



HAL
open science

**MAGNETISME ET TRANSPORT POLARISE EN
SPIN DANS DES JONCTIONS TUNNEL
MAGNETIQUES. UTILISATION DU TRANSPORT
TUNNEL COMME UNE SONDE
MICROMAGNETIQUE**

Coriolan Tiusan

► **To cite this version:**

Coriolan Tiusan. MAGNETISME ET TRANSPORT POLARISE EN SPIN DANS DES JONCTIONS TUNNEL MAGNETIQUES. UTILISATION DU TRANSPORT TUNNEL COMME UNE SONDE MICROMAGNETIQUE. Matière Condensée [cond-mat]. Université Louis Pasteur - Strasbourg I, 2000. Français. NNT: . tel-00002763

HAL Id: tel-00002763

<https://theses.hal.science/tel-00002763>

Submitted on 24 Apr 2003

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

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

THESE

présentée pour l'obtention du titre de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ LOUIS PASTEUR DE STRASBOURG

LABEL: DOCTORAT EUROPEEN

Spécialité : Physique de la matière condensée

par

CORIOLAN-VIOREL TIUSAN

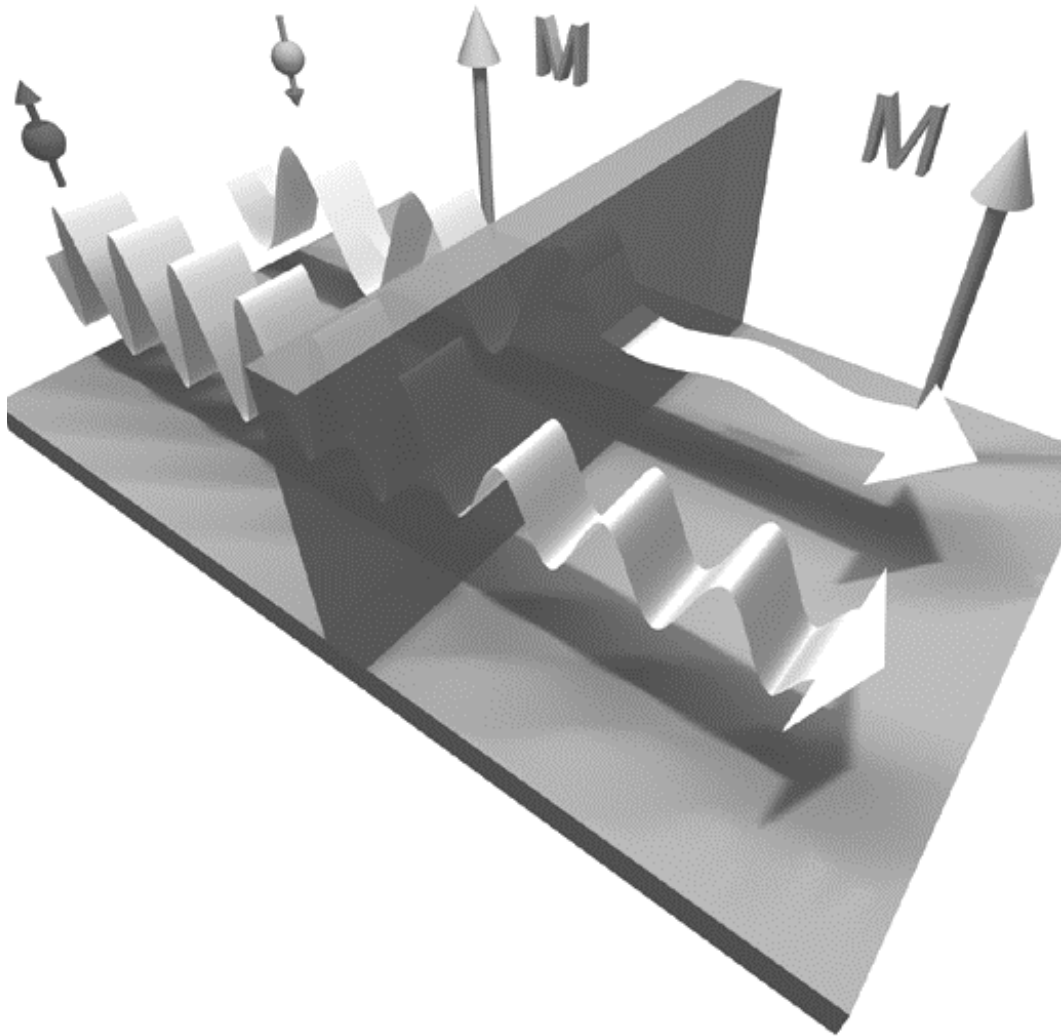
***MAGNETISME ET TRANSPORT POLARISE EN SPIN DANS
DES JONCTIONS TUNNEL MAGNETIQUES. UTILISATION DU
TRANSPORT TUNNEL COMME UNE SONDE
MICROMAGNETIQUE***

Soutenue: le 26 juin 2000

Composition du jury:

MM.	F. Gautier	Rapporteur interne
	J. Gregg	Rapporteur externe
	J. de Boeck	Rapporteur externe
	K. Ounadjela	Directeur de thèse
	H.A.M van den Berg	Co-directeur de thèse
	B. Dieny	Examineur

Invités: MM. E. Burzo
M. Hehn



... *I think I can safely say that Nobody understands Quantum Mechanics!*

said Richard Feynman. *Quantum Mechanics works. Ironically, nobody knows why.*

Anyone who is not shocked by the Quantum Theory

has not understood it! claimed Bohr.

It is so shocking that it was unacceptable even to Einstein and Schrodinger.

Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé à l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux (IPCMS) au sein du Groupe d'Etude des Matériaux Métalliques (GEMM) ainsi que dans les laboratoires de recherches de Siemens Erlangen.

Mes remerciements s'adressent tout d'abord à mon directeur de thèse Kamel Ounadjela qui a dirigé cette thèse. Tout au long de ces trois années de thèse il m'a polarisé avec son enthousiasme pour la recherche et m'a permis de rencontrer et de discuter avec beaucoup de chercheurs.

Michel Hehn a été le codirecteur officiel de ma thèse. Par rapport essentiel pendant le démarrage du projet tunnel à Strasbourg. Par sa disponibilité à tous les instants pour des discussions, conseils, le travail expérimental mais également pour l'aide impressionnante qu'il m'a donné pour l'élaboration du manuscrit en français, il a énormément contribué à ce travail. Il a su également me communiquer la rigueur de la recherche expérimentale. Mille fois merci Michel !!!

Mes remerciements s'adressent aussi à Huyo van den Berg, codirecteur de thèse, et responsable de tous mes travaux scientifiques effectués dans les laboratoires de micro technologie de Siemens Erlangen. Je voudrais le remercier aussi, pour les nombreuses discussions scientifiques et conseils qui ont polarisés le développement du *background* théorique de ma thèse concernant le magnétisme.

Je tiens à remercier Messieurs François Gautier, John Grey, Jo de Boeck, Bernard Dienz, d'avoir accepté de rapporter ce mémoire et d'être dans le Jury de ma thèse. Un grand merci à John pour son soutien, son positivisme et l'enthousiasme qu'il a montré pour mon travail de thèse.

Je tiens également à remercier mon professeur de magnétisme Emil Burzo pour avoir été présent à la soutenance de la thèse, pour la lecture rigoureuse du mémoire, mais surtout pour l'opportunité qu'il m'a offert grâce aux nombreux projets internationaux de collaboration inter universités, de effectuer mes études post universitaires à Strasbourg.

Je voudrais remercier ici celui qui a été mon premier coordonnateur de recherches dans l'Institut de Technologie Isotopique et Moléculaire de Cluj Napoca Roumanie: Nicolae Aldea. Il m'a ouvert l'horizon de la recherche scientifique, dans le domaine théorique et m'a toujours encouragé avec son optimisme et enthousiasme. L'apport qu'il a eu pour la formation de ma personnalité scientifique a été fondamental. Encore mille fois merci !

Mes remerciements s'adressent aussi à Pierre Panissod, qui a accepté de lire avec objectivité ce manuscrit. Pour ces conseils scientifiques précieux, un grand merci.

Je tiens également à remercier ici toutes les personnes qui, de près ou de loin, ont contribué à ce travail:

Daniel Stoeffler pour son aide et ses conseils scientifiques rigoureux sur la partie théorique du transport tunnel. Un grand merci aussi pour les encouragements et les conseils précieux dans des situations clefs pendant cette thèse.

Jacek Arabski qui m'a initié dans les techniques de l'ultravide et de l'élaboration des films minces par MBE. Christian Meny, Manu Acosta, Guy Schmerber, qui m'ont permis de découvrir « le monde de la pulvérisation cathodique », d'élaborer des systèmes en couches minces, pendant toute la durée de la thèse.

Yves Henry, qui m'a formé à l'AGFM, pour sa contribution à la réalisation d'un manip de transport tunnel et pour les discussions et les conseils.

Ludwig Baer, Ralph Kinder, qui m'ont initié à la lithographie UV et à la gravure dans les laboratoires de micro électronique de Siemens Erlangen.

Gérard Wurtz et Gaby Ehret, qui m'ont ouvert le monde de la microscopie électronique en transmission et m'ont permis de visualiser des très belles images de Jonctions tunnel en section transverse.

Robert Stampf pour les très enrichissantes discussions que nous avons eues, et pour son initiation dans le monde fascinant du magnétisme des parois de domaines.

Victor da Costa qui a toujours été prêt à dispenser ses conseils pour la microscopie en champ proche et qui a réalisé la cartographie tunnel des barrières isolantes de nos Jonctions tunnel. Un grand merci aussi, Victor, pour tes encouragements dans les moments difficiles et pour le plaisir de discuter d'aspects physiques intéressants.

Ursula Ebels pour des discussions et conseils scientifiques précieux.

Et parmi eux, Je voudrais remercier mes collègues stagiaires, thésards ou ex thésards, qui m'ont encouragé, aidé, avec qui j'ai papoté, bu des cafés, rigolé, stressé, etc. etc. Brice Arnaud, Olivier Benyone, Liliana Buda, Lackdar Bensmina, Idris Chado, Salia Cheriffi, Silviu Colis, Clara Cornea Stoeffler, Marc Demand (présence permanente *live* ou *internet*), David Deck, Theodoros Dimopoulos (*thanks a lot Theo for your real help concerning lithography, very fruitful scientific discussions, writing papers, jokes and fun,...*), Ovidiu Ersen, Iosif Galanakis, Gorka, Wilfried Granye (un nouveau « prisonnier » de l'électronique de spin), Michel Mac Guth, Sorin Jurca (Alo?), Peter Krueger, Mariola Malinowska, Mairbek Chshiev, Salvador Meza Aguilar, Stéphane Padovani, Laurent Pizzayalli, Nathalie Persat, Lucian PreJbeanu, Dana et Stefan Stanescu, Stephan Zoll.

Many thanks again to John Greyy, Will Allen and Martin Thornton for the hospitality and brilliant scientific discussions during my staying in the *Clarendon Laboratories, Oxford*.

... et également les permanents: François Bardou (le monde fascinant des événements rares), Alain Derory, Aziz Dinia, Claude Demangeat, Hugues Dreyssé, Silvain Eimer, Jacques Ferber, Tonny Herr, Jean Hommet (un grand merci pour toutes les mesures de XPS qui m'ont permis de caractériser chimiquement les barrières tunnel), Rodolfo Jalabert, Francine Lapp, Sébastien Ottoyalli, Richard Poinot, J.C. Parlebas, Michelangelo Roméo, Daniel Spon, Corinne Uhlay.

Mon travail a été soutenu financièrement par des Contrats européens qui en ont créé le cadre : European Brute Euram. Program. No. BRPR CT95 001. le Framework IV Materials Technology Programme. Contrat No. BRPR CT98 0657. le Programme Dynaspin. Training and Mobility of Researcher Network. Contract No. FMRX CT97 0147. le Programme Nanomem. Contrat No. IST 1999 13741.

Je voudrais remercier pour leur soutien continu. durant toute cette période. mon épouse Alina Maria et mes parents.

Table de matières

Introduction générale

Chapitre 1: Introduction à la physique des jonctions tunnel magnétiques

1.1. Introduction	1
1.2. L'état de l'art.....	2
1.3. Applications des jonctions tunnel magnétiques	6
1.3.1. <i>Capteurs magnétorésistifs</i>	6
1.3.2. <i>Mémoires magnétiques</i>	8
1.3.3. <i>Transistors magnétiques à effet tunnel</i>	10
1.3.4. <i>La JTM, sonde pour étudier le magnétisme de couches minces magnétiques</i>	10
1.4. Transport polarisé en spin à travers une barrière isolante, magnétorésistance tunnel (TMR).....	11
1.4.1. <i>Conduction par effet tunnel entre deux métaux. Relation courant- tension pour une jonction métal isolant métal</i>	11
1.4.2. <i>Approximation des électrons libres</i>	14
1.4.3. <i>Effet tunnel polarisé en spin dans une jonction métal ferromagnétique isolant métal ferromagnétique</i>	16
1.4.4. <i>Au-delà de l'approximation des électrons libres</i>	22
1.4.5. <i>Les événements rares dans le transport tunnel</i>	25
1.5. Conclusion du chapitre 1	25
Références du chapitre 1	27

Chapitre 2: Techniques d'élaboration et d'analyse de jonctions tunnel magnétiques

2.1. Techniques d'élaboration de jonction tunnel magnétiques	29
2.1.1. <i>Préparation des échantillons par pulvérisation cathodique</i>	29
2.1.2. <i>Structuration des jonctions par lithographie optique</i>	31
2.2. Techniques de caractérisation	37
2.2.1. <i>Caractérisation structurale</i>	
a) <i>Diffraction de rayons X (XRD)</i>	37
b) <i>Spectroscopie X de photo- émission d'électrons (XPS)</i>	38
c) <i>Microscopie électronique en transmission (MET)</i>	38
d) <i>Microscopie à force atomique (AFM)</i>	39

2.2.2. <i>Analyse des propriétés magnétiques</i>	
a) Magnétomètre AGFM- étude des propriétés magnétiques à l'échelle macroscopique	41
b) Microscopie de force magnétique (MFM) -étude des propriétés magnétiques à l'échelle microscopique.....	42
2.2.3. <i>Analyse des propriétés de transport</i>	
a) Mesures de transport dans une géométrie à quatre pointes - propriétés à l'échelle microscopique	44
b) Cartographie des courants tunnel - propriétés de transport à l'échelle nanoscopique.....	45
Références du chapitre 2.....	49

Chapitre 3: Croissance et propriétés structurales des multicouches

3.1. Contexte et objectifs de ce travail.....	51
3.2. Design d'une jonction tunnel à base de système antiferromagnétique artificiel.....	53
3.3. Fabrication des empilements multicouches: croissance, oxydation	54
3.3.1. <i>Croissance</i>	54
3.3.2. <i>Oxydation</i>	55
a) L'oxydation thermique	55
b) L'oxydation dans une plasma RF.....	57
3.4. Caractérisation structurale.....	59
3.4.1. <i>Propriétés cristallographiques des multicouches (XRD)</i>	59
3.4.2. <i>Propriétés topographiques des surfaces (AFM, TEM)</i>	61
a) Analyse par la microscopie à force atomique (AFM).....	61
b) Analyse des interfaces par microscopie électronique en transmission (MET).....	66
3.4.3. <i>Propriétés chimiques de la barrière tunnel (XPS) Optimisation du temps d'oxydation</i>	68
3.5. Conclusion du chapitre 3	71
Références du chapitre 3	73

Chapitre 4: Propriétés magnétiques des jonctions tunnel magnétorésistives, à l'échelle macroscopique et microscopique

4.1. Magnétisme à l'échelle macroscopique.....	75
--	----

4.1.1. <i>Fonctionnement d'un système antiferromagnétique artificiel</i>	76
4.1.2. <i>Propriétés magnétiques macroscopiques des couche uniques</i>	82
4.1.3. <i>Propriétés magnétiques macroscopiques des systèmes antiferromagnétiques artificiels</i>	88
4.2. Magnétisme à l'échelle microscopique	96
4.2.1. <i>Propriétés microscopiques des couches uniques</i>	97
4.2.2. <i>Propriétés microscopiques des systèmes antiferromagnétiques artificiels</i>	104
4.2.3. <i>Stabilité des parois à 360° dans les couches magnétiques d'un système AAF</i>	111
4.2.4. <i>Analyse du contraste MFM donnée par une paroi à 360°</i>	115
4.3. Magnétisme du sous- système magnétique doux.....	118
4.3.1. <i>Architecture du sous- système magnétique doux</i>	118
4.3.2. <i>Couplage magnétique entre les deux électrodes d'une JTM</i>	121
4.3.3. <i>Magnétisme du sous-système magnétique doux, à l'échelle macroscopique et microscopique</i>	124
4.4. Conclusion de chapitre.....	138
Références du chapitre 4	141

Chapitre 5: Transport polarisé en spin dans les jonctions magnétiques tunnel

5.1. Transport polarisé en spin dans les JTMs basées sur le système AAF.....	145
5.2. Corrélation entre le micromagnétisme et la magnétorésistance tunnel dans le JTM.....	157
5.2.1. <i>Forme des cycles TMR est structures en domaines</i>	157
5.2.2. <i>Modèle électrique pour la JTM dans un état multidomaine</i>	159
5.2.3. <i>Illustration de l'effet de la structure en domaines sur le signal TMR</i>	162
5.3. Utilisation du transport tunnel dans une JTM comme sonde pour étudier le micromagnétisme de ses électrodes	172
5.4. Conclusion	177

5.5. Propriétés de transport à l'échelle nanoscopique par cartographie des courants tunnel.....	179
5.6. Conclusion de chapitre	184
Références du chapitre 5	187
Chapitre 6: Perspectives	189
6.1. Transistor magnétique à effet tunnel - Mémoires magnétiques non-volatiles	190
6.2. Propriétés micromagnétiques statiques et dynamiques d'objets multicouches complexes de taille submicronique	193
Références du chapitre 6.....	197
Appendices	199
Appendice A <i>Correlation between micromagnetism and tunnel magnetoresistance in magnetic tunnel junctions using artificial ferrimagnets</i>	A1
Appendice B <i>Tunnel magnetoresistance and induced domain structure in Al₂O₃ based junctions</i>	A15
Appendice C <i>Analysis of domain wall influence on the TMR signal</i>	A21
Appendice D <i>Liste de publications issues du travail de thèse</i>	A28

Introduction générale

Les percées technologiques dans les méthodes d'élaboration des matériaux ont permis tout au long de ces 30 dernières années la mise au point de structures artificielles constituées de couches de quelques plans atomiques d'épaisseur ou d'un empilement de ces couches appelé multicouche. En utilisant une ou plusieurs techniques de dépôt au sein d'un complexe d'élaboration unique, il est possible d'associer dans une multicouche des matériaux métalliques magnétiques, des semi-conducteurs ainsi que des isolants. Un effort de recherche considérable s'est concentré sur les structures hybrides métal ferromagnétique / isolant / métal ferromagnétique (MF/I/MF) ou semi-conducteur / métal ferromagnétique dans lesquelles est mis à profit l'association des propriétés intrinsèques de chaque matériau.

