain wall structures in thin magnetic strips*. IEEE Trans. Magn., vol. 33, page 4167, 1997. (Cité en page 25.)

- [Meier 2007] G. Meier et al. *Direct imaging of stochastic domain-wall motion driven by nanosecond current pulses*. Phys. Rev. Lett., vol. 98, page 187202, 2007. (Cité en page 37.)
- [Merz 1954] W. J. Merz. *Domain formation and domain wall motions in ferroelectric BaTiO<sub>3</sub> single crystals*. Phys. Rev., vol. 95, page 690, 1954. (Cité en page 146.)
- [Metaxas 2013] P. J. Metaxas, Joao Sampaio, A. Chanthbouala, R. Matsu-moto, A. Anane, A. Fert, K. A. Zvezdin, K. Yakushiji, H. Kubota, A. Fukushima, S. Yuasa, K. Nishimura, Y. Nagamine, H. Maehara, K. Tsunekawa, V. Cros et J. Grollier. *High domain wall velocities via spin transfer torque using vertical current injection*. Scientific Reports, vol. 3, no. 1829, 2013. (Cité en page 80.)
- [Mühlbauer 2009] S. Mühlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii et P. Böni. *Skyrmion Lattice in a Chiral Magnet*. Science, vol. 323, pages 915–919, 2009. (Cité en page 28.)
- [Miao 2011] F. Miao, J. P. Strachan, J. J. Yang, M.-X. Zhang, I. Goldfarb, A. C. Torrezan, P. Eschbach, R. D. Kelley, G. Medeiros-Ribeir et R. S. Williams. *Anatomy of a Nanoscale Conduction Channel Reveals the Mechanism of a High-Performance Memristor*. Adv. Mater., vol. 23, pages 5633–5640, 2011. (Cité en page 12.)
- [Miron 2009] I.M. Miron et al. *Domain wall spin torquemeter*. Phys. Rev. Lett., vol. 102, page 137202, 2009. (Cité en page 38.)
- [Miron 2010] I.M. Miron et al. *Current-driven spin torque induced by the Rashba effect in a ferromagnetic metal layer*. Nature Mater., vol. 9, page 230, 2010. (Cité en page 38.)
- [Mott 1936] N. F. Mott. *The electrical conductivity of transition metals*. Proc. Roy. Soc. A, vol. 153, page 699, 1936. (Cité en page 24.)
- [Nakatani 2005] Y. Nakatani, A. Thiaville et J. Miltat. *Head-to-head domain walls in soft nano-strips : a refined phase diagram*. J. Magn. Magn. Mater., no. 290-291, pages 750–753, 2005. (Cité en pages 25 et 27.)
- [Natori 1998] K. Natori, D. Otani et N. Sano. *Thickness dependence of the effective dielectric constant in a thin film capacitor*. Appl. Phys. Lett., vol. 73, page 632, 1998. (Cité en page 114.)
- [Nayak 2012] A. Nayak, T. Ohno, T. Tsuruoka, K. Terabe, T. Hasegawa, J. K. Gimzewski et M. Aono. *Controlling the Synaptic Plasticity of a Cu<sub>2</sub>S Gap-Type Atomic Switch*. Adv. Mater., vol. 22, pages 3606–3613, 2012. (Cité en pages 8 et 13.)
- [Nelson 2011] C. T. Nelson, P. Gao, J. R. Jokisaari, C. Heikes, C. Adamo, A. Melville, S.-H. Baek, C. M. Folkman, B. Winchester, Y. Gu, Y. Liu,

- K. Zhang, E. Wang, J. Li, L.-Q. Chen, C.-B. Eom, D. G. Schlom et X. Pan. *Domain Dynamics During Ferroelectric Switching*. Science, vol. 334, pages 968–971, 2011. (Cité en page 99.)
- [Oh 2009] 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 et K.-J. Lee. *Bias-voltage dependence of perpendicular spin-transfer torque in asymmetric MgO-based magnetic tunnel junctions*. Nature Phys., vol. 5, pages 898–902, 2009. (Cité en pages 41 et 58.)
- [Ohno 2011] T. Ohno, T. Hasegawa, T. Tsuruoka, K. Terabe, J. K. Gimzewski et M. Aono. *Short-term plasticity and long-term potentiation mimicked in single inorganic synapses*. Nature Mater., vol. 10, pages 591–595, 2011. (Cité en pages 8 et 15.)
- [Orihara 1994] H. Orihara, S. Hashimoto et Y. Ishibashi. *Study on D-E hysteresis loop of TGS based on the Avrami-type model*. J. Phys. Soc. Jpn, vol. 63, pages 1601–1610, 1994. (Cité en page 100.)
- [Pantel 2010] D. Pantel et M. Alexe. *Electroresistance effects in ferroelectric tunnel barriers*. Phys. Rev. B, vol. 82, page 134105, 2010. (Cité en page 130.)
- [Pantel 2012] D. Pantel, S. Goetze, D. Hesse et M. Alexe. *Reversible electrical switching of spin polarization in multiferroic tunnel junctions*. Nature Mater., vol. 11, pages 289–293, 2012. (Cité en page 116.)
- [Park 2010] H. Park, H. Shin, J. H. Kim, S. Hong et J. Xu. *Memory effect of a single-walled carbon nanotube on nitride-oxide structure under various bias conditions*. Appl. Phys. Lett., vol. 96, page 023101, 2010. (Cité en page 8.)
- [Parkin 2004] S. S. P. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P. M. Rice, B. Hughes, M. Samant et See-Hun Yang. *Giant tunnelling magnetoresistance at room temperature with MgO (100) tunnel barriers*. Nature Mater., vol. 3, pages 862–867, 2004. (Cité en page 49.)
- [Parkin 2008] S. S. P. Parkin, M. Hayashi et L. Thomas. *Magnetic domain-wall racetrack memory*. Science, vol. 320, pages 190–194, 2008. (Cité en page 34.)
- [Paruch 2003] P. Paruch. *Atomic force microscopy studies of ferroelectric domains in epitaxial  $\text{PbZr}_{0.2}\text{Ti}_{0.8}\text{O}_3$  thin films and the static and dynamic behavior of ferroelectric domain walls*. PhD thesis, Université de Genève, 2003. (Cité en page 106.)
- [Pertsev 1998] N. A. Pertsev, A. G. Zembilgotov et A. K. Tagantsev. *Effect of Mechanical Boundary Conditions on Phase Diagrams of Epitaxial*