Depuis sa découverte en 1975 par Jullière, l'effet tunnel dépendant du spin dans des structures MF/I/MF a connu un regain d'intérêt ces cinq dernières années avec sa mise en évidence à température ambiante et avec ses multiples applications possibles pour l'élaboration de nouveaux dispositifs micro-électroniques. Les électrons, injectés perpendiculairement à une multicouche hybride MF/I/MF composant une jonction tunnel magnétique (JTM), se polarisent au passage des électrodes magnétiques et traversent la barrière isolante par effet tunnel. La transmission tunnel dépend alors de l'orientation relative des aimantations des deux électrodes magnétiques et des caractéristiques de la barrière tunnel. Les résistances des JTMs varient de plus de 20% sous champ en modifiant de manière sélective l'orientation de l'aimantation d'une électrode par rapport à l'autre. La réalisation et l'étude de ces systèmes sont d'une importance technologique majeure étant données les applications multiples pour le stockage de l'information, la réalisation de capteurs magnéto-résistifs, etc....

Cependant, depuis 1995, la grande majorité des études a été dédiée à l'optimisation des méthodes de fabrication de la barrière tunnel. En effet, cette partie de la jonction peut être sujette à un grand nombre de défauts : défauts naturels ou artificiels, rugosité de la barrière, inhomogénéité chimique de la barrière, sur- ou sous- oxydation de la barrière. Les effets de

certaines de ces défauts ont d'ores et déjà été mis en évidence. A l'inverse, depuis le premier modèle de Jullière, peu d'études ont été dédiées au magnétisme des électrodes et à son influence sur la réponse magnéto-résistive des jonctions.

Ce travail de thèse est au centre de ces nouvelles préoccupations et il nous a amené à élaborer des jonctions tunnel magnétiques de taille micrométrique et à étudier les corrélations entre leurs propriétés magnétiques et le transport polarisé en spin à des échelles macroscopiques et microscopiques. Cette corrélation constitue le premier aspect novateur de ce travail de thèse. Il s'est avéré que, grâce à la sensibilité extrême du transport tunnel polarisé en spin aux fluctuations de l'aimantation aux interfaces métal ferromagnétique/oxyde, les jonctions magnéto-résistives sont des systèmes idéaux pour étudier sélectivement l'évolution de la structure en domaines des couches ferromagnétiques en contact avec la barrière en fonction du champ magnétique appliqué.

De plus, si de manière générale il est facile de stabiliser des couches magnétiques douces, il est beaucoup plus difficile d'obtenir des coercivités supérieures à la centaine d'Oersted pour des couches uniques non épitaxiées. Les couches sont alors rigidifiées par association avec une couche composée d'un matériau antiferromagnétique ou avec une couche magnétique via un couplage antiferromagnétique. Le second aspect novateur de ce travail de thèse repose sur l'utilisation d'un système antiferromagnétique artificiel comme système magnétiquement dur dans la jonction tunnel magnétique. Ce système est constitué de deux couches magnétiques d'épaisseurs différentes, couplées antiferromagnétiquement à travers une couche non magnétique. Comme nous l'avons montré dans le cadre de ce travail de thèse, les structures AAF permettent d'obtenir une très grande rigidité magnétique bien contrôlée et ajustable avec une grande stabilité thermique ($>300^{\circ}\text{C}$).

Ce mémoire est organisé de la manière suivante.

Le premier chapitre est une introduction à la physique des jonctions tunnel. Il décrit le cadre général dans lequel s'inscrit ce travail de thèse et les applications des jonctions tunnel dans l'électronique de spin. Ensuite, nous exposerons des aspects théoriques concernant le transport polarisé en spin dans une structure métal ferromagnétique / oxyde / métal ferromagnétique.

Dans le second chapitre, nous présentons tout d'abord les techniques d'élaboration des jonctions tunnel, notamment la préparation des échantillons à l'aide de la pulvérisation cathodique et la structuration des jonctions par lithographie optique. Puis, nous présentons les techniques de caractérisation des propriétés structurales, magnétiques et de transport des JTM.

Le chapitre 3 présente l'étude de la croissance des empilements multicouches des jonctions tunnel (croissance, oxydation) et leurs propriétés structurales étudiées par les techniques expérimentales décrites dans le chapitre 2.

Le chapitre 4 est dédié à l'étude des propriétés magnétiques des différentes couches d'une JTM, à l'échelle macroscopique et microscopique. Nous nous intéresserons aux propriétés magnétiques des couches uniques, des systèmes AAF et de la couche de détection. Nous mettons plus particulièrement l'accent sur le micromagnétisme de ces systèmes, analysé à l'aide de la microscopie à force magnétique.

Le chapitre 5 est consacré aux propriétés de transport polarisé en spin dans les jonctions tunnel magnétiques. Un accent particulier a été porté sur la corrélation entre le micromagnétisme de l'AAF et la magnéto-résistance tunnel. Dans ce chapitre, la JTM est alors utilisée comme une sonde micromagnétique.

Enfin, le chapitre 6 est consacré aux perspectives issues de ce travail de thèse et notamment à la réalisation de nouveaux dispositifs micro-électroniques à base de jonctions tunnel: le transistor magnétique et les mémoires magnétiques non-volatiles. Le développement de ces dispositifs doit être poursuivi en parallèle avec l'étude fondamentale des propriétés magnétiques statiques et dynamiques de petits objets multicouches complexes de taille micronique et submicronique.

Chapitre 1

Introduction à la physique des jonctions tunnel magnétiques

1.1. Introduction

L'effet tunnel, interdit par la physique classique, apparaît comme un fait naturel dans la physique quantique. De la même façon qu'une onde électromagnétique incidente sur une lame mince sous un angle plus petit que l'angle qui correspond à la réflexion totale est partiellement transmise, les électrons incidents sur une barrière de potentiel suffisamment mince peuvent être transmis même si leur énergie est plus petite que la hauteur de la barrière. Cette propriété provient de la nature ondulatoire des électrons qui leur est conférée par la mécanique quantique.

L'effet tunnel représente alors le passage d'une particule quantique à travers une barrière de potentiel quand l'énergie de la particule ne dépasse pas la hauteur de la barrière. D'un point de vue classique, une particule peut traverser une barrière d'énergie potentielle seulement si son énergie est suffisante pour passer par-dessus la barrière. La notion d'effet tunnel, c'est à dire le passage d'un électron à travers une barrière de potentiel, est apparue en même temps que la mécanique quantique. Dans la mécanique quantique, chaque particule est associée à une fonction d'onde ψ qui décrit la probabilité $\Psi(r)$ de trouver la particule dans l'élément de volume dr , $\Psi(r) = \psi \psi^* dr$. La nature ondulatoire de la particule incidente sur une barrière de potentiel conduit à une probabilité non-nulle de la trouver de l'autre côté de la barrière dans le cas où l'épaisseur de la barrière est plus petite que la longueur d'onde associée à la particule.

Toutefois, depuis le premier postulat de l'effet tunnel par Oppenheimer en 1928 [Oppenheimer] et cela jusqu'à ces dernières années, le spin de l'électron a été négligé dans les phénomènes de transport et notamment dans l'effet tunnel. Pourtant, l'implication du spin

dans les mécanismes de transport électronique est colossale. L'utilisation du spin de l'électron dans les phénomènes de transport, a ouvert une nouvelle branche en micro-électronique en donnant naissance à ce qu'on appelle l'électronique de spin.

L'effet tunnel dépendant du spin a connu un regain d'intérêt avec sa mise évidence à température ambiante et grâce à ses nombreuses applications pour l'élaboration de nouveaux dispositifs micro-électroniques. Les électrons, injectés perpendiculairement à une multicouche hybride métal/isolant composant une jonction tunnel magnétique (JTM), se polarisent au passage des électrodes magnétiques et traversent la barrière isolante par effet tunnel. Cette transmission tunnel dépend de l'orientation relative des aimantations des électrodes magnétiques et des caractéristiques de la barrière. Les résistances des JTM varient de plus de 20% sous champ magnétique en modifiant de manière sélective l'orientation de l'aimantation d'une électrode par rapport à l'autre.

Une nouvelle génération de dispositifs électroniques est apparue ces dernières années sur le marché de l'électronique : capteurs, dispositifs non- linéaires comme les jonctions tunnel magnétiques, transistors de spin, mémoires magnétiques non volatiles (MRAM).

1.2. L'état de l'art

Dans le domaine des circuits électroniques, l'utilisation du spin de l'électron est à l'origine de nouveaux dispositifs, notamment basés sur l'utilisation de jonctions tunnel magnétiques.

Sous sa forme la plus simplifiée, une JTM est constituée de deux électrodes ferromagnétiques ayant des champs coercitifs différents, qui sont séparées par une barrière isolante. Son fonctionnement combine l'effet tunnel quantique des électrons avec l'asymétrie des densités d'états des bandes électroniques observée pour les deux spins des électrons dans les matériaux ferromagnétiques. En négligeant la diffusion de spin, et donc en supposant que le spin de l'électron est conservé lors du processus tunnel, la probabilité de transmission par effet tunnel pour un électron polarisé en spin dépend de l'orientation relative des aimantations des couches ferromagnétiques. Le fonctionnement d'une JTM est schématisé dans la figure 1.1 en utilisant le modèle de Jullière [Jullière75]. Ce modèle pour la magnétorésistance tunnel est basé sur la notion de polarisation P des métaux ferromagnétiques définie comme la différence relative des densités d'état au niveau de Fermi pour les deux bandes de spin:

$$P = \frac{n_1^\uparrow(E_F) - n_1^\downarrow(E_F)}{n_1^\uparrow(E_F) + n_1^\downarrow(E_F)} \quad (1.1)$$

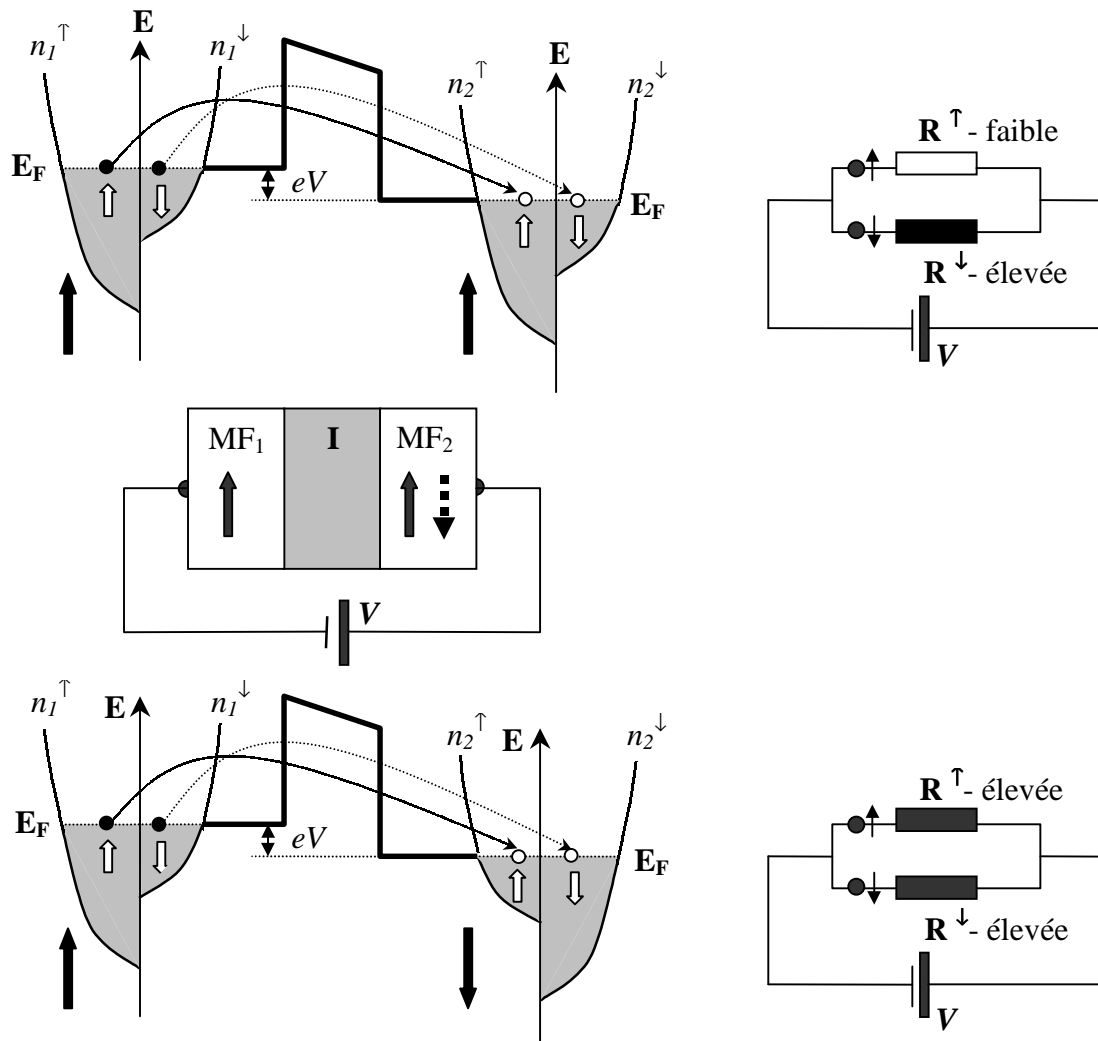


Figure 1.1. Effet tunnel entre deux métaux ferromagnétiques séparés par une barrière isolante rectangulaire, déformée par une tension électrique appliquée V . Les densités d'états $n_1^\uparrow(E)$, $n_1^\downarrow(E)$, $n_2^\uparrow(E)$ et $n_2^\downarrow(E)$ sont schématisées dans cette figure par des paraboles décalées en énergie par l'échange. En considérant que le spin de l'électron est conservé lors du processus tunnel de manière indépendante, les électrons de spin *up* et de spin *down* peuvent traverser la barrière tunnel de manière indépendante. Alors, la conduction électrique dans une jonction tunnel peut être modélisée par un réseau de deux résistances électriques connectées en parallèle, chaque résistance correspondant à un canal de spin. La résistance totale de la jonction tunnel est analysée dans les situations pour lesquelles les aimantations dans les deux électrodes se trouvent dans une configuration parallèle ou antiparallèle.

Ce modèle suppose que la conduction s'effectue par deux canaux de spin indépendants et que la conductivité est proportionnelle au produit des densités d'états libres et occupées de chaque côté de la barrière sans tenir compte de la probabilité de transmission par effet tunnel pour les électrons de chaque direction de spin.

On définit alors la magnéto-résistance par :

$$TMR = \frac{R_{ap} - R_p}{R_p} = \frac{J_p - J_{ap}}{J_{ap}} = \frac{(n_1^\uparrow n_2^\uparrow + n_1^\downarrow n_2^\downarrow) - (n_1^\uparrow n_2^\downarrow + n_1^\downarrow n_2^\uparrow)}{(n_1^\uparrow n_2^\downarrow + n_1^\downarrow n_2^\uparrow)} = \frac{2P_1 P_2}{1 - P_1 P_2} \quad (1.2)$$

Dans une configuration parallèle des aimantations des deux matériaux ferromagnétiques (MF), les densités d'états de spin *up*, $n_1^\uparrow(E)$ et $n_2^\uparrow(E)$ sont majoritaires dans chacune des électrodes MF₁ et MF₂. La transmission des électrons de spin *up* (notation : \uparrow ; $\sigma = | + \rangle$) se fait entre des états majoritaires de chaque côté de la barrière, ce qui détermine un courant de spin important et donc une faible résistance de la jonction tunnel pour ce canal de spin. Les densités d'états de spin *down*, $n_1^\downarrow(E)$ et $n_2^\downarrow(E)$ (notation : \downarrow ; $\sigma = | - \rangle$), sont minoritaires dans chacune des électrodes ferromagnétiques, ce qui détermine un courant de spin faible ainsi qu'une résistance élevée pour ce canal de spin. La résistance totale de la jonction provient de la mise en parallèle des résistances des deux canaux de spin. Ainsi, pour une configuration parallèle des aimantations, la résistance de la jonction tunnel est faible.

Dans la configuration antiparallèle des aimantations, les électrons traversent la barrière par effet tunnel des états $n_1^\uparrow(E)$ majoritaires respectivement $n_1^\downarrow(E)$ minoritaires dans l'électrode MF₁ vers des états $n_2^\uparrow(E)$ minoritaires respectivement $n_2^\downarrow(E)$ majoritaires dans l'électrode MF₂ pour les canaux de conduction correspondant aux électrons ayant le spin *up* respectivement spin *down*. Les résistances électriques correspondant à chaque canal de spin sont alors élevées et donc la résistance totale de la jonction est élevée.

Dans le mécanisme de fonctionnement d'une jonction tunnel décrit ci-dessus, le facteur clé pour contrôler l'orientation relative des aimantations dans les électrodes magnétiques est la rigidité magnétique différente des deux électrodes (champs coercitifs différents). Dans une architecture appelée douce-dure, une des couches magnétiques est magnétiquement dure alors que l'autre est magnétiquement douce.