- Ferroelectric Thin Films*. Phys. Rev. Lett., vol. 80, pages 1988–1991, 1998. (Cit  en page 110.)
- [Pertsev 2003] N.A. Pertsev, J. Rodr guez Contreras, V. G. Kukhar, B. Hermanns, H. Kohlstedt et R. Waser. *Coercive field of ultrathin Pb(Zr<sub>0.52</sub>Ti<sub>0.48</sub>)O<sub>3</sub> epitaxial films*. Appl. Phys. Lett., vol. 83, pages 3356–3358, 2003. (Cit  en page 114.)
- [Pertsev 2007] N. A. Pertsev et H. Kohlstedt. *Elastic Stabilization of a Single-Domain Ferroelectric State in Nanoscale Capacitors and Tunnel Junctions*. Phys. Rev. Lett., vol. 98, page 257603, 2007. (Cit  en page 131.)
- [Petitjean 2012] C. Petitjean, D. Luc et X. Waintal. *Unified Drift-Diffusion Theory for Transverse Spin Currents in Spin Valves, Domain Walls, and Other Textured Magnets*. Phys. Rev. Lett., vol. 109, page 117204, 2012. (Cit  en page 37.)
- [Petraru 2008] A. Petraru, H. Kohlstedt, U. Poppe, R. Waser, U. Klemradt A. Solbach and, J. Schubert, W. Zander et N. A. Pertsev. *Wedgelike ultrathin epitaxial BaTiO<sub>3</sub> films for studies of scaling effects in ferroelectrics*. Appl. Phys. Lett., vol. 93, page 072902, 2008. (Cit  en page 110.)
- [Pickett 2012] M. D. Pickett, G. M.-Ribeiro et R. S. Williams. *A scalable neuristor built with Mott memristors*. Nature Mater., vol. 12, pages 114–117, 2012. (Cit  en page 18.)
- [Plonka 2005] R. Plonka, R. Dittmann, N. A. Pertsev, E. Vasco et R. Waser. *Impact of the top-electrode material on the permittivity of single-crystalline Ba<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>TiO<sub>3</sub> thin films*. Appl. Phys. Lett., vol. 86, page 202908, 2005. (Cit  en page 110.)
- [Purcell 1991] S. T. Purcell, W. Folkerts, M. T. Johnson, N. W. E. McGee, K. Jager, J. aan de Stegge, W. B. Zeper, W. Hoving et P. Gr nberg. *Oscillations with a period of two Cr monolayers in the antiferromagnetic exchange coupling in a (001) Fe/Cr/Fe sandwich structure*. Phys. Rev. Lett., vol. 67, no. 903, 1991. (Cit  en page 49.)
- [Resta 1993] R. Resta, M. Posternak et A. Baldereschi. *Towards a quantum theory of polarization in ferroelectrics : The case of KNbO<sub>3</sub>*. Phys. Rev. Lett., vol. 70, no. 7, pages 1010–1013, 1993. (Cit  en page 97.)
- [Resta 2003] R. Resta. *Ab initio simulation of the properties of ferroelectric materials*. Modell. Simul. Mater. Sci. Eng., vol. 11, page R69, 2003. (Cit  en page 95.)
- [Resta 2007] R. Resta et D. Vanderbilt. *Theory of polarization : A modern approach*. In K. Rabe, Ch. H. Ahn et J.-M. Triscone, editeurs, Physics

- of ferroelectrics : a modern perspective. Springer Ed., 2007. (Cit  en page 96.)
- [Sampaio 2001] E. Sampaio, S. Maris et P. Bach y Rita. *Brain plasticity : 'visual' acuity of blind persons via the tongue*. Brain Research, vol. 908, no. 204-207, 2001. (Cit  en page 6.)
- [Sankey 2007] J. C. Sankey, Y.-T. Cui, J. Z. Sun, J. C. Slonczewski, R. A. Burhman et D. C. Ralph. *Measurement of the spin-transfer-torque vector in magnetic tunnel junctions*. Nature Phys., vol. 4, pages 67–71, 2007. (Cit  en page 41.)
- [Schlom 2011] D. G. Schlom. *No title*. International School of Oxide Electronics, 2011. (Cit  en page 111.)
- [Simmons 1963] J. G. Simmons. *Electric Tunnel Effect between Dissimilar Electrodes Separated by a Thin Insulating Film*. J. Appl. Phys., vol. 34, page 2581, 1963. (Cit  en page 117.)
- [Slack 1971] J. R. Slack et J. C. Burfoot. *Electrical properties of ash evaporated ferroelectric BaTiO<sub>3</sub> thin films*. J. Phys. C., vol. 4, page 898, 1971. (Cit  en page 112.)
- [Slonczewski 1989] J. C. Slonczewski. *Conductance and exchange coupling of two ferromagnets separated by a tunneling barrier*. Phys. Rev. B, vol. 39, no. 10, pages 6995–7002, 1989. (Cit  en page 33.)
- [Slonczewski 1996] J. C. Slonczewski. *Current-driven excitation of magnetic multilayers*. J. Magn. Magn. Mater., vol. 159, pages L1–L7, 1996. (Cit  en page 29.)
- [Snider 2007] G. S. Snider et R. S. Williams. *Nano/CMOS architectures using a field-programmable nanowire interconnect*. Nanotechnology, vol. 18, page 035204, 2007. (Cit  en page 10.)
- [Stengel 2009] M. Stengel, D. Vanderbilt et N. A. Spaldin. *Enhancement of ferroelectricity at metal-oxide interfaces*. Nature Mater., vol. 8, pages 392–397, 2009. (Cit  en pages 110 et 129.)
- [Strukov 2008] D. B. Strukov, G. S Snider, D. R. Stewart et R. S. Williams. *The missing memristor found*. Nature, vol. 453, pages 80–83, 2008. (Cit  en pages 8 et 11.)
- [Suri 2012] M. Suri, O. Bichler, D. Querlioz, B. Traor , O. Cueto, L. Perniola, V. Sousa, D. Vuillaume, C. Gamrat et B. DeSalvo. *Physical aspects of low power synapses based on phase change memory devices*. J. Appl. Phys., vol. 112, page 054904, 2012. (Cit  en page 17.)
- [Swagten 2008] H.J.M. Swagten. *Chapter 1 : Spin-Dependent Tunneling in Magnetic Junctions*. Handbook of Magnetic Materials, vol. 17, 2008. (Cit  en page 24.)