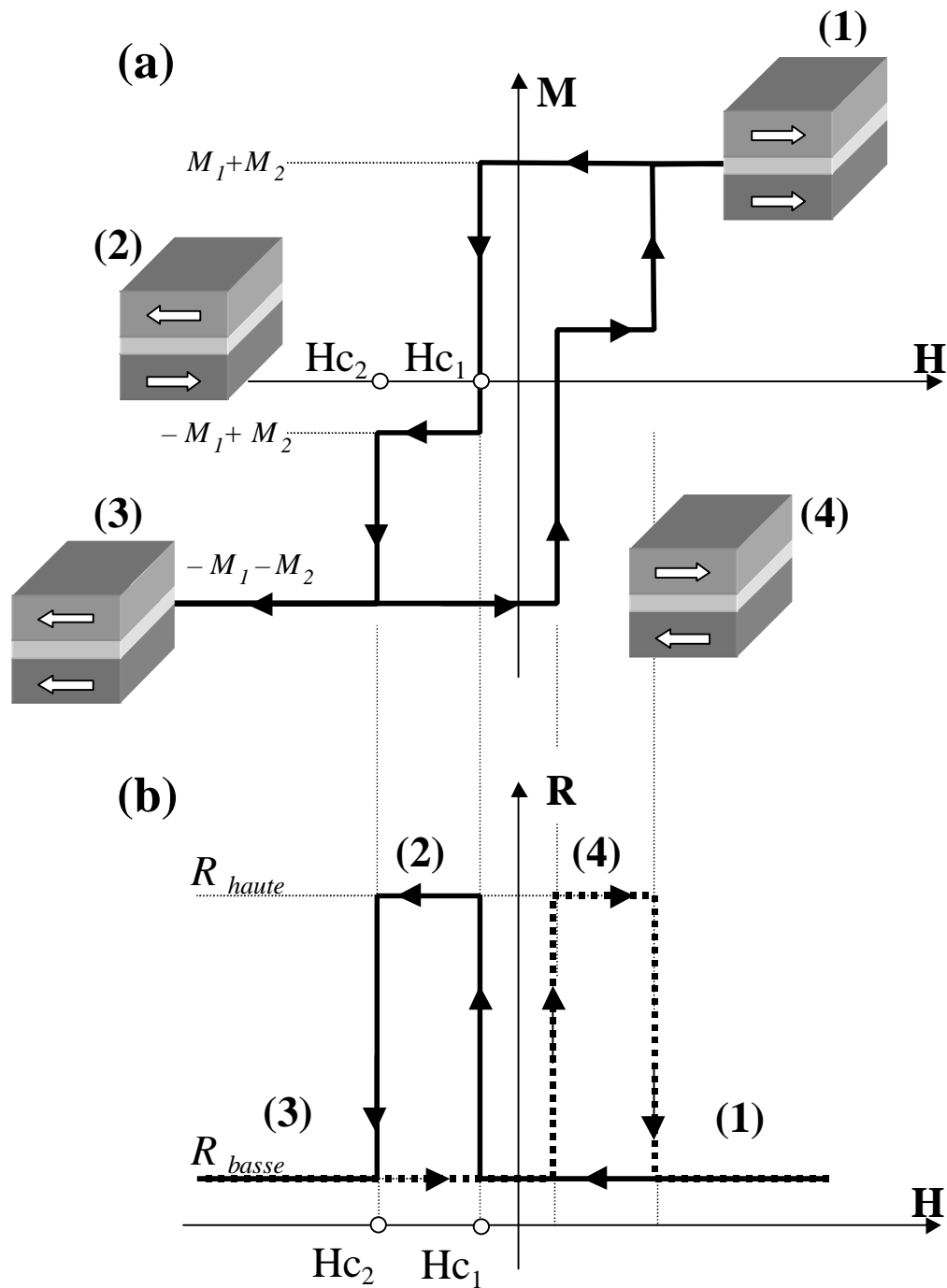


Figure 1.2. Fonctionnement d'une jonction tunnel magnétique idéale. Les deux électrodes magnétiques ont des champs coercitifs différents ($H_{c2} > H_{c1}$) et leurs cycles d'aimantation sont supposés parfaitement carrés. A partir du cycle d'aimantation total M - H (a), on peut estimer l'allure du cycle de magnéto-résistance R - H (b). Les schémas (1) - (4) montrent la configuration magnétique des électrodes dans la jonction tunnel, pour des valeurs représentatives du champ magnétique.

Dans des champs magnétiques plus faibles que le champ coercitif de la couche dure, cette couche est magnétiquement rigide. Par contre, l'aimantation de la couche douce va être

sensible au champ magnétique extérieur, et par conséquent elle va pouvoir basculer entre une configuration parallèle ou antiparallèle à l'aimantation de la couche dure, par l'intermédiaire d'un champ appliqué.

Une description du fonctionnement d'une jonction tunnel magnétique idéale est donnée dans la figure 1.2. Le comportement magnétique des électrodes magnétiques est considéré comme idéal c'est à dire que les cycles d'aimantation sont parfaitement carrés. Dans un champ magnétique positif, les deux couches magnétiques sont saturées dans la direction du champ positif (état (1), figure 1.2(a)). Cette configuration correspond à une orientation parallèle des aimantations des électrodes et donc à une résistance tunnel faible (état (1), figure 1.2 (b)). En renversant le champ magnétique appliqué, l'état parallèle de faible résistance est conservé jusqu'au renversement du moment magnétique de la couche douce qui se fait d'une manière abrupte au champ coercitif négatif $-H_{c1}$. La couche magnétiquement dure reste toujours rigide, parallèle à la direction initiale du champ positif tant que le champ négatif appliqué n'est pas inférieur à $-H_{c2}$. Ainsi, les couches magnétiques se trouvent dans un arrangement antiparallèle ce qui correspond à un état de résistance tunnel élevée de la jonction (état (2), figure 1.2 (b)). Quand le champ négatif dépasse le coercitif de la couche dure, $H < -H_{c2}$, l'aimantation de la couche dure se renverse dans la direction du champ magnétique négatif appliqué. Les aimantations passent donc dans une configuration parallèle (état (3), figure 1.2 (b)) et par conséquent la jonction tunnel bascule vers un état de faible résistance tunnel (état (3), figure 1.2 (b)).

1.3. Applications des jonctions tunnel magnétiques

L'intérêt porté sur ces phénomènes de transport dépendant du spin est fortement motivé par ses applications industrielles pour le stockage de l'information et pour les différents capteurs de champ magnétique qu'il est possible de réaliser.

1.3.1. Capteurs magnétorésistifs

Les capteurs magnétorésistifs couvrent une très large gamme d'applications comme les détecteurs de champ magnétique, les capteurs de position, les encodeurs, les tachymètres, les interrupteurs de proximité... ou encore les têtes de lecture magnétiques pour disques durs. Grâce à une très grande sensibilité du courant tunnel à l'orientation relative des électrodes

magnétiques, accompagnée d'une valeur élevée de l'impédance de la JTM par rapport aux autres capteurs classiques «tout métaux», les jonctions tunnel magnétiques sont des candidats idéaux pour la réalisation de tels capteurs.

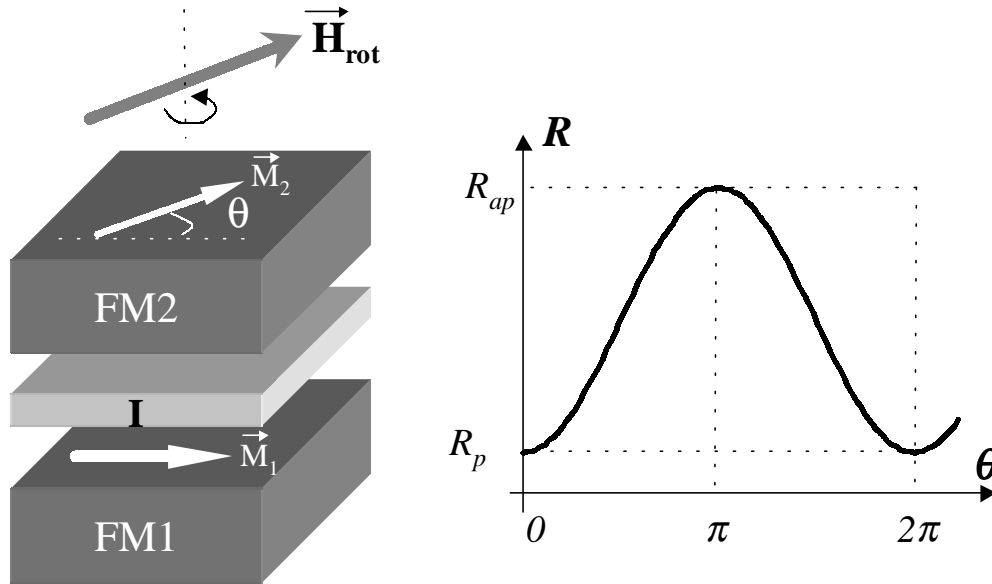


Figure 1.3. Jonction tunnel magnétique utilisée comme capteur de position angulaire. La résistance tunnel de la jonction dépend de l'orientation relative des aimantations des deux couches ferromagnétiques. Elle est minimale dans une configuration parallèle et maximale dans une configuration antiparallèle des aimantations.

Prenons l'exemple d'un capteur de position angulaire basé sur l'utilisation d'une JTM. Ce capteur est placé dans un champ magnétique rotatif dont l'intensité est telle que la couche dure reste parfaitement rigide et alignée dans une direction fixe alors que l'aimantation de la couche douce suit la direction du champ rotatif. L'angle entre l'aimantation de la couche dure et de celle de la couche douce peut être ajusté par la direction du champ magnétique extérieur appliqué. Ainsi, l'impédance de la jonction tunnel reflète la direction du champ magnétique extérieur par rapport à la direction de l'aimantation de la couche dure. Cette propriété permet d'utiliser la jonction tunnel comme capteur de position angulaire (figure 1.3). Un aimant permanent est fixé sur une pièce mobile dont la position angulaire est à déterminer. Cet aimant crée un champ magnétique suffisamment fort pour faire tourner la couche douce d'une jonction tunnel qui est fixée à proximité de l'aimant tournant et suffisamment faible pour préserver la direction de la couche dure. La valeur de la résistance électrique de la jonction donne deux positions angulaires possibles de la pièce mobile pour une résistance donnée. Un montage plus sophistiqué utilisant 2 JTM d'axes de facile aimantation croisés permet de déduire directement l'angle α (figure 1.3).

Dans la pratique, pour réaliser des capteurs ayant de bonnes caractéristiques applicatives, il ne suffit pas seulement d'obtenir un effet de magnétorésistance géante tunnel. La contrainte majeure consiste à contrôler la configuration des aimantations dans les électrodes en fonction du champ magnétique extérieur c'est à dire à contrôler l'évolution des phases magnétiques dans chacune des couches magnétiques en fonction du champ. En effet, l'existence de processus d'évolution irréversible de domaines magnétiques peut induire des effets hystériques préjudiciables au bon fonctionnement du capteur. Le blocage de la couche dure ainsi que la forte sensibilité de la couche douce sont parmi les problèmes les plus importants à résoudre pour réaliser des capteurs performants ou bien des éléments de stockage d'informations comme des mémoires magnétiques.

1.3.2. Mémoires magnétiques

Les deux états extrêmes de résistance obtenus pour des configurations parallèle et antiparallèle des aimantations *en champ appliqué nul* peuvent être utilisés comme des états logiques binaires (**0**) et (**1**) dans des dispositifs électroniques logiques. Les jonctions tunnel magnétiques peuvent alors être utilisées comme des éléments de mémoire dans des réseaux de mémoires non- volatiles appelés MRAM. L'utilisation de JTM comme éléments de stockage et de lecture de l'information devrait permettre d'améliorer les performances des mémoires actuelles en ce qui concerne le temps d'accès, la non- volatilité du stockage mais surtout en ce qui concerne la densité de stockage. En effet, une géométrie de mesure perpendiculaire au plan des couches permettra la réalisation d'éléments dont taille latérale n'est limitée que par les techniques lithographiques actuelles et par la largeur des connexions électriques. Ainsi, des jonctions de taille latérale égale à 200nm ont déjà été réalisées [RIS97].

La lecture de l'information stockée consiste à déterminer l'état magnétique d'un élément de mémoire par une mesure de résistance. Afin de pouvoir accéder individuellement à chaque élément de mémoire, une architecture matricielle est nécessaire. Un schéma d'un tel réseau est représenté sur la figure 1.4. Un bit d'information est constitué par une jonction tunnel $MF_1/I/MF_2$ associée à une diode de blocage. Les lignes d'interconnexions des cellules élémentaires servent alors soit à lire sélectivement une information stockée dans une cellule, soit à générer les champs magnétiques nécessaires à l'écriture d'une information. L'information est donc contenue dans la direction de l'aimantation de la couche magnétique douce par rapport à celle de la couche dure .

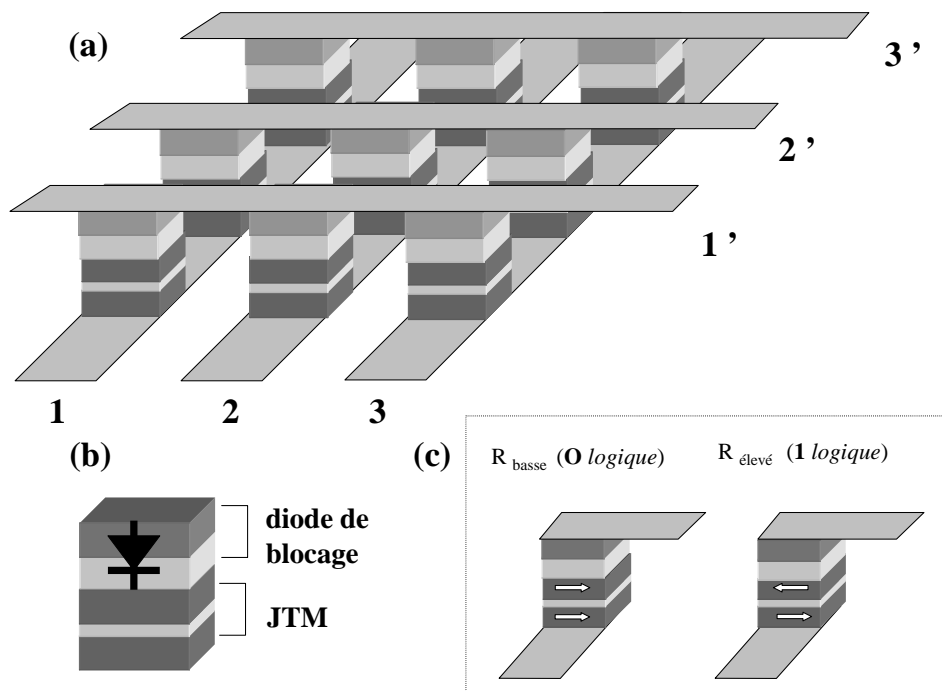


Figure 1.4. Architecture de MRAM utilisant un réseau de jonctions tunnel magnétiques (d'après Gallagher [Gallagher97]). Une diode de blocage $p-n$ est mise en série avec chaque JTM pour bloquer les courants de fuite dans l'architecture matricielle.

Pour écrire une information, il suffit d'appliquer localement un champ capable de modifier la direction de l'aimantation de la couche douce. Étant donnée l'organisation matricielle d'une MRAM, l'écriture se fait à l'aide des deux réseaux de pistes. Pour modifier l'état magnétique de la cellule au croisement des lignes 2 et 2', on applique des courants de même intensité indépendamment dans la ligne 2 et dans la ligne 2'. Ces courants créent des champs magnétiques qui ne suffisent pas à retourner les éléments de mémoire de la ligne 2 ou de la ligne 2'. Par contre, à l'intersection des deux lignes, les champs magnétiques s'additionnent vectoriellement et l'intensité résultante est suffisante pour modifier l'état magnétique de la cellule présente au croisement des lignes. Pour lire l'information stockée dans la cellule au croisement des lignes 2 et 2', il suffit de polariser 2 à une tension positive et 2' à une tension négative ou nulle et de mesurer l'intensité du courant tunnel.

Apparemment simple dans le principe, le contrôle des aimantations dans une jonction tunnel magnétique et surtout dans une matrice est un problème complexe. Les aspects dynamiques sont particulièrement importants car il faut optimiser les dissipations d'énergie, les temps d'accès à l'information, la qualité du stockage magnétique, etc.... Le contrôle précis des

caractéristiques magnétiques et de transport de millions de cellules mémoires est un défi étant donné les aspects micromagnétiques statiques et dynamiques de petits objets complexes, l'influence des défauts étant difficile à contrôler à une échelle sub-micronique.

1.3.3. Transistors magnétiques à effet tunnel

D'autres applications des jonctions tunnel magnétiques dans l'électronique de spin peuvent être envisagées. Dans les perspectives de ce travail de thèse, le transistor magnétique à effet tunnel va être analysé d'une manière plus détaillée. Un transistor magnétique à effet tunnel utilise deux jonctions tunnel magnétoresistives, à la place des jonctions *pn* classique d'un transistor bipolaire. La possibilité de contrôler le courant tunnel qui traverse chaque JTM par l'intermédiaire d'un champ magnétique appliqué offre un nouveau degré de contrôle par rapport à un transistor classique.

1.3.4. La JTM, sonde pour étudier le magnétisme de couches minces magnétiques

La jonction tunnel magnétique a aussi des applications plus proches de la physique fondamentale. Comme nous le montrerons tout au long de ce manuscrit, une JTM peut être utilisée comme un outil précis d'analyse de la structure en domaines magnétiques de couches minces magnétiques, grâce à la grande sensibilité du transport polarisé en spin au magnétisme des électrodes

Le film magnétique analysé est alors utilisé comme une des électrodes magnétiques de la jonction tunnel. Dans l'intervalle de champ magnétique appliqué où l'autre électrode magnétique est dans un état monodomaine, les variations de résistance tunnel de la jonction sont liées à l'évolution de l'état magnétique de la couche analysée. En faisant varier le champ magnétique, la magnéto-résistance tunnel mesurée reflète dans sa forme et son amplitude l'évolution des phases magnétiques dans la couche étudiée. Ce type d'analyse va être présenté en détail dans le chapitre 5 de cette thèse .

Basé sur un principe similaire, un nouveau type de microscopie de champ proche magnétique a été imaginé ces dernières années, la microscopie STM polarisée en spin. Dans cette technique, on mesure le courant tunnel traversant le vide entre une pointe magnétique et la surface magnétique analysée. En effectuant une soustraction du signal topographique par une

technique d'asservissement / rétroaction proprement choisie, le courant tunnel donne directement « l'image magnétique » de la surface.

Conclusion

Dans tous les dispositifs électroniques contenant des jonctions tunnel magnétiques, l'aspect le plus important déterminant le bon fonctionnement du dispositif est le contrôle des propriétés magnétiques des électrodes et du transport polarisé en spin à travers la barrière aux échelles s'étendant du micromètre au nanomètre.

Avant de passer aux aspects concernant le magnétisme et la corrélation entre le magnétisme des électrodes et le transport polarisé en spin dans une JTM, nous présentons dans le paragraphe suivant quelques fondements de l'effet tunnel. Nous détaillerons notamment le rôle du spin dans l'effet tunnel entre deux électrodes métalliques magnétiques et quelques niveaux d'approche utilisés aujourd'hui pour traiter les effets magnétorésistifs dans les JTMs.

1.4. Transport polarisé en spin à travers une barrière isolante, magnétorésistance tunnel (TMR)

Ce paragraphe est consacré à l'exposé de certaines notions théoriques utiles à l'interprétation des phénomènes de conduction des électrons polarisés en spin entre deux matériaux ferromagnétiques séparés par une barrière isolante.

Dans une première partie, nous présentons les caractéristiques essentielles du transport électronique par effet tunnel dans une structure métal–isolant–métal. Ensuite, la seconde partie est consacrée à l'influence du spin de l'électron sur ces caractéristiques de conduction.

1.4.1. Conduction par effet tunnel entre deux métaux Relation courant - tension pour une jonction métal/ isolant/ métal

Le courant tunnel a pour origine le franchissement d'une barrière de potentiel par des électrons dont l'énergie est inférieure à la hauteur de la barrière. Le diagramme d'énergie d'une telle configuration est représenté dans la figure 1.5 dans le cas le plus simple d'un problème à une seule dimension.

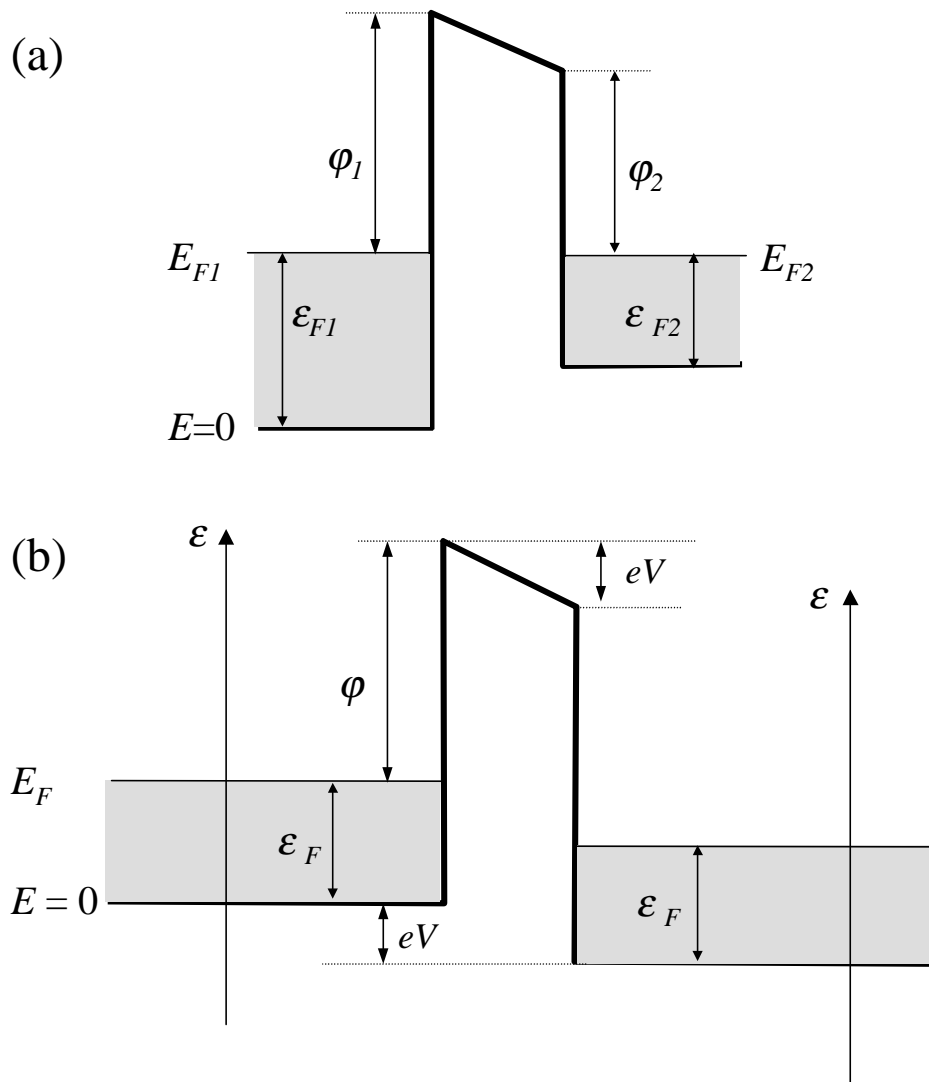


Figure 1.5. Diagramme d'énergie d'une jonction métal-insulant-métal avec et sans polarisation électrique des électrodes

- (a) Barrière tunnel asymétrique. Les travaux de sortie des deux métaux sont différents ce qui implique une barrière tunnel asymétrique même pour un potentiel électrique nul.
- (b) Barrière tunnel symétrique polarisée à une tension continue V .

Légende :

- Une tension de polarisation V positive par rapport à MF_1 est appliquée à l'électrode MF_2 .
($-e$ est la charge électrique de l'électron).
- Dans la figure 1.5 (a), les électrodes MF_1 et MF_2 ne sont pas identiques. Les travaux de sortie des électrons dans les deux électrodes sont différents, ce qui entraîne l'apparition d'une barrière tunnel asymétrique.

- Dans la figure 1.5 (b), les électrodes MF₁ et MF₂ sont identiques. En conséquence la barrière tunnel est symétrique.
- L'origine des énergies $E = 0$ est prise au bas de la bande de conduction de MF1. E_F est l'énergie de Fermi des métaux des deux électrodes.

Les régions grisées correspondent aux états occupés dans le métal à température nulle.

A une température non- nulle, l'occupation des états électroniques est décrite par la statistique Fermi-Dirac.

L'application d'une tension à une jonction met en correspondance des états vides de l'électrode de droite avec des états occupés de l'électrode de gauche favorisant ainsi un transport net d'électrons.

Bardeen [Bardeen61] décrit la probabilité par unité de temps P_{ab} qu'un électron soit transmis d'un état a de l'électrode MF₁ à un état b de l'électrode MF₂ sous la forme :

$$P_{ab} = 2\pi / \hbar |M_{ab}|^2 f_a n_a n_b (1 - f_b) \quad (1.3)$$

où:

f_a, f_b sont les probabilités d'occupation des états a et b

n_a et n_b sont les densités d'états des états a et b

M_{ab} est l'élément de matrice de la transition.

Le calcul de M_{ab} montre que la transition par effet tunnel conserve la composante du vecteur d'onde parallèle au plan de la jonction, k_t . Pour obtenir la densité de courant J_{12} qui passe de MF₁ vers MF₂, l'expression (1.3) est intégrée sur tous les états de composante k_t fixe, puis sur toutes les valeurs de k_t :

$$J_{12} = -\frac{4\pi e}{\hbar} \sum_{k_t} \int_{-\infty}^{\infty} |M_{ab}|^2 n_a n_b f_a (1 - f_b) dE \quad (1.4)$$

La densité de courant totale tenant compte du courant direct J_{12} et du courant inverse J_{21} entre l'électrode MF₁ et MF₂ s'écrit alors $J = J_{12} - J_{21}$ et

$$J = -\frac{4\pi e}{\hbar} \sum_{k_t} \int_{-\infty}^{\infty} |M_{ab}|^2 n_a n_b (f_a - f_b) dE \quad (1.5)$$

Le facteur $2e$ permettant de passer de P_{ab} à J , tient compte des deux états de spin de l'électron. La conservation de l'énergie totale de l'électron transmis permet d'explicitier les fonctions de Fermi-Dirac f_a et f_b . Avec les notations de la figure 1 (b) :

$$f_a(E) = f_1(E) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{E - E_F}{kT}\right)} \quad (1.6)$$

$$f_b(E) = f_2(E + eV) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{E + eV - E_F}{kT}\right)} \quad (1.7)$$

D'après l'équation (1.3), le produit $|M_{ab}|^2 n_a n_b$ dépend de la structure de bande des électrodes et des caractéristiques de la barrière tunnel. Pour des faibles tensions de polarisation, c'est à dire eV très inférieure à la hauteur de barrière, ce produit est pratiquement indépendant de la tension de polarisation. C'est pour cela qu'un certain nombre de modèles ne tiennent pas compte de la tension de polarisation sur le transport tunnel. En augmentant la tension de polarisation, la forme de la barrière varie ce qui entraîne une modification de l'élément de matrice qui dépend alors de la tension appliquée.

La conductance dynamique dJ/dV par unité de surface de la jonction s'écrit alors:

$$G(V) = \frac{dJ}{dV} = -\frac{2e^2}{h} \sum_{k_i} \int_{-\infty}^{\infty} |M_{ab}|^2 n_a n_b \frac{df_2(E + eV)}{d(eV)} dE \quad (1.8)$$

On peut montrer que l'amplitude maximale du terme $df_2(E + eV)/d(eV)$ est proportionnelle à $1/kT$ et sa largeur à mi-hauteur à kT . Ce terme tend donc vers une fonction de Dirac lorsque T tend vers zéro. A la limite $T = 0K$, la conductance dynamique se traduit par le produit des densités d'états n_a et n_b . Ce résultat est en accord avec le premier modèle proposé par Jullière en 1975 [Jullière75] pour décrire l'effet tunnel dépendant du spin.

1.4.2. Approximation des électrons libres

Un des modèles les plus simples permettant d'obtenir des résultats qualitatifs satisfaisants est le *modèle des électrons libres*. Dans ce modèle, l'équation de Schrödinger pour une structure (métal ferromagnétique- isolant- métal ferromagnétique) avec une barrière isolante rectangulaire admet une solution analytique simple. Les électrons de conduction sont traités

comme des électrons libres en introduisant la notion de masse effective $m_{j\sigma}^*$ pour chaque direction de spin σ , dans chaque matériau j .

Dans l'approximation des électrons libres, l'équation de Schrödinger tridimensionnelle pour un puits de potentiel unidimensionnel décrivant la barrière peut être décomposée en une partie transverse et une partie longitudinale. La fonction d'onde des électrons Ψ est alors égale au produit des fonctions d'onde longitudinale et transverse, $\Psi = \Psi_l \Psi_t$. L'énergie totale des électrons E est alors la somme des énergies transverse et longitudinale, $E = E_l(V) + \hbar^2 k_t^2 / 2m^*$.

En tenant compte de l'équation (1.3), le courant tunnel devient:

$$J = \frac{e}{4\pi^3 \hbar} \int_0^\infty dk_l \int_0^\infty dk_t [f_1(E) - f_2(E + eV)] TT^* \frac{\partial E}{\partial k_t} \quad (1.9)$$

Dans cette expression, $|T|^2 = TT^*$ est la transparence de la barrière c'est à dire le coefficient de transmission de la barrière tunnel.

Grâce à la séparation des variables, le coefficient de transmission TT^* n'est qu'une fonction de la composante longitudinale de l'énergie [Duke69]. Ainsi, l'expression du courant peut être intégrée dans la direction transverse en tenant compte des expressions des fonctions de Fermi-Dirac (1.6) - (1.7). Par conséquent, on obtient:

$$J = \frac{em^*kT}{2\pi^2\hbar^3} \int_0^\infty dE_l TT^* \ln \left(\frac{1 + \exp[(E_F - E_l) / kT]}{1 + \exp[(E_F - E_l - eV) / kT]} \right) \quad (1.10)$$

Cette expression décrit le courant tunnel des électrons libres traversant une barrière isolante de transparence TT^* .

A partir de ces résultats et en restant toujours dans le cadre du modèle des électrons libres, nous pouvons analyser les effets de magnétorésistance tunnel liés au spin des électrons.

1.4.3. Effet tunnel polarisé en spin dans une jonction métal ferromagnétique - isolant - métal ferromagnétique

Les effets liés au spin de l'électron dans l'effet tunnel ainsi que la magnétorésistance tunnel peuvent être analysés, de manière simple, à l'aide du modèle précédent en y incluant le spin de l'électron. Les résultats sont là encore qualitatifs vu la simplicité du modèle. Cependant, il permet de comprendre la physique qui se cache souvent derrière un lot de formules compliquées.

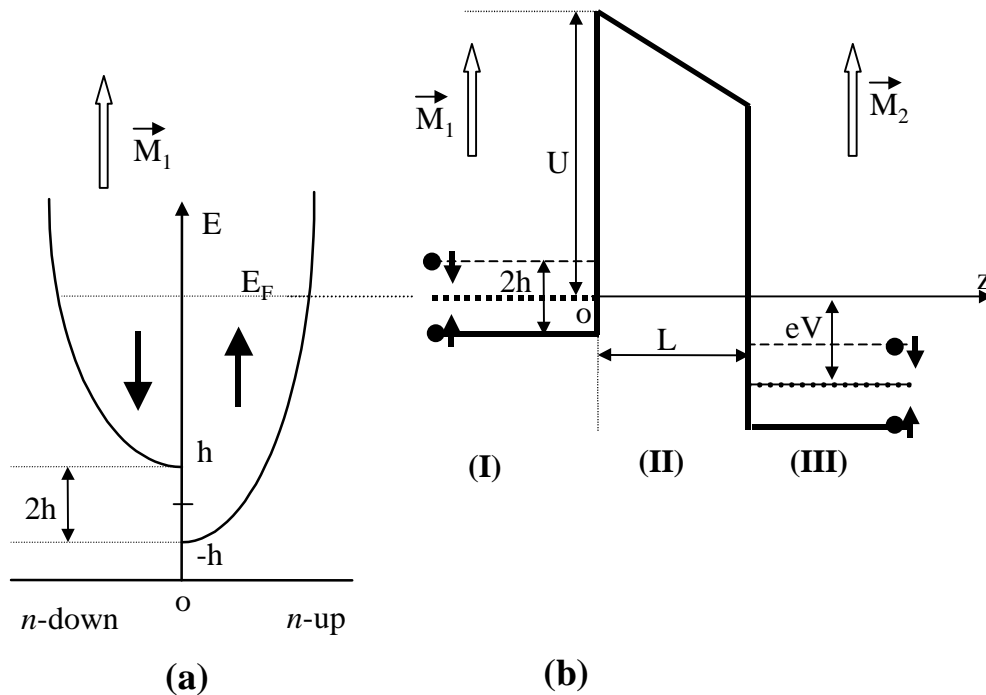


Figure 1.6. (a) Densités d'états des électrons de *spin-up* et de *spin-down* pour un matériau ferromagnétique dans le modèle des électrons libres. A chaque direction de spin est associée une bande d'énergie parabolique. (b) Profil de potentiel unidimensionnel pour la structure MF1 / I / MF2 dans une configuration parallèle des aimantations dans les deux électrodes ferromagnétiques. La hauteur de la barrière tunnel est U et sa largeur est L .

Le profil de potentiel unidimensionnel vu par les électrons dans les métaux ferromagnétiques est différent pour les deux directions de spin. Cette différence provient du champ moléculaire h qui décale les deux bandes associées à chaque direction de spin (modèle à deux bandes [Stearns77], [Slonczewski89], voir figure 1.6). Le champ moléculaire découle du « splitting d'échange » $\Delta=2h$. Les éléments de la matrice de transfert du courant tunnel ainsi que les intensités des effets liés au transport tunnel polarisé en spin comme la magnétorésistance tunnel, peuvent être calculés dans ce modèle à deux bandes. Le champ moléculaire est alors pris non nul dans les matériaux ferromagnétiques et nul dans l'isolant.

Dans l'approximation des électrons libres, la partie longitudinale du Hamiltonien effectif pour les électrons de conduction va s'écrire:

$$H = (-\hbar^2 / 2m^*(z))(d^2 / dz^2) - F(z) + U(z) - h(z) \cdot \sigma \quad (1.11)$$

avec:

$$F(z) = \begin{cases} 0 & z < 0 \\ \frac{eVz}{L} & 0 < z < L \\ eV & z > L \end{cases}; \quad h(z) = \begin{cases} h_0 & z < 0; \quad z > L \\ 0 & 0 < z < l \end{cases}; \quad U(z) = \begin{cases} 0 & z < 0; z > L \\ U & 0 < z < L \end{cases};$$

$$m^*(z) = \begin{cases} m_1^* & z < 0 \\ m_2^* & 0 < z < L \\ m_3^* & z > L \end{cases}$$

L'équation de Schrödinger peut être projetée dans les trois régions distinctes du profil de potentiel traité (I, III: dans les deux électrodes ferromagnétiques, II : dans la barrière isolante):

$$(I) \quad \left[-\frac{\hbar^2}{2m_1^*} \frac{d^2}{dz^2} - h_0 \sigma \right] \Psi = E \Psi \quad (II) \quad \left[-\frac{\hbar^2}{2m_2^*} \frac{d^2}{dz^2} + U - \frac{eVz}{L} \right] \Psi = E \Psi$$

$$(III) \quad \left[-\frac{\hbar^2}{2m_3^*} \frac{d^2}{dz^2} - h_0 \sigma - eV \right] \Psi = E \Psi \quad (1.12)$$

En introduisant les expressions des vecteurs d'ondes des électrons dans les métaux (I,III), définis par :

$$k_1 = \sqrt{\frac{2m_1^*}{\hbar^2} (E + h_0 \sigma)} \quad \text{et} \quad k_3 = \sqrt{\frac{2m_3^*}{\hbar^2} (E + h_0 \sigma + eV)} \quad (1.13)$$

dans l'équation de Schrödinger, les équations (1.12(I)) et (1.12(III)) deviennent:

$$\Psi_j'' + k_j^2 \Psi_j = 0; \quad j = 1, 3 \quad (1.14)$$

Pour la région (II), on fait un changement de variables afin de simplifier la forme analytique de l'équation de Schrödinger:

$$\rho_{2\sigma} = \frac{z}{\left(-\frac{L\hbar^2}{2m_2^*eV}\right)^{(1/3)}} + \frac{(E-U)L}{eV\left(-\frac{L\hbar^2}{2m_2^*eV}\right)^{(1/3)}} = \frac{z}{\lambda_{2\sigma}} + \beta_{2\sigma} \quad \text{où :} \quad \begin{cases} \lambda_{2\sigma} = \left(-\frac{L\hbar^2}{2m_2^*eV}\right)^{(1/3)} \\ \beta_{2\sigma} = \frac{(E-U)L}{eV\lambda_{2\sigma}} \end{cases} \quad (1.15)$$

Avec ce changement de variables, l'équation de Schrödinger est transformée en une équation de type Airy :

$$\frac{d^2\Psi_2(\rho)}{d\rho^2} - \rho\Psi_2(\rho) = 0 \quad (1.16)$$

dont les solutions analytiques sont des combinaisons linéaires de fonctions d'onde de Airy notées $Ai(\rho)$ et $Bi(\rho)$.

Finalement, les fonctions d'ondes solutions de l'équation de Schrödinger dans les trois régions de l'espace sont:

$$\Psi_{j,\sigma} = \begin{cases} A_{1\sigma} \exp(ik_{1\sigma}z) + B_{1\sigma} \exp(-ik_{1\sigma}z) & \text{pour } z < 0 \\ A_{2\sigma} Ai[\rho_{2\sigma}(z)] + B_{2\sigma} Bi[\rho_{2\sigma}(z)] & \text{pour } 0 < z < L \\ A_{3\sigma} \exp(ik_{3\sigma}z) + B_{3\sigma} \exp(-ik_{3\sigma}z) & \text{pour } z > L \end{cases} \quad (1.17)$$

Le coefficient de transmission

En utilisant la continuité aux limites de la fonction d'onde ainsi que de sa dérivée première normalisée $[(1/m_j^*)(d\Psi_{j\sigma}/dz)]$, on peut déduire une formule matricielle qui connecte les différents coefficients $A_{j\sigma}$ et $B_{j\sigma}$ ($j = 1, 2, 3$ et $\sigma = \pm 1$)

$$\begin{bmatrix} A_{1\sigma} \\ B_{1\sigma} \end{bmatrix} = S_{total} \begin{bmatrix} A_{3\sigma} \\ B_{3\sigma} \end{bmatrix} \quad (1.18)$$

avec S_{total} défini par :

$$\begin{aligned}
S_{total} &= \frac{k_{3\sigma}}{k_{1\sigma}} \begin{pmatrix} ik_{1\sigma} & \frac{m_1^*}{\lambda_{2\sigma} m_2^*} \\ ik_{1\sigma} & -\frac{m_1^*}{\lambda_{2\sigma} m_2^*} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} Ai[\rho(z=0)] & Bi[\rho(z=0)] \\ Ai'[\rho(z=0)] & Bi'[\rho(z=0)] \end{pmatrix} \begin{pmatrix} Ai[\rho(z=L)] & Bi[\rho(z=L)] \\ Ai'[\rho(z=L)] & Bi'[\rho(z=L)] \end{pmatrix}^{-1} \\
&\times \begin{pmatrix} ik_{3\sigma} & \frac{m_1^*}{\lambda_{2\sigma} m_2^*} \\ ik_{3\sigma} & -\frac{m_1^*}{\lambda_{2\sigma} m_2^*} \end{pmatrix}^{-1} \begin{pmatrix} e^{-ik_3 L} & 0 \\ 0 & e^{ik_3 L} \end{pmatrix}^{-1}
\end{aligned} \tag{1.19}$$

Alors, le coefficient de transmission de la barrière $P_{\sigma} = T_{\sigma} T_{\sigma}^*$ pour le spin σ est :

$$P_{\sigma} = \frac{k_{3\sigma}}{k_{1\sigma}} \left| \frac{1}{S_{total}^{II}} \right|^2, \tag{1.20}$$

où S_{total}^{II} est l'élément (11) de la matrice S_{total} de transmission.