- [Szot 2011] K. Szot, M. Rogala, W. Speier, Z. Klusek, A. Besmehn et R. Wasser. *TiO<sub>2</sub> - a prototypical memristive material*. Nanotechnology, vol. 22, page 254001, 2011. (Cité en page 8.)
- [Tagantsev 2002] A. K. Tagantsev, I. Stolichnov, N. Setter, J. S. Cross et M. Tsukada. *Non-Kolmogorov-Avrami switching kinetics in ferroelectric thin films*. Phys. Rev. B, vol. 66, page 214109, 2002. (Cité en pages 102 et 104.)
- [Takahashi 2008] R. Takahashi, J. K. Grepstad, T. Tybell et Y. Matsumoto. *Photochemical switching of ultrathin PbTiO<sub>3</sub> films*. Appl. Phys. Lett., vol. 92, page 112901, 2008. (Cité en page 110.)
- [Tang 2010] Y-H. Tang, N. Kioussis, A. Kalitsov, W. H. Butler et R. Car. *Influence of asymmetry on bias behaviour of spin torque*. Phys. Rev. B, vol. 81, no. 054437, 2010. (Cité en page 41.)
- [Tatara 2004] G. Tatara et H. Kohno. *Theory of current-driven domain wall motion : Spin transfer versus momentum transfer*. Phys. Rev. Lett., vol. 92, page 086601, 2004. (Cité en pages 36 et 37.)
- [Tatara 2008] G. Tatara, H. Kohno et J. Shibata. *Theory of domain wall dynamics under current*. J. Phys. Soc. Jpn, vol. 77, page 031003, 2008. (Cité en page 37.)
- [Tenne 2006] D. A. Tenne, A. Bruchhausen, N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, R. S. Katiyar, A. Cantarero, A. Soukiassian, V. Vaithyanathan, J. H. Haeni, W. Tian, D. G. Schlom, K. J. Choi, D. M. Kim, C. B. Eom, H. P. Sun, X. Q. Pan, Y. L. Li, L. Q. Chen, Q. X. Jia, S. M. Nakhmanson, K. M. Rabe et X. X. Xi. *Probing Nanoscale Ferroelectricity by Ultraviolet Raman Spectroscopy*. J. Appl. Phys., vol. 313, page 1614, 2006. (Cité en page 113.)
- [Theodonis 2006] I. Theodonis, N. Kioussis, A. Kalitsov, M. Chshiev et W. H. Butler. *Anomalous bias dependence of spin torque in magnetic tunnel junctions*. Phys. Rev. Lett., vol. 97, no. 237205, 2006. (Cité en pages 39 et 41.)
- [Thiaville 2005] A. Thiaville, Y. Nakatani, J. Miltat et Y. Suzuki. *Micromagnetic understanding of current-driven domain wall motion in patterned nanowires*. Europhys. Lett., vol. 69, pages 990–996, 2005. (Cité en pages 36 et 37.)
- [Thiaville 2006] A. Thiaville et Y. Nakatani. Spin dynamics in confined magnetic structures iii. Springer, 2006. (Cité en page 28.)
- [Thomas 2006] L. Thomas et al. *Oscillatory dependence of current-driven magnetic domain wall motion on current pulse length*. Nature, vol. 447, page 197, 2006. (Cité en page 37.)