Résistance tunnel et magnétorésistance

Le courant tunnel par unité de surface de la jonction, pour une direction de spin σ et une tension appliquée V , est d'après l'équation (1.10):

$$J_{\sigma}(V) = \frac{em^* kT}{2\pi^2 \hbar^3} \int_0^{\infty} dE P_{\sigma}(E, V) \cdot \ln \left(\frac{1 + \exp[(E_F^{\sigma} - E)/kT]}{1 + \exp[(E_F^{\sigma} - E - eV)/kT]} \right), \tag{1.21}$$

k est la constante de Boltzmann, T est la température et E_F^{σ} est l'énergie de Fermi pour les électrons de spin σ .

Dans le modèle à deux bandes, la *densité totale de courant* pour chaque configuration d'aimantation des électrodes ferromagnétiques, parallèle ou antiparallèle, est la somme des densités de courant correspondant à chaque canal de spin: $J = \sum_{\sigma} J_{\sigma}$

La *résistance tunnel* par unité de surface pour une tension donnée V est : $R = V/J$.

Alors, la *magnétorésistance tunnel* (TMR) est égale à :

$$TMR = \frac{(R_{\uparrow\downarrow} - R_{\uparrow\uparrow})}{R_{\uparrow\uparrow}} \tag{1.22}$$

où $R_{\uparrow\uparrow}$ et $R_{\uparrow\downarrow}$ sont les résistances électriques de la jonction tunnel $MF_1 / I / MF_2$ dans les configurations respectivement parallèle et antiparallèle des aimantations.

Résultats qualitatifs obtenus à l'aide du modèle des électrons libres

La figure 1.7 présente quelques résultats typiques qui ont été obtenus à l'aide du modèle présenté ci-dessus. Étant données la simplicité et les limitations du modèle, les résultats restent qualitatifs mais ils permettent d'expliquer quelques faits expérimentaux comme par exemple la variation de la TMR avec la tension de polarisation et avec la largeur de la barrière. Les caractéristiques courant-tension $I(V)$ pour chaque direction de spin et dans chaque configuration des aimantations des électrodes ferromagnétiques peuvent être calculées rapidement, en faisant varier les paramètres de la barrière tunnel (largeur, hauteur, masse effective dans l'isolant). Ce dernier paramètre reflète le degré d'ordre dans l'isolant; plus la masse effective de l'électron est grande, plus l'isolant tend vers un état amorphe.

Dans la figure 1.7 (b), on présente des caractéristiques $J(V)$ pour chaque configuration d'aimantation des électrodes magnétiques. Chaque courant contient les contributions des deux canaux de spin. On voit directement qu'une densité de courant plus faible est obtenue dans la configuration anti-parallèle et donc que la TMR va être positive à basse tension. À partir de ces densités de courant, la magnétorésistance tunnel est calculée en fonction de la tension de polarisation V , de la hauteur U , la largeur L ainsi que la masse effective des électrons dans la barrière.

D'un point de vue expérimental, la dépendance de la magnétorésistance tunnel avec la tension de polarisation de la barrière est un aspect complexe et très important pour toutes les applications des jonctions tunnel magnétiques. Le transport tunnel est fortement influencé par des défauts situés à l'interface ou dans la barrière isolante qui vont jouer un rôle prépondérant dans la décroissance de la TMR avec la tension de polarisation. L'avantage du modèle des électrons libres présenté ci-dessus est qu'il prend en compte la dépendance de la forme de la barrière tunnel avec la tension appliquée. En effet, il permet d'estimer une *variation intrinsèque* de la TMR avec la tension de polarisation. Le taux de décroissance de TMR calculé est le taux minimum qui est accessible expérimentalement. Elle est appelée *intrinsèque* car elle est due uniquement à la variation de la forme de la barrière tunnel avec la

tension de polarisation, sans tenir compte d'autres facteurs qui devraient encore accroître cette dépendance (des imperfections, défauts...).

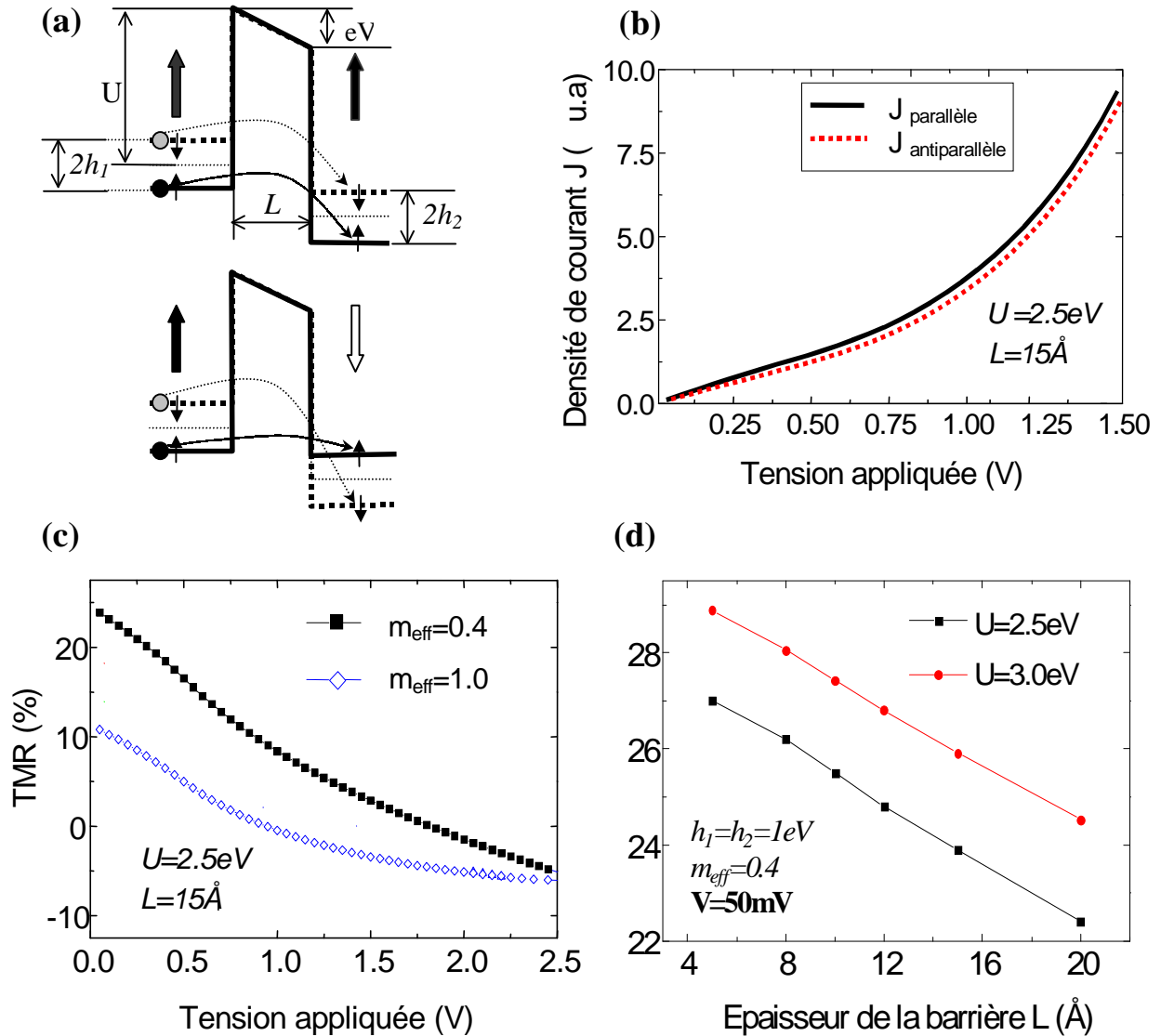


Figure 1.7. Calcul des propriétés de magnéto-transport dans une jonction tunnel magnétique, traité dans un modèle d'électrons libres à deux bandes. Les paramètres E_F^σ et h_σ sont obtenus à partir des calculs *ab-initio* pour les métaux ferromagnétiques (Fe) [Andersen77].

(a) Schéma contenant le profil de potentiel vu par les deux spins de l'électron, dans une configuration parallèle respectivement antiparallèle des aimantations des électrodes magnétiques.

(b) Densités de courant pour les configurations parallèle respectivement antiparallèle des aimantations des électrodes.

(c) Variation de la TMR en fonction de la tension de polarisation, pour deux masses effectives différentes de l'électron dans l'isolant.

(d) Dépendance de la TMR avec la largeur et la hauteur de la barrière tunnel

Dans la figure 1.7 (c), on montre la décroissance de la TMR avec la tension pour deux masses effectives différentes des électrons dans l'isolant. La valeur $m_{\text{eff}}/m_e = 0.4$ est la valeur utilisée communément dans ce type de calcul pour l'oxyde de aluminium (Al_2O_3) cristallin

[Stearns77], [Zhang97], ainsi que $m_{eff}/m_e=1$ dans le cas où l'isolant est amorphe. On trouve une augmentation de la magnétorésistance tunnel quand la masse effective de l'électron dans l'isolant diminue. Ainsi, implicitement, en augmentant la qualité cristallographique de l'isolant, la valeur maximale de TMR peut être augmentée.

Pour des tensions de polarisation suffisamment grandes, la TMR peut même changer de signe comme cela a déjà été confirmé expérimentalement [Montaigne99].

La figure 1.7 (d) montre une augmentation de la TMR avec la réduction de la largeur de la barrière tunnel, ainsi qu'avec l'augmentation de la hauteur de la barrière.

En conclusion, le modèle des électrons libres qui tient compte des différentes transmissions tunnel pour chaque direction de spin permet d'expliquer une grande majorité de faits expérimentaux. La variation de la TMR avec la tension, le changement de signe de la TMR pour des fortes tensions, la variation de la TMR avec les paramètres de la barrière tunnel semblent être avant tout des caractéristiques intrinsèques de l'effet tunnel dépendant du spin. Les résultats qualitatifs obtenus à l'aide de ce modèle permettent de prévoir l'effet de chaque paramètre d'une barrière tunnel ou d'un matériau magnétique sur la TMR pour en augmenter son intensité. Les résultats obtenus sont en accord direct avec d'autres résultats théoriques rapportés récemment dans la littérature [Liu00], [Chui97], [Bratkovsky97], [Zhang97] ainsi qu'avec des résultats expérimentaux. Dans le cadre du modèle des électrons libres, il est également possible de calculer le couplage entre électrodes magnétiques à travers une barrière tunnel [Slonczewski89], [Zhang98]. On trouve que l'amplitude et le signe du couplage dépend de la hauteur de la barrière tunnel ainsi que du champ moléculaire des matériaux ferromagnétiques.

1.4.4. Au-delà de l'approximation des électrons libres

Les modèles utilisés depuis les années 60 pour décrire les phénomènes de transport dans les jonctions tunnel peuvent être classés en deux grandes catégories : les *modèles continus* de type Slonczewski [Slonczewski89], Simmons [SimmJAP63] et Brinkman [Brinkman70] ou bien les *modèles de type réseau* comme celui développé par Caroli [CaroliSSP71].

Dans les *modèles continus*, l'existence de sites de réseau est négligé et la structure électronique des électrodes est considérée comme étant égale à celle du matériau massif. On

néglige alors les effets liés aux interfaces métal/oxyde. Dans cette approche, avec un profil de potentiel adapté pour la barrière tunnel, les calculs ont une forme analytique simple et exacte qui laisse transparaitre les phénomènes physiques sous-jacents. Cependant, il est difficile de justifier le profil de potentiel utilisé. De plus, étant données que les propriétés magnétorésistives dépendent fortement du profil de potentiel, les approximations sur la forme de la barrière tunnel peuvent induire de grosses erreurs dans les prédictions quantitatives de la magnétorésistance tunnel.

Dans le cadre des *modèles type réseau*, on distingue de manière explicite la structure électronique aux interfaces métal/oxyde et celle dans le matériau massif. Cette distinction est faite car il est pratiquement impossible d'effectuer des calculs auto-cohérents stationnaires en présence d'un potentiel fini à travers une jonction tunnel. Le système est alors divisé en sous-systèmes isolés non-conducteurs. Ainsi, le formalisme de Keldysh [KeldyshJETP65] peut être utilisé et il a été appliqué par Caroli [CaroliSSP91] pour calculer la conductance tunnel lorsque ces sous-systèmes isolés sont mis en interaction.

Le modèle du *Hamiltonien de transfert* [BardeenPRL61] est une description multi-particule de l'effet tunnel. Il considère plusieurs bandes au niveau de Fermi ainsi que l'hybridation entre les bandes. En utilisant l'approximation WKB, on peut corréler les éléments de matrice de transfert avec la structure électronique des électrodes. Dans le cadre de ce modèle, on peut aussi traiter des effets inélastiques dans le processus tunnel [Duke69], l'effet d'états localisés sur des impuretés et l'effet des phonons et des magnons de surface [LeviPRL97].

A l'aide de *l'approximation des liaisons fortes*, on peut relier la conductance tunnel et la magnétorésistance à la structure électronique pour des électrodes isolées ainsi qu'aux éléments de matrice de *hopping* entre les électrodes et l'isolant. Au départ, les électrodes sont considérées comme des systèmes complètement indépendants lorsque l'isolant est suffisamment épais pour que l'effet tunnel soit impossible. En rapprochant les deux électrodes, l'effet tunnel devient possible lorsque les fonctions d'ondes des deux électrodes commencent à se superposer. Les matrices de superposition correspondent directement aux intégrales de *hopping* dans la méthode des liaisons fortes et elles sont utilisées pour calculer les probabilités de transition par la méthode des perturbations. La conductance tunnel pour un canal de spin σ est calculée en utilisant la formule de *Kubo/Landauer* [MathonPRB97]. La méthode permet d'utiliser dans le calcul des structures électroniques réalistes c'est à dire la structure électronique locale des interfaces.

Des résultats expérimentaux récents [FertPRL99] ont montré des effets concernant l'influence du type de barrière tunnel utilisé sur les propriétés magnétorésistives de jonctions tunnel. Le choix de la barrière isolante peut influencer fortement et même inverser le signe de la polarisation de spin des électrons à l'interface. Ces effets semblent être liés à la structure électronique des métaux ferromagnétiques à l'interface avec l'isolant et notamment à l'hybridation des orbitales atomiques à l'interface métal - oxyde. Cette hybridation est à l'origine de l'apparition d'états de conduction localisés dans le gap de l'isolant pour des électrons ayant un certain spin et une certaine symétrie (s , p ou d). Ces états de conduction vont diminuer l'épaisseur effective de la barrière en fonction de la symétrie des orbitales hybrides formées à l'interface et favoriser la transmission des électrons de type s , p ou d . En choisissant différentes combinaisons (métal ferromagnétique/isolant), on peut théoriquement jouer sur le signe et l'amplitude de la TMR en favorisant un certain type d'hybridation.

Par exemple, dans une structure $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{LaSrMnO}_3$, la TMR mesurée expérimentalement est positive malgré une polarisation négative des électrons d du Co. La barrière d'alumine semble sélectionner le passage des électrons s du Co dont la polarisation est positive. Dans le cas d'une structure $\text{Co}/\text{SrTiO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, la barrière SrTiO_3 sélectionne le passage des électrons d du Co dont la polarisation est négative pour des énergies autour du niveau de Fermi. Etant donnée que la polarisation de $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ est 100% positive au niveau de Fermi, on mesure une TMR négative [FertPRL99].

Pour élucider les mécanismes de l'effet tunnel polarisé en spin dans des structures MF/I/MF, des calculs *ab-initio* auto-cohérents pour les interfaces métal-ferromagnétique/isolant doivent être effectués en tenant compte des effets liés à la présence d'interfaces. Tsymbal et Pettifor [TsymbMRS] ont montré, en utilisant une technique *ab-initio* Linear Muffin Tin Orbitals, qu'il y a une forte hybridation entre les électrons $3d$ du Co et les électrons sp de l'Al à l'interface $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3$. Elle va favoriser une polarisation positive des électrons qui tunnelent et donc une TMR positive dans les jonctions tunnel utilisant l' Al_2O_3 comme isolant.

Différents groupes travaillent aujourd'hui pour développer des programmes de calcul de type *ab-initio* « complet » basés sur le calcul de propagateurs de Green afin de traiter d'une manière plus réaliste le transport polarisé en spin. Les calculs doivent permettre de traiter correctement les interfaces imparfaites métal/oxyde, les effets d'hybridation à l'interface métal – oxyde et d'expliquer les résultats expérimentaux qui résistent encore aux théories actuelles les plus complètes.

1.4.5. Les événements rares dans le transport tunnel

Dans les systèmes réels, de toutes petites fluctuations des paramètres de la barrière tunnel peuvent avoir des conséquences dramatiques sur les propriétés statistiques de l'effet tunnel. Des évidences expérimentales directes [DaCostaEPJ00] montrent que le courant tunnel dans les systèmes métal/oxyde/métal, analysé à une échelle manométrique, est caractérisé par des distributions statistiques larges du courant sur plusieurs ordres de grandeur. La transmission tunnel totale peut alors être dominée par quelques sites isolés de forte transmission provenant de petits défauts. Ces résultats statistiques permettent d'expliquer des fluctuations de conductance tunnel entre des échantillons apparemment similaires, par l'effet des fluctuations faibles des paramètres locaux de la barrière tunnel [BardouEPL97].

1.5. Conclusion du chapitre 1

L'avenir apparemment très prometteur tant du point de vue fondamental que des applications des JTM est le moteur du développement de nouveaux modèles théoriques ainsi que d'un meilleur contrôle de leurs conditions de préparation.

Actuellement, plusieurs modèles sont nécessaires pour décrire de manière satisfaisante l'ensemble des faits expérimentaux. Un modèle unique est nécessaire afin d'obtenir une description cohérente de tous ces aspects.

Du point de vue expérimental, il s'agit de contrôler les imperfections et la rugosité des interfaces de la barrière ainsi que la structure électronique aux interfaces métal/isolant. Mais ce n'est pas suffisant car le contrôle du magnétisme des électrodes magnétiques représente également une lourde tâche.

En effet, des travaux expérimentaux approfondis ont montré que des propriétés magnétiques non adaptées ont une influence néfaste sur les propriétés de magnéto-transport à des fins d'application de capteurs, de transistors de spin ou de mémoires non-volatiles.

Dans le cadre de ce travail de thèse, le magnétisme des électrodes de la jonction tunnel occupe un rôle central. Un des aspects marquant du travail est l'utilisation d'une jonction tunnel comme un outil pour analyser la structure en domaines magnétiques et l'évolution sous champ magnétique de phases magnétiques dans des systèmes magnétiques complexes.

Références du chapitre 1

[Andersen77]

O. K. Andersen, O. Jepsen, *Physica* **B 91**, 317, (1997)

[BardouEPL97]

F. Bardou, *Europhys. Lett.* **39**, 239, (1997)

[BardeenPRL61]

J. Bardeen, *Phys. Rev. Lett.* **6**, 57, (1961)

[Bratkovsky97]

A. M. Bratkovsky, *Phys. Rev* **B 56**, 2344, (1997)

[Brinkman70]

W. F. Brinkman, R. C. Dynes, J. M. Rowel, *J. Appl. Phys.* **41**, 1915, (1970)

[CaroliSSP71]

C. Caroli, R. Combescot, P. Nozières, D.Sain-James, *J. Phys. C : Solid State Phys.***4** ,916, (1971)

[Chui97]

S. T. Chui, *Phys. Rev.* **B 55**, 5600, (1997)

[DaCostaEPJ00]

V. da Costa, Y. Henry, F. Bardou, M. Romeo, K. Ounadjela, *Eur. Phys. J.* **B 13**, 297, (2000)

[Duke69]

C.B. Duke, *Tunneling in solids*, Academic New-York , (1969)

[FertPRL99]

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

[Gallagher 97]

W.J. Gallagher, J.H. Kaufman, S.S.P Parkin, R.E. Scheuerlin, *Magnetic Memory Array using Magnetic Tunnel Junction Devices in Memory Cells*, United States Patent N. 5 640 343 (1997)

[Jullière75]

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

[KeyldishJETP65]

L. V. Keyldish, *Zh. Exp. Teor. Phys.* **47**, 1515, (1964), *Sov. Phys. JETP* **20**, 1018, (1965)

[LevyEPJB99]

S. Zhang, P. M. Levy, *Eur. Phys. J.* **B 10**, 599, (1999)

[LeviPRL97]

S. Zhang, P. M. Levi, A. C. Marley, S. S. P. Parkin, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3744, (1997)

[Liu00]

S. S. Liu, G. Y. Guo, *J. Magn. Magn. Matter* **209**, 135, (2000)

[MathonPRB97]

G. Mathon, *Phys. Rev. B*, **56**, 11810, (1997)

[Montaigne99]

François Montaigne, thèse de doctorat de l'Université Paris VII (1999)

[Oppenheimer28]

J. R. Oppenheimer, *Phys. Rev.* **31**, 66, (1928)

[RIS97]

S.A. Rishton, Y. Lu, R.A. Altman, A.C. Marley, X.P. Bian, C. Jahnes, R. Viswanathan, G. Xiao, W.J. Gallagher, S.S.P. Parkin, *Microelec. Eng.* **35**, 249, (1997).

[Slonczewski89]

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

[SimmJAP]

J. G. Simmons, *J. Appl. Phys.* **34**, 1793, (1963) ; J. G. Simmons, *J. Appl. Phys.* **34**, 2581, (1963)

[Stearns77]

M.B. Stearns, *J. Magn. Magn. Mater* **5**, 167 (1977)

[TsymbMRS]

D. Nguyen-Manh., E.Y. Tsymbal, D. Pettifor, C. Arcangeli, R. Tank, O. K. Andersen, A. Pasturel, *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* **492**, 319 (1998).

[TsymbJPCM97]

E.Y. Tsymbal, D. G. Pettifor, *J. Phys. Cond. Mater.* **9**, L411, (1997)

[Zhang97]

X. Zhang, B-Z. Li, *Phys. Rev. B*, **56**, 5484 (1997)

[ZhangPL97]

X. Zhang, B-Z. Li, F-C. Pu, *Phys. Lett. A* **236**, 356, (1997)

[Zhang98]

W-S. Zhang, B-Z. Li, X. Zhang, Y. Li, *J. Appl. Phys.* **83**, 5332 (1998)

Chapitre 2

Techniques d'élaboration et d'analyse de jonctions tunnel magnétiques

2.1. Techniques d'élaboration de jonctions tunnel magnétiques

Dans ce chapitre, nous exposerons les techniques expérimentales que nous avons utilisées afin de réaliser et de caractériser les jonctions tunnel magnétiques. Nous présenterons tout d'abord le bâti de pulvérisation cathodique qui nous a permis de fabriquer les échantillons ainsi que les techniques de la micro-électronique qui ont été utilisées pour structurer les jonctions tunnel à une taille micrométrique. Puis, nous décrirons brièvement les techniques d'analyse structurale, magnétique et de transport électronique mises à profit dans ce travail de thèse.

2.1.1. Préparation des échantillons par pulvérisation cathodique

L'ensemble des échantillons étudiés dans le cadre de cette thèse a été élaboré par pulvérisation cathodique à l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg. La pulvérisation cathodique est une technique de croissance de couches minces répandue et décrite dans de nombreux ouvrages [Vossen91]. Elle consiste à déposer sur un substrat des atomes arrachés à une cible par des chocs d'ions contenus dans un plasma, plasma créé par une décharge obtenue en polarisant une cible (figure 2.1). Le confinement des électrons dans le voisinage de la cible est réalisé en utilisant des magnétons pour cathodes. Un magnétron plan est constitué d'une cathode refroidie à l'eau, fixée sur des aimants ou des électro-aimants créant un champ magnétique dont les lignes de champ sont fermées de manière à confiner dans une région annulaire à la surface de la cathode les électrons secondaires émis lors du bombardement ionique. Ainsi, le résultat est un plasma dense confiné au voisinage du magnétron.

Dans notre bâti (figure 2.2), le porte-substrat (figure 2.3 (a)) peut être placé tour à tour en face de six cibles (figure 2.3 (b)). Les éléments spécifiques de notre bâti sont : deux

magnétrons face à face (FàF) utilisés afin d'obtenir de faibles flux, deux magnétrons plans (P), et deux magnétrons dans une configuration convergente (CV) qui nous permettent de co-déposer deux matériaux afin de réaliser des alliages de composition ajustable. Le porte échantillon (figure 2.3 (a)) est structuré en deux parties, la première partie peut être chauffée jusqu'à 800°C alors que la seconde peut être refroidie jusqu'à la température de l'azote liquide. Dans le cadre de ce travail, tous les dépôts ont été réalisés à 40°C.

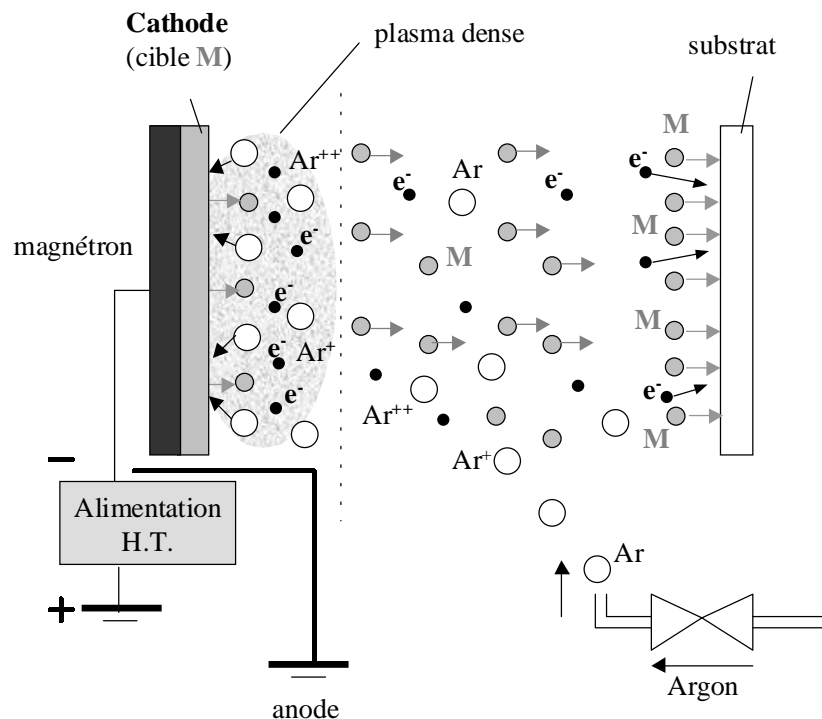


Figure 2.1. Schéma de principe de la pulvérisation cathodique

Cette enceinte de pulvérisation cathodique a été dessinée afin de permettre une grande variété de configurations de dépôt. Ainsi, en jouant sur les différents paramètres ajustables du bâti, la croissance, la microstructure et les propriétés magnétiques des couches déposées peuvent être modifiées à volonté. Les vitesses de dépôt, généralement contrôlées par les tensions de polarisation DC ou RF et la pression de gaz inerte introduit pour créer le plasma, peuvent ici être modifiées en choisissant la géométrie du magnétron. Pour un matériau donné, les vitesses de dépôt les plus faibles ont été obtenues en géométrie FàF (flux de l'ordre de 0.1 Å/s) et les plus élevées en géométrie P (flux supérieur à 5 Å/s).

Pour finir, il est possible d'introduire dans la chambre des gaz d'Argon, d'Oxygène et d'Azote pour faire des dépôts réactifs. Le porte substrat peut être connecté à la masse, laissé à un potentiel flottant ou alimenté par une tension RF. Cette dernière possibilité permet

d'effectuer des décapages en plasma argon pour nettoyer les substrats après leur introduction dans la chambre mais aussi et surtout permet de réaliser des oxydations dans un plasma RF Ar/O₂ d'une couche préalablement déposée.

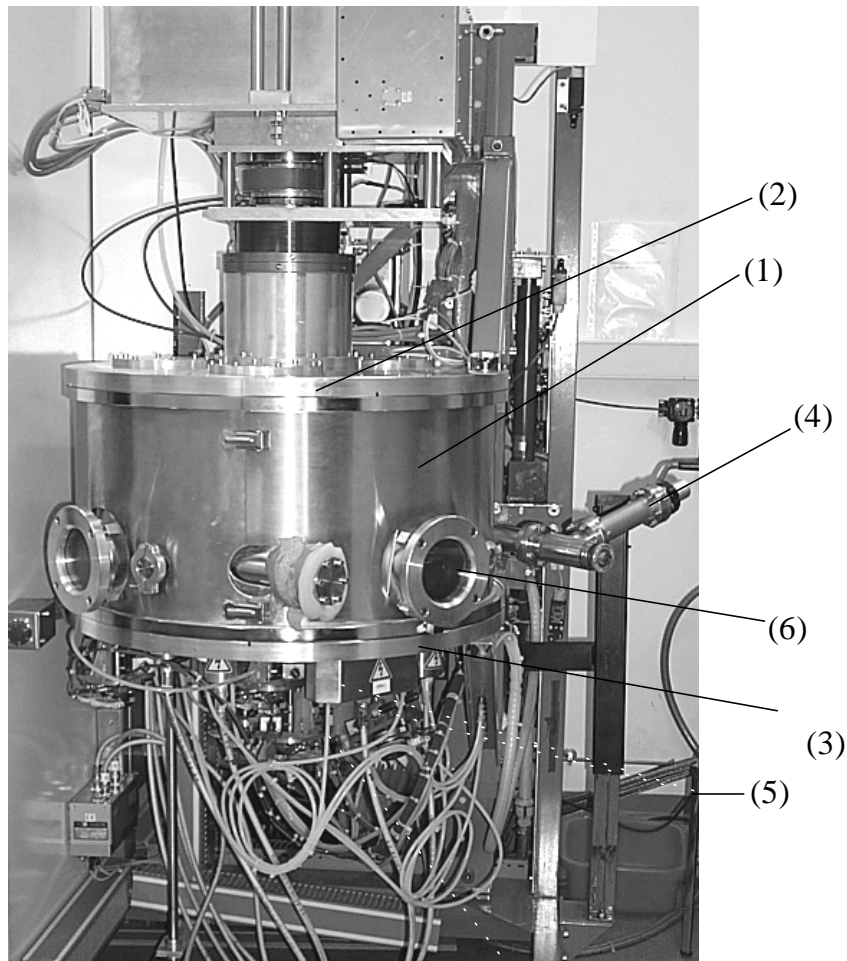


Figure 2.2. Bâti de pulvérisation cathodique (1) chambre de pulvérisation, (2) platine supérieure sur laquelle est fixé le porte- substrat, (3) platine inférieure sur laquelle sont fixés les magnétrons avec les cibles, (4) sortie vers le spectromètre de masse, (5) alimentation électrique des magnétrons, (6) circuits de refroidissement des magnétrons

2.1.2. Structuration des jonctions par lithographie optique

Il est possible de fabriquer des jonctions tunnel par deux méthodes distinctes.

La première méthode consiste à déposer les différentes couches formant la jonction à travers une série de masques afin d'obtenir une géométrie des électrodes de mesure sous forme de croix. Les électrodes supérieure et inférieure, séparées par la barrière isolante, sont alors perpendiculaires.

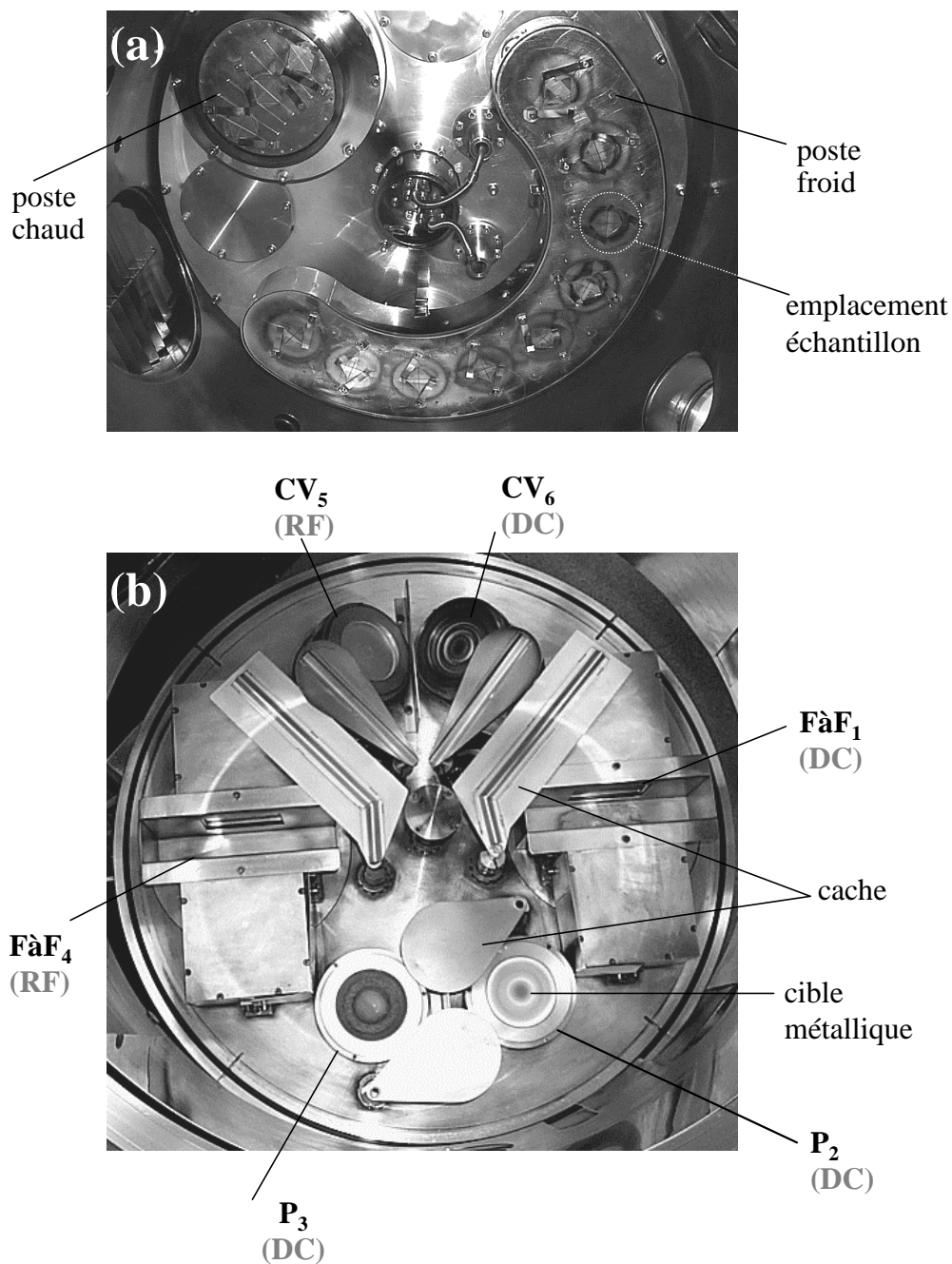


Figure 2.3. Schéma fonctionnel de la platine supérieure (porte-échantillon) (a), et de la platine inférieure (support magnétons et cibles) (b). On peut distinguer les magnétons plans, face à face et convergents ainsi que les caches qui contrôlent l'ouverture et la fermeture du flux des atomes vers les substrats.

La surface utile de la jonction tunnel est définie par la zone de superposition des deux électrodes. Néanmoins, cette méthode d'élaboration rapide se confronte à de nombreux problèmes comme par exemple la contamination des interfaces pendant le changement de masque s'il est réalisé en retirant l'échantillon du bâti de pulvérisation ou bien l'existence de

courant de fuite dans le substrat [Nassar99]. De plus, cette méthode permet difficilement de réaliser des jonctions de taille inférieure à 50 μm .

La seconde méthode, mise en œuvre dans le cadre de cette thèse, consiste à utiliser les techniques classiques de la micro-électronique, les *techniques de lithographie* et de gravure ionique sèche. Les multicouches sont alors déposées sans interruption sous forme de couches continues et sont ensuite gravées sous forme de jonction après dépôt à l'aide d'un faisceau d'ions. Cette méthode évite la contamination des interfaces et permet de réaliser des jonctions pouvant atteindre quelques micromètres de taille latérale. Ce dernier aspect est très important dans la perspective des applications de stockage d'informations à très haute densité.