- [Tomashpolski 1974] Y. Y. Tomashpolski. *Structure studies of ferroelectric vacuum deposit*. Ferroelectrics, vol. 7, page 253, 1974. (Cit  en page 112.)
- [Torrezan 2011] A. C. Torrezan, J. P. Strachan, G. Medeiros-Ribeiro et R. S. Williams. *Sub-nanosecond switching of a tantalum oxide memristor*. Nanotechnology, vol. 22, page 485203, 2011. (Cit  en page 136.)
- [Tserkovnyak 2006] Y. Tserkovnyak, H.J. Skadsem, A. Braatas et G.E.W. Bauer. *Current-induced magnetization dynamics in disordered itinerant ferromagnets*. Phys. Rev. B, vol. 74, page 144405, 2006. (Cit  en page 37.)
- [Tsymbal 2006] E. Y. Tsymbal et H. Kohlstedt. *Tunneling across a ferroelectric*. Science, vol. 313, pages 181–183, 2006. (Cit  en page 115.)
- [Tsymbal 2011] E. Y. Tsymbal et I. Zutic. *Handbook of Spin Transport and Magnetism*. Chapman and Hall/CRC, 2011. (Cit  en page 24.)
- [Uhlir 2010] V. Uhlir et al. *Current-induced motion and pinning of domain walls in spin-valve nanowires studied by XMCD-PEEM*. Phys. Rev. B, vol. 81, page 224418, 2010. (Cit  en page 38.)
- [Unguris 1991] J. Unguris, R. J. Celotta et D. T. Pierce. *Observation of two different oscillation periods in the exchange coupling of Fe/Cr/Fe(100)*. Phys. Rev. Lett., vol. 67, no. 140, 1991. (Cit  en page 49.)
- [Valencia 2011] S. Valencia, A. Crassous, L. Bocher, V. Garcia, X. Moya, R. O. Cherifi, C. Deranlot, K. Bouzouane, S. Fusil, A. Zobelli, A. Gloter, N. D. Mathur, A. Gaupp, R. Abrudan, F. Radu, A. Barth l my et M. Bibes. *Interface-induced room-temperature multiferroicity in BaTiO<sub>3</sub>*. Nature Mater., vol. 10, pages 753–758, 2011. (Cit  en page 116.)
- [Valov 2011] I. Valov, R. Waser, J. R. Jameson et M. N. Kozicki. *Electrochemical metallization memories-fundamentals, applications, prospects*. Nanotechnology, vol. 22, page 254003, 2011. (Cit  en page 14.)
- [Vanhaverbeke 2007] A. Vanhaverbeke et M. Viret. *Simple model of current-induced spin torque in domain walls*. Phys. Rev. B, vol. 75, page 024411, 2007. (Cit  en page 37.)
- [Velev 2007] J. P. Velev, C. G. Duan, K. D. Belashchenko, S. S. Jaswal et E. Y. Tsymbal. *Effect of Ferroelectricity on Electron Transport in Pt BaTiO<sub>3</sub> Pt Tunnel Junctions*. Phys. Rev. Lett., vol. 98, page 137201, 2007. (Cit  en page 117.)
- [Visinoiu 2002] A. Visinoiu, R. Scholz, S. Chattopadhyay, M. Alexe et D. Hesse. *Formation of Epitaxial BaTiO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> Multilayers Grown on Nb-Doped SrTiO<sub>3</sub> (001) Substrates*. Jpn. J. Appl. Phys., vol. 41, page 6633, 2002. (Cit  en page 114.)

- [Waintal 2004] X. Waintal et M. Viret. *Current-induced distortion of a magnetic domain wall*. Europhys. Lett., vol. 65, pages 427–433, 2004. (Cité en page 37.)
- [Wang 2009a] C. Wang, Y.-T. Cui, J. Z. Sun, J. A. Katine, R. A. Buhrman et D. C. Ralph. *Sensitivity of spin-torque diodes for frequency-tunable resonant microwave detection*. J. Appl. Phys., vol. 106, page 053905, 2009. (Cité en pages 51 et 56.)
- [Wang 2009b] X. Wang, Y. Chen, H. Xi, H. Li et D. Dimitrov. *Spintronic memristor through spin-torque-induced magnetization motion*. IEEE Electron Device Lett., vol. 30, pages 294–297, 2009. (Cité en pages 19 et 34.)
- [Wen 2013] Z. Wen, C. Li, D. Wu, A. Li et N. Ming. *Ferroelectric-field-effect-enhanced electroresistance in metal/ferroelectric/semiconductor tunnel junctions*. Nature Mater., vol. 12, pages 617–621, 2013. (Cité en page 149.)
- [Wiese 2007] N. Wiese, T. Dimopoulos, M. Ruhrig, J. Wecker, G. Reiss, J. Sort et J. Nogues. *Strong temperature dependence of antiferromagnetic coupling in CoFeB/Ru/CoFeB*. Europhys. Lett., vol. 78, page 67002, 2007. (Cité en page 67.)
- [Xiao 2008] J. Xiao, G. E. W. Bauer et A. Brataas. *Spin-transfer torque in magnetic tunnel junctions : Scattering theory*. Phys. Rev. B, vol. 77, page 224419, 2008. (Cité en page 41.)
- [Yamada 2013] H. Yamada, V. Garcia, S. Fusil, S. Boyn, M. Marinova, A. Gloter, S. Xavier, J. Grollier, E. Jacquet, C. Carrétéro, C. Deranlot, M. Bibes et A. Barthélémy. *Giant electroresistance of super-tetragonal BiFeO<sub>3</sub>-based ferroelectric tunnel junctions*. ACS Nano., vol. 7, pages 5385–5390, 2013. (Cité en page 150.)
- [Yang 2008] J. J. Yang, M. D. Pickett, X. Li, D. A. A. Ohlberg, D. R. Stewart et R. S. Williams. *Memristive switching mechanisms for metal/oxide/metal nanodevices*. Nature Nanotech., vol. 3, pages 429–433, 2008. (Cité en page 12.)
- [Yang 2012] J. J. Yang, D. B. Strukov et D. R. Stewart. *Memristive devices for computing*. Nature Nanotech., vol. 8, pages 13–24, 2012. (Cité en page 9.)
- [Yin 2013] Y. W. Yin, J. D. Burton, Y.-M. Kim, A. Y. Borisevich, S. J. Pennycook, S. M. Yang, T. W. Noh, A. Gruverman, X. G. Li, E. Y. Tsybal et Qi Li1. *Enhanced tunnelling electroresistance effect due to a ferroelectrically induced phase transition at a magnetic complex oxide interface*. Nature Mater., 2013. (Cité en page 149.)