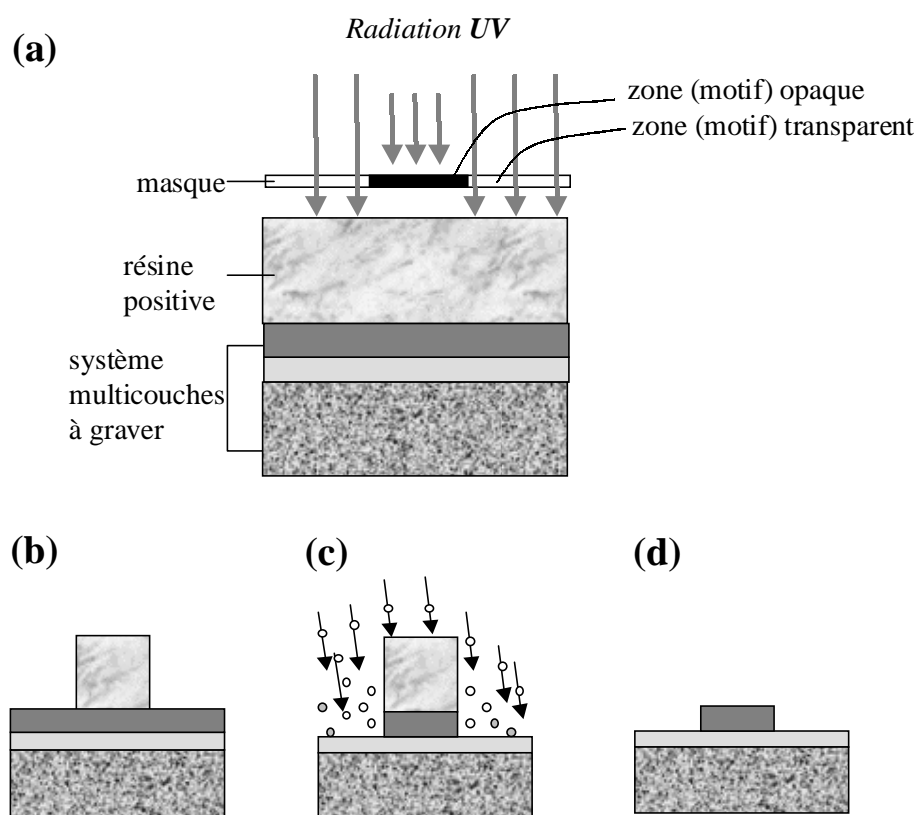


Figure 2.4. Étapes de lithographie UV utilisant une résine positive
(a) Enrésinement et insolation à travers un masque opaque au rayonnement UV
(b) Développement du motif induit dans la résine **(c)** gravure ionique sèche
 (faisceau d'ions **(d)** Dissolution de la résine insolée à l'aide d'un solvant.

Le principe de la photo lithographie est illustré dans la figure 2.4. La surface de l'échantillon est tout d'abord recouverte avec une résine photosensible. La résine est ensuite insolée à travers un masque sur lequel figurent des motifs opaques au rayonnement UV (figure 2.4 (a)). Ensuite l'échantillon est plongé dans un bain développeur qui dissout sélectivement les zones

de résine qui ont été éclairées (figure 2.4 (b)). On obtient alors une surface dont certaines régions sont masquées par des motifs de résine.

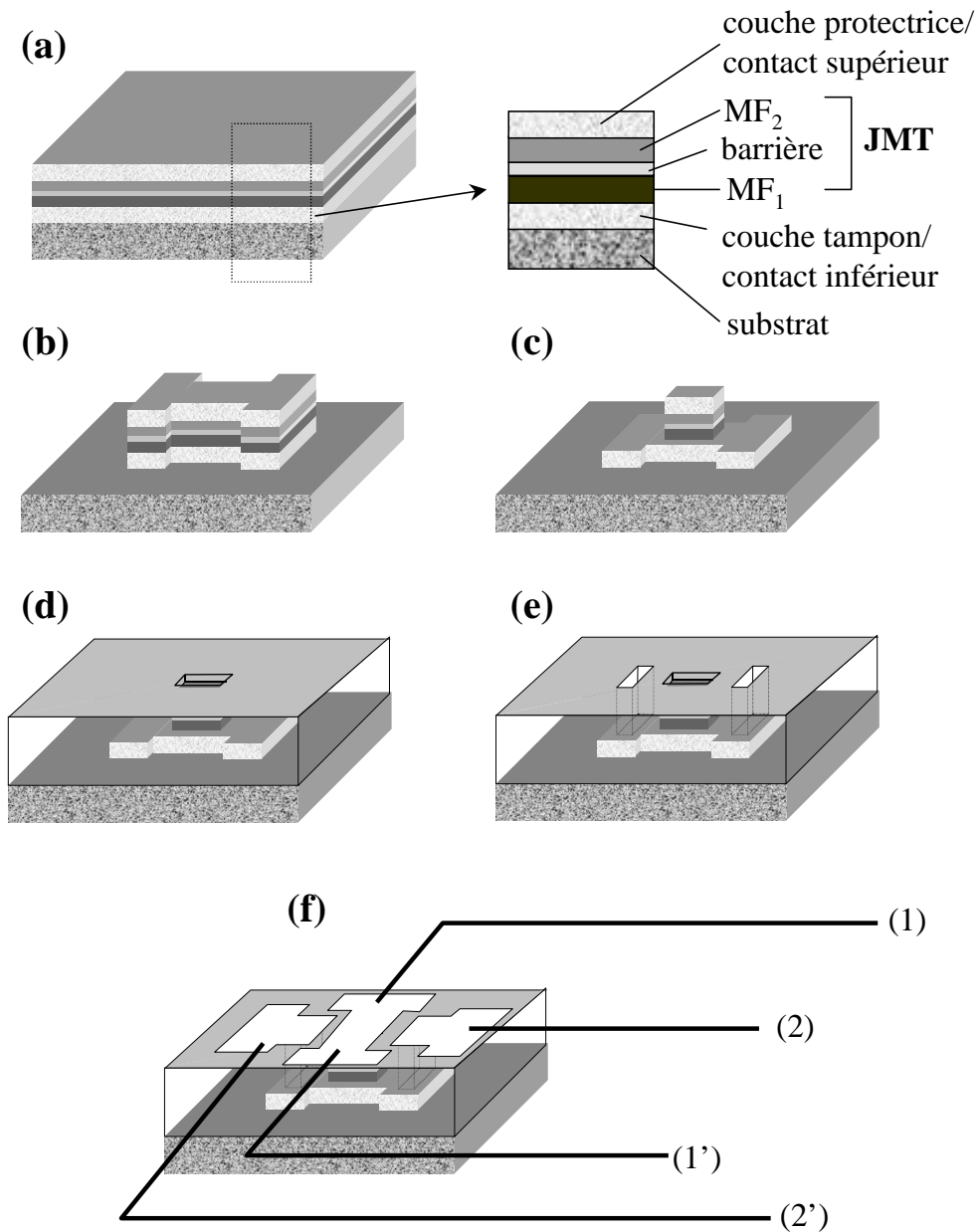


Figure 2.5. Etapes de lithographie UV pour structurer des jonctions tunnel magnétiques

- (a) L'ensemble initial de la multicouche, contenant la succession : substrat/couche tampon (utilisée également comme électrode inférieure)/couche ferromagnétique (FM₁)/barrière isolante/ couche ferromagnétique (FM₂)/couche protectrice (utilisée pour le contact supérieur)
- (b) définition des motifs des jonctions individuelles
- (c) définition de la jonction tunnel (surface active) dans chaque motif de jonction individuelle
- (d) dépôt d'un isolant (SiO₂) pour isoler et protéger les surfaces latérales des différentes jonctions
- (e) gravure réactive (RIE) dans l'isolant afin d'accéder à la couche tampon conductrice
- (f) dépôt des contacts métalliques qui forment les électrodes du haut (1), (1') et du base (2), (2')

On peut ensuite effectuer deux types d'opérations:

- soit la surface de l'échantillon est bombardée par un faisceau d'ions Ar^+ , les zones non protégées par la résine seront gravées (figure 2.4 (c)). Après la gravure, l'échantillon est plongé dans un bain de solvant afin d'éliminer la résine restante.
- soit un métal ou un isolant est déposé sur toute la surface de l'échantillon avant de dissoudre la résine dans le solvant (opération appelée *lift-off*). A l'issue de cette opération, le dépôt ne subsiste que sur les régions de la surface qui n'ont pas été protégées par la résine.

Afin de définir les jonctions tunnel, plusieurs étapes de lithographie seront nécessaires et sont décrites dans la figure 2.5.

- A partir du dépôt multicouche (figure 2.5 (a)), une première étape de lithographie suivie d'une gravure ionique permet de définir le « barreau » qui formera l'électrode inférieure de la jonction (figure 2.5. (b))
- Une seconde étape de lithographie suivie d'une gravure ionique permet de définir dans chaque « barreau » la surface utile de la jonction. En dehors de cette zone (figure 2.5.(c)), la multicouche est gravée jusqu'à la couche MF_2 comprise ce qui permettra par la suite de prendre un contact électrique en dessous de la couche MF_2 par la couche tampon. Cette opération est importante car en gravant totalement les couches magnétiques, leur propriétés magnétiques sont mieux définies. En particulier, l'allure de la réponse magnétique des couches MF_1 et MF_2 peut être modifiée en jouant sur leur géométrie et leur taille latérale. Pour finir, étant donnée que la couche tampon n'est pas magnétique, on évite ainsi les mesures parasites d'anisotropie de magnéto-résistance.
- Une couche d'isolant épaisse (SiO_2 d'épaisseur approximative 1500\AA) est ensuite déposée sur toute la surface de l'échantillon. Pendant ce dépôt, la surface supérieure des jonctions est protégée par le motif de résine utilisé dans l'étape de gravure préalable (figure 2.5 (d)).
- Une étape de lithographie suivie d'une gravure ionique réactive (RIE) permet « d'ouvrir » l'isolant afin de permettre l'accès électrique à l'électrode inférieure, c'est à dire la couche tampon (figure 2.5 (e)). Une dernière étape de lithographie, suivie d'un dépôt d'une

bicouche de Nb/Al et d'un *lift-off*, permet de définir les contacts électriques des couches ferromagnétiques supérieures et inférieures des jonctions (figure 2.5 (f)).

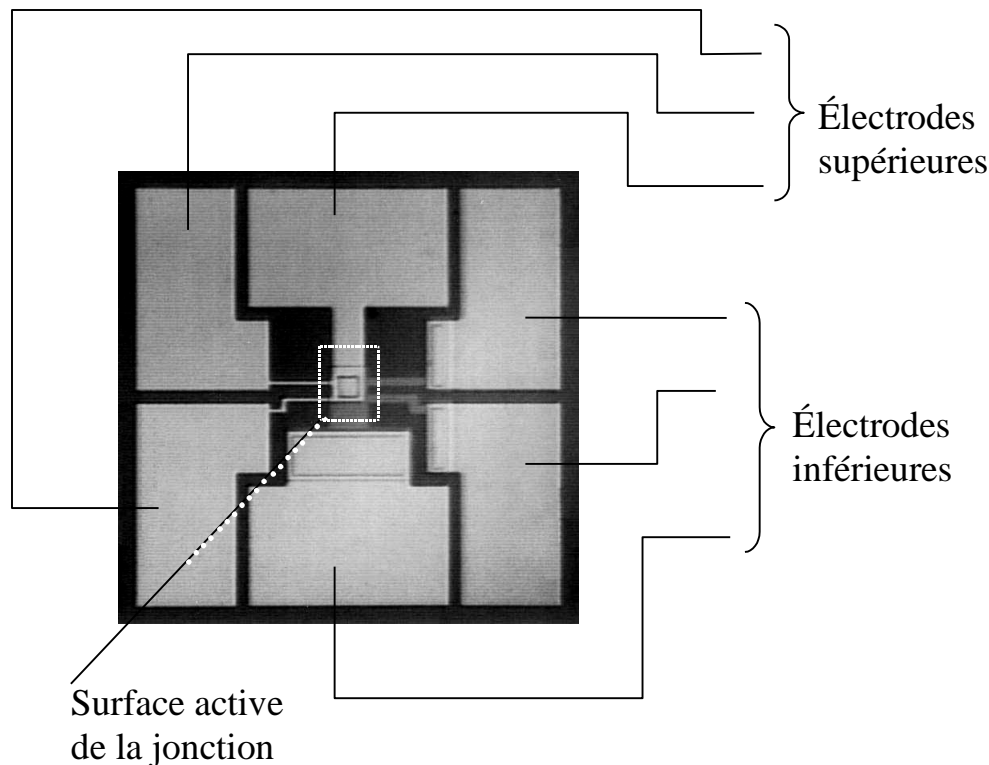


Figure 2.6. Jonction tunnel magnétique, structurée par la lithographie optique UV (SIEMENS). La taille latérale de la jonction est de $20 \times 20 \mu\text{m}^2$.

Dans le cadre de ce travail de thèse, les dépôts ont été structurés sous forme de jonctions tunnel à l'aide de la cellule de microtechnologie disponible dans les laboratoires de SIEMENS (Erlangen, Allemagne) sous la direction du Dr Hugo Van den Berg. En utilisant le matériel disponible dans cette cellule, nous avons pu définir des jonctions tunnel carrées ayant des tailles latérales égales à 10, 20, 50 ou $100 \mu\text{m}$. A titre d'exemple, la figure 2.6 représente une photographie du résultat final des différentes étapes technologiques pour une jonction de $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ de taille latérale. Etant donné que le procédé utilisé pour la structuration des échantillons provient d'un site industriel, nous n'avons pas été autorisés à divulguer plus d'informations.

2.2. Techniques de caractérisation

2.2.1. Caractérisation structurale

a) Diffraction de rayons X (XRD)

La diffraction de rayons X est une technique d'analyse structurale non- destructive, dont la mise en œuvre est faite après le dépôt. Elle permet de caractériser la nature cristalline des dépôts et d'en contrôler la qualité cristallographique. Les informations obtenues par cette analyse sont notamment l'orientation cristalline des différents composants d'une multicouche, l'épaisseur totale d'un dépôt réalisé sur un substrat, l'épaisseur de la super- période d'une multicouche.

Etant données que les multicouches étudiées dans le cadre de ce travail de thèse ont été préparées par pulvérisation cathodique, leur structure cristallographique est de manière générale polycristalline c'est à dire que les grains monocristallins sont totalement désorientés les uns par rapport aux autres. Au mieux, les échantillons peuvent être texturés c'est à dire que l'orientation d'un axe cristallographique est commun d'un grain à l'autre mais qu'aucune cohérence cristallographique dans le plan de croissance n'existe. Ainsi, ce que l'on va sonder par diffraction de rayons X dans ce cas particulier est la présence d'une certaine texture dans les différentes couches.

Les mesures de diffraction de rayons X ont été réalisées à l'IPCMS à Strasbourg à l'aide d'un diffractomètre *Siemens* de type *D500* muni d'un tube scellé à une anode de Co. Le faisceau délivré est monochromatique de longueur d'onde $\lambda=1,7889\text{\AA}$. La géométrie utilisée est la géométrie $\theta/2\theta$, les mesures étant effectuées aux petits et grands angles.

Sur les spectres de rayons X aux petits angles de couches minces de quelques centaines d'angströms d'épaisseur, on observe généralement des franges de *Kiessig* produites par les interférences entre les rayons réfléchis par le substrat et ceux réfléchis par la surface de l'échantillon. La position des minima des franges permet de calculer avec précision l'épaisseur totale du film déposé. Ce type de mesure a notamment été utilisé pour effectuer les étalonnages des vitesses de dépôt des différents métaux pour la pulvérisation cathodique.

Dans la géométrie $\theta / 2\theta$ aux grands angles, lorsque l'angle d'incidence θ varie, des pics de diffraction apparaissent aux positions angulaires pour lesquelles la loi de Bragg

($2d_{hkl} \sin \theta = n\lambda$) est vérifiée. On peut déduire alors la famille de plans ($h k l$) diffractant selon cette direction.

b) Spectroscopie X de photo-émission d'électrons (XPS)

La spectroscopie X de photo-émission d'électrons fournit des informations utiles sur les propriétés chimiques de multicouches. Elle sera utilisée dans le cadre de cette thèse comme une méthode d'analyse chimique pour déterminer le degré d'oxydation de l'aluminium et du cobalt dans les multicouches déposées par pulvérisation cathodique. Les expériences ont été effectuées à l'IPCMS à Strasbourg, par Jean Hommet, à l'aide d'un instrument VSW doté d'un analyseur concentrique hémisphérique ayant des rayons moyens de 150mm. Une source de rayons X a été utilisée lors de ces expériences avec une anode en aluminium ($K\text{-}\alpha$ à 1486.6eV). La pression de base dans le système lors des analyses était toujours inférieure à 5×10^{-10} Torr.

Les barrières isolantes des jonctions tunnel sont réalisées par l'oxydation dans un plasma réactif radio fréquence d'une couche d'aluminium métallique déposée préalablement (plus de détails sur ce procédé seront donnés dans un autre paragraphe).

L'étude par XPS a donc été focalisée sur deux points fondamentaux. Tout d'abord sur la composition chimique de la barrière tunnel c'est à dire la stœchiométrie de l'oxyde AlO_x . Ensuite, sur le temps d'oxydation optimum pour une épaisseur d'aluminium donnée afin d'obtenir une oxydation complète de la couche d'Al sans oxydation des couches sous-jacentes. Pour cela, nous avons enregistré les spectres XPS autour des pics $Al\ 2p$, $O\ 1s$ et $Co\ 2p_{3/2}$ et $2p_{1/2}$ afin d'analyser le contenu des multicouches en Al non oxydé, oxyde d'Al, Co non oxydé et oxyde de Co.

c) Microscopie électronique en transmission (MET)

L'observation des multicouches composant les jonctions tunnel magnétiques en microscopie électronique en transmission (MET) fournit de nombreuses informations sur la microstructure des échantillons. Ces informations proviennent d'une étude très localisée dans le réseau direct ainsi que dans le réseau réciproque. L'obtention des images par cette technique nécessite une étape d'amincissement des échantillons sous forme de lamelles fines transparentes aux électrons, l'épaisseur limite étant déterminée par l'énergie des électrons utilisés. Le microscope utilisé est un *TOPCON-002B* équipé d'un filament en hexaborure de lanthane ; la

tension accélératrice des électrons est de 200kV et il est équipé d'un système d'analyse chimique EDAX. La préparation des échantillons a été réalisée par Gerard Wurtz et les observations par Gaby Ehret.