- [Yuasa 2004] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki et K. Ando. *Giant room-temperature magnetoresistance in single-crystal Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions*. *Nature Mater.*, vol. 3, pages 868–871, 2004. (Cité en page 49.)
- [Zakhidov 2010] A. A. Zakhidov, B. Jung, J. D. Slinker, Héctor D. Abru na et G. G. Malliaras. *A light-emitting memristor*. *Organic Electronics*, vol. 11, pages 150–153, 2010. (Cité en page 8.)
- [Zhang 1994] Z. Zhang, L. Zhou, P.E. Wigen et K. Ounadjela. *Using ferromagnetic resonance as a sensitive method to study temperature dependence of interlayer exchange coupling*. *Phys. Rev. Lett.*, vol. 73, page 336, 1994. (Cité en page 67.)
- [Zhang 2004] S. Zhang et L. Li. *Roles of nonequilibrium conduction electrons on the magnetization dynamics of ferromagnets*. *Phys. Rev. Lett.*, vol. 93, page 127204, 2004. (Cité en pages 36 et 37.)
- [Zhuravlev 2005] M. Y. Zhuravlev, R. F. Sabirianov, S. S. Jaswal et E. Y. Tsymbal. *Giant electroresistance in ferroelectric tunnel junctions*. *Phys. Rev. Lett.*, vol. 94, no. 246802, 2005. (Cité en pages 114, 117, 118, 130 et 149.)

---

**Résumé :** Durant ce travail de thèse, nous avons étudié deux concepts originaux de memristor fondés sur des effets purement électroniques. Un memristor est une nanorésistance variable non-volatile dont la valeur dépend de la quantité de charges qui l'a traversée. Ce composant est particulièrement prometteur pour des applications en tant qu'élément de mémoire binaire multi-niveaux ou en tant que synapse artificielle pour intégration dans des architectures de calculs neuromorphiques.

Le premier concept, le memristor spintronique, se base sur une jonction tunnel magnétique dans laquelle une paroi magnétique est introduite. Par l'effet de magnétorésistance tunnel, la résistance de la jonction dépend de la configuration magnétique, et donc de la position de la paroi. La variation de résistance est obtenue en déplaçant la paroi grâce à un courant par effet de transfert de spin.

Le deuxième concept, le memristor ferroélectrique, se base sur une jonction tunnel dont la barrière est ferroélectrique. La résistance d'une telle jonction dépend de l'orientation de la polarisation de la barrière ferroélectrique. Nous montrons qu'elle a un fort potentiel en tant qu'élément de mémoire binaire de part la vitesse et l'énergie d'écriture. Le comportement memristif est obtenu par un retournement progressif de la polarisation électrique.

Les résultats expérimentaux obtenus apportent la preuve des concepts. Contrairement aux memristors existants basés sur des processus comme l'électromigration ou le changement de phase, ces deux concepts fondés sur des effets purement électroniques sont prometteurs en termes de rapidité et d'endurance.

**Mots clés :** Memristor ; spintronique ; ferroélectrique ; jonction tunnel ; transfert de spin ; paroi de domaine ; dynamique de retournement de polarisation

---

---

**Abstract :** A memristor is a variable non-volatile nanoresistance which value depends on the quantity of charges that have flown through. This device is very promising as a multi-level binary memory but also as an artificial synapse for brain-inspired computing architecture. During this thesis, we have studied two new concepts of memristor based on purely electronic effects.

The first concept, the spintronic memristor, is based on a magnetic tunnel junction in which a domain wall is created. The resistance of the junction depends on the position of the domain wall. The resistance variations are obtained by displacement of the domain wall induced by spin transfer effect.

The second concept, the ferroelectric memristor, is based on a tunnel junction with a ferroelectric barrier. The resistance of such a junction depends on the orientation of the polarization. We show that those junctions exhibit good performances as a binary memory element. The memristive behaviour is obtained by a gradual switching of the polarization.

The experimental results bring a proof of those concepts. Unlike other memristors based on mechanisms such as electromigration or phase change, our two concepts based on purely electronic effect are expected to be faster and more reliable.

**Keywords :** Memristor ; spintronic ; ferroelectric ; tunnel junction ; spin transfer ; domain-wall ; polarization switching dynamic

---