Nous avons utilisé la MET dans une géométrie en *section transverse* où le faisceau d'électrons se propage dans le plan de la couche, perpendiculairement à l'axe de croissance. Cette géométrie permet de visualiser directement les interfaces et les empilements des différentes couches métalliques, magnétiques et isolantes. Nos analyses par MET ont été focalisées sur la morphologie de la couche d'oxyde de notre empilement multicouche. Nous avons regardé la continuité de cette couche, les corrélations des interfaces supérieure et inférieure de la barrière, la présence de défauts localisés dans la barrière.

d) Microscopie à force atomique (AFM)

La qualité topographique des surfaces et des interfaces est un paramètre crucial dans les jonctions tunnel magnétiques. En effet, afin de permettre un transport des électrons à travers une barrière isolante par effet tunnel, il faut que l'épaisseur de cette barrière soit suffisamment fine, de l'ordre de quelques angströms.

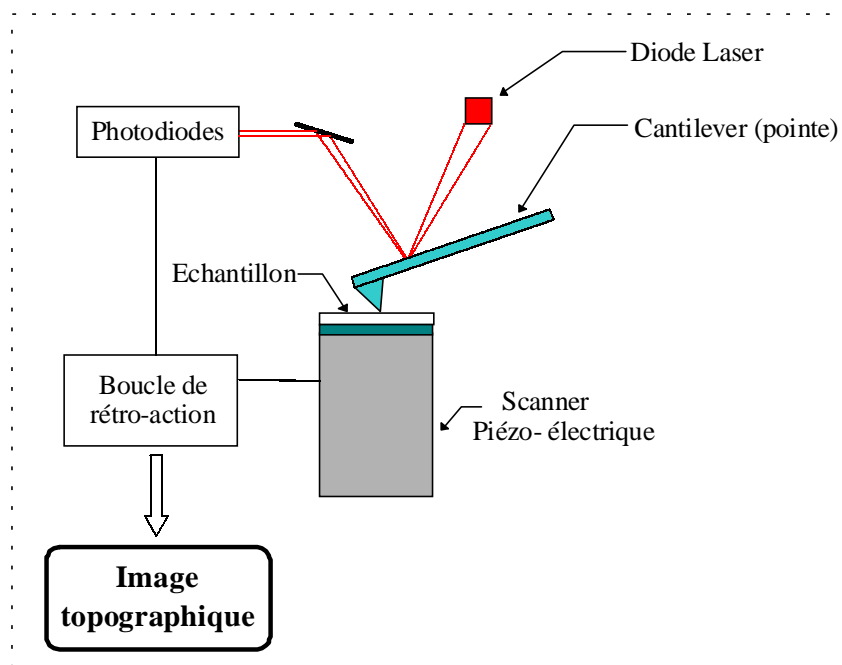


Figure 2.7. Schéma de principe du microscope à force atomique.

La rugosité des surfaces dans l'empilement multicouche ne doit alors pas dépasser quelques angströms pour que la barrière isolante soit continue. De plus, comme nous l'avons déjà dit dans le premier chapitre de cette thèse, de faibles fluctuations dans les paramètres de la barrière tunnel, induites par une rugosité excessive, sont responsables de fluctuations à grande échelle dans le courant tunnel. La caractérisation et le contrôle de chaque interface est alors primordiale.

Grâce aux techniques de microscopie en champ proche et notamment à la Microscopie à Force Atomique [Binnig86], la topographie des surfaces des couches peut être analysée d'une manière systématique et précise afin d'optimiser les paramètres de croissance et de diminuer la rugosité de chaque couche dans l'empilement multicouche.

Le fonctionnement d'un microscope à force atomique repose sur l'utilisation d'une sonde constituée d'une pointe très effilée, montée au bout d'un levier de faible constante de raideur k ($0.1 \text{ N/m} < k < 10 \text{ N/m}$). Lorsque la sonde est proche de la surface, elle interagit avec celle-ci (interactions de type *Van der Waals*) et entraîne un changement mesurable de l'état du levier. Selon le mode de mesure utilisé, le changement de l'état du levier est mesuré par sa déflexion en mode contact ou la variation de sa fréquence de résonance en mode vibrant. La sonde balaye une zone donnée de la surface et la mesure de l'interaction de la pointe avec cette surface en chaque point est traduite dans une image topographique. La mesure de la déflexion du levier est assurée par un système optique. Un faisceau laser est envoyé sur la partie supérieure du levier puis il est réfléchi vers une photodiode à quatre segments qui assure la mesure de la déflexion verticale ainsi que la torsion horizontale du levier. Les déplacements dans les trois directions de l'espace sont assurés par des cales piézo-électriques. Dans le cas du microscope type *Dimension 3100* utilisé pour cette étude, l'échantillon reste fixe et la pointe se déplace lors du balayage. Le microscope peut fonctionner en deux modes : mode contact et mode non-contact.

Le mode contact

La pointe est directement en contact avec la surface à étudier [Martin1987]. La force appliquée sur la pointe est maintenue constante à l'aide d'un système d'asservissement de la déflexion du levier. Le système pointe-levier se déplace à déflexion constante grâce à l'extension ou la contraction de la cale piézo-électrique selon l'axe perpendiculaire à la surface, afin de suivre la topographie de l'échantillon. L'image topographique obtenue

correspond à la cartographie des déplacements de la cale piézo-électrique le long de la direction verticale en fonction des déplacements dans le plan de la surface mesurée.

Le mode non-contact

Le levier, monté sur un élément piézo-électrique, est soumis à une oscillation forcée et le changement de sa fréquence de résonance dû à l'interaction entre la pointe et la surface de l'échantillon est mesuré (forces de type Van der Waals ou magnétiques).

Ce mode de fonctionnement est très important car il permet de réaliser à la fois des observations topographiques et magnétiques. Le fonctionnement du Microscope à Force Magnétique (MFM) va être détaillé dans le paragraphe concernant l'analyse des propriétés magnétiques à l'échelle microscopique.

2.2.2. Analyse des propriétés magnétiques

a) Magnétomètre AGFM – étude des propriétés magnétiques à l'échelle macroscopique

Pour mesurer les cycles d'aimantation de nos échantillons à température ambiante, nous avons utilisé un magnétomètre à gradient de champ alternatif (AGFM).

L'échantillon à mesurer est fixé sur une tige en quartz reliée à un élément piézo-électrique. Il est soumis à un champ magnétique statique d'intensité variable compris entre 0 et 13 kOe auquel on superpose un gradient de champ magnétique oscillant à la fréquence de résonance du système composé par la tige en quartz et l'échantillon, fréquence qui varie entre 100 et 1000 Hz [Flanders88]. Les deux champs sont appliqués suivant la même orientation. Le gradient de champ induit une force alternative sur l'échantillon proportionnelle au produit de son moment magnétique et de l'amplitude du gradient de champ.

Cette force entraîne une déformation mécanique du transducteur piézo-électrique qui transforme l'intensité de la force en un signal électrique. Ce signal est proportionnel à la force et donc au moment magnétique de l'échantillon mesuré. Il est mesuré à l'aide d'une détection synchrone à la fréquence du gradient de champ alternatif. En faisant varier l'intensité du champ magnétique statique H , la courbe d'aimantation $M(H)$ est alors obtenue et décrit l'évolution du moment magnétique en fonction du champ appliqué.

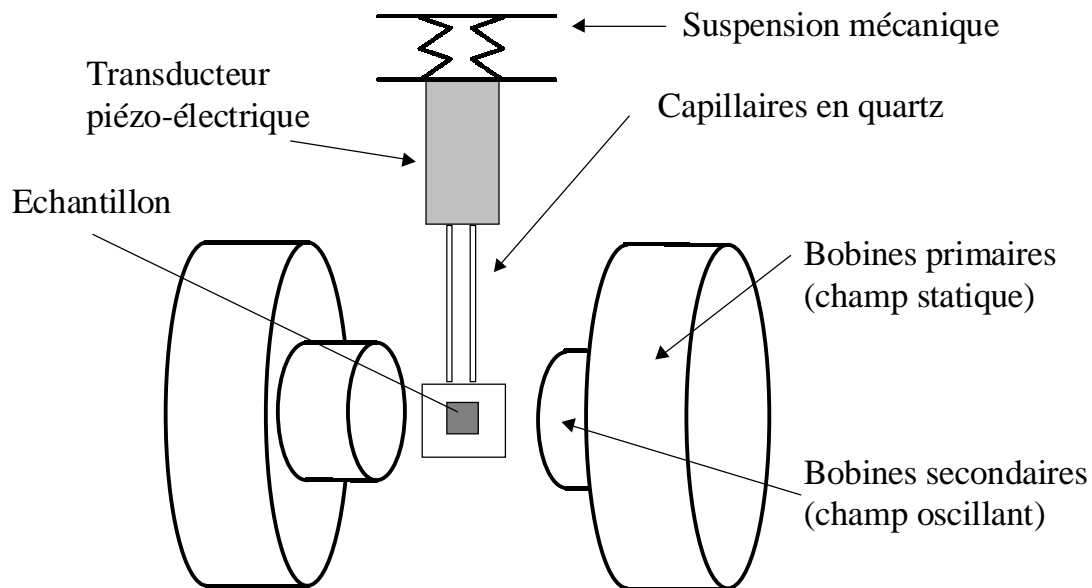


Figure 2.8. Schéma de principe du magnétomètre à gradient de champ alternatif (AGFM)

b) Microscopie de force magnétique (MFM) – étude des propriétés magnétiques à l'échelle microscopique

La microscopie de force est un concept tout à fait général qui peut être appliqué à des forces d'origines autres que celles de type Van der Waals. Martin et al [Martin87] ont adapté l'AFM à l'étude du magnétisme de surface en développant ce qu'on appelle communément le Microscope de Force Magnétique (MFM). Le principe général est le même que celui de l'AFM mais les pointes utilisées dans la microscopie de force magnétique sont des pointes magnétiques [Rugar90,denBoef90].

Pour séparer les interactions de type Van der Waals des interactions magnétiques afin de réaliser l'image magnétique de la surface de l'échantillon, on éloigne la pointe de la surface lors du balayage magnétique. En effet, les interactions de type Van der Waals, variant comme $1/r^7$, prédominent près de la surface alors que loin de la surface, les forces magnétiques, variant comme $1/r^4$, deviennent plus importantes.

Le processus de mesure de l'image magnétique se fait en deux temps.

Dans un premier temps, la sonde parcourt une ligne de l'axe de scan lent dans le mode AFM. La déflexion du levier est maintenue constante à l'aide de l'électronique de rétroaction en variant la distance entre la pointe et l'échantillon. Le premier parcours de la pointe définit

alors la topographie de l'échantillon car la distance entre la pointe et l'échantillon est de l'ordre du nanomètre. Le signal mesuré est uniquement issu des forces de Van der Waals.

Dans un second temps, à la fin de la ligne, la pointe est soulevée et maintenue à une distance δ de la surface définie par la première mesure de topographie. Pour cela, le signal électrique mesuré sur la ligne topographique est réinjecté dans l'élément piézo-électrique qui suit alors la topographie à la distance δ et la rétroaction est coupée. Ainsi, en considérant que les forces de Van der Waals ne varient pas lorsque la distance entre la pointe et l'échantillon passe de quelques nanomètres à δ , le signal topographique est automatiquement annulé. On mesure alors la variation d'amplitude de vibration ou de phase du système levier + pointe qui est proportionnelle à la dérivée seconde du champ de fuite.

On mesure soit la variation de l'amplitude d'oscillation du levier dans le mode *détection d'amplitude*, soit la variation de la phase d'oscillation dans le mode *détection de phase*. Dans les deux cas, les quantités mesurées sont proportionnelles à la dérivée seconde du champ de fuite de l'échantillon [Grütter92]. Le mode *détection de phase* permet cependant d'accroître la sensibilité de la mesure car le signal détecté est indépendant de l'amplitude d'oscillation du levier. Ainsi, des mesures très proches de la surface permettent d'accéder à une meilleure résolution latérale et la mesure d'un champ de fuite d'intensité plus importante.

Pour les multicouches étudiées dans le cadre de ce thèse, les épaisseurs des couches magnétiques sont telles que l'aimantation reste toujours dans le plan de la couche. Le signal magnétique mesuré, résultat de l'interaction pointe- champ de fuite des parois magnétiques de type Néel, est faible en comparaison avec des couches pour lesquelles les moments magnétiques sont perpendiculaires au plan de la couche [Hehn96], [Hehn97].

Grâce à la MFM utilisant la *détection de phase*, nous avons été capables de mesurer des contrastes magnétiques sur des systèmes de très faible moment magnétique net dont l'aimantation est dans le plan des couches. Cette tâche est impossible à réaliser en utilisant la détection d'amplitude comme cela a été montré ces dernières années dans le cadre d'autres travaux de thèse [Zoll96], [Persat98]. A partir du contraste MFM mesuré, proportionnel à la dérivée seconde du champ de fuite, la structure magnétique de l'échantillon peut être reconstruite comme cela va être montré plus loin dans ce manuscrit.

Pour analyser l'évolution de la structure en domaines magnétiques par MFM sous champ magnétique, nous avons rajouté sur la platine porte- échantillon un système de production de

champ. L'échantillon est fixé entre deux aimants permanents reliés entre eux et guidés par une vis sans fin qui permet de les éloigner ou de les rapprocher afin de respectivement réduire ou augmenter l'intensité du champ appliqué *in-situ*. Le champ a été préalablement calibré à l'aide d'une sonde de Hall et est appliqué dans le plan de l'échantillon. Avec ce dispositif, on peut appliquer des champs jusqu'à 600 Oe.

2.2.3. Analyse des propriétés de transport

a) Mesures de transport dans une géométrie à quatre fils, deux contacts – propriétés à l'échelle microscopique

Les mesures de transport que nous décrivons dans cette thèse ont été effectuées avec ou sans champ magnétique extérieur appliqué, en utilisant une méthode de mesure dans une géométrie quatre fils, deux contacts. Cette méthode permet de mesurer directement la résistance de l'échantillon sans avoir à soustraire les résistances des fils de mesure.

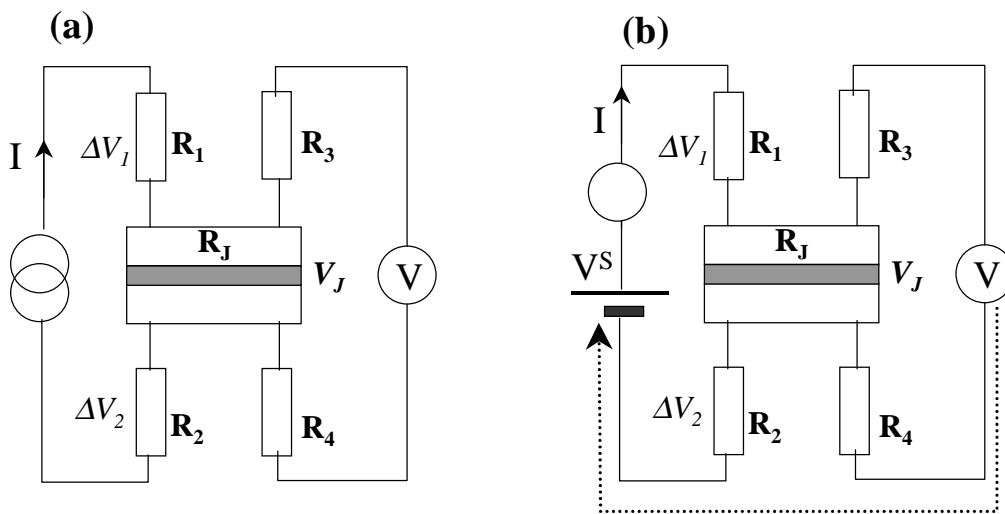


Figure 2.9. Mesure de résistance dans une géométrie quatre points à courant constant (a) et à tension constante (b). R_1, R_2, R_3, R_4 sont les résistances des 4 contacts (fils + électrodes), R_J est la résistance de la jonction mesurée.

Deux configurations de mesure ont été envisagées, soit à courant constant, soit à tension constante. Etant données que les jonctions tunnel sont des dispositifs non-linéaires, ces deux méthodes peuvent donner des valeurs de magnéto-résistance tunnel différentes [Nassar99].

Dans la mesure à courant constant (figure 2.9 (a)), un courant constant est injecté à travers la jonction et la tension à ses bornes est mesurée. L'impédance du voltmètre étant très grande

($10^{12}\Omega$), le courant dans les résistances R_3 et R_4 est très faible et on peut considérer que la tension V est bien égale à la tension V_J aux bornes de la jonction. Dans ce type de mesure, les circuits d'injection de courant et de mesure de la tension sont indépendants.

Dans la mesure à tension constante, une tension constante est appliquée aux bornes de la jonction et le courant qui traverse la jonction est mesuré. Dans cette configuration, une rétroaction est nécessaire : la tension source V^S doit être ajustée en permanence afin de maintenir la tension V constante sur la jonction ($V^S = \Delta V_1 + \Delta V_2 + V_J$, où ΔV_1 et ΔV_2 sont les chutes de tension dans les contacts du circuit « source »). Dans l'appareil utilisé *Keithley2400*, cette boucle de rétroaction est implicite.

La mesure de magnéto-résistance qui a un sens physique est celle réalisée à tension constante. En effet, comme nous l'avons déjà montré dans le première chapitre, c'est l'application d'une tension à une jonction tunnel qui détermine implicitement une modification de la transmission tunnel par la déformation du profil de la barrière tunnel et le décalage des niveaux de Fermi des deux électrodes métalliques. En effet, pour mesurer uniquement des effets magnéto-résistifs, il faut que la forme de la barrière et les niveaux de Fermi des deux électrodes restent les mêmes pendant la mesure. Pratiquement, pour une tension de polarisation donnée et fixée, on mesure la variation du courant tunnel transmis avec le champ magnétique appliqué.

b) Cartographie des courants tunnel- propriétés de transport à l'échelle nanoscopique

Les techniques d'analyse par XPS et MET sont des techniques traditionnelles utilisées pour caractériser d'une manière globale la qualité structurale et chimique d'une couche d'oxyde. De plus, par la microscopie AFM conventionnelle, nous accédons à des informations sur la distribution spatiale de la rugosité en surface. Cependant, nous sommes incapables d'obtenir des informations sur l'homogénéité spatiale chimique de l'oxyde, ou bien sur la topologie de l'interface enterrée c'est à dire les corrélations des rugosités des différentes couches d'une multicouche. Néanmoins, ces aspects sont très importants car ils peuvent déterminer des fluctuations de la hauteur et de la largeur de la barrière tunnel, induisant des fluctuations spatiales du courant tunnel.

Afin de pouvoir étudier ces propriétés, une nouvelle technique de mesure a été développée à l'IPCMS à Strasbourg par Victor da Costa [daCostaJAP98], [daCostaEPJB00]. Cette

technique nous a permis d'effectuer des mesures de cartographie des courants tunnel à une échelle nanométrique sur des jonctions métal- oxyde.

Les propriétés locales de transport de la jonction sont étudiées en utilisant une technique de type AFM modifiée, en opérant en mode contact et en utilisant une pointe conductrice [Morita89], [Houze96], [daCostaJAP98]. Elle est composée d'une pointe standard de Si_3N_4 sur laquelle a été déposé un film conducteur de TiN_x .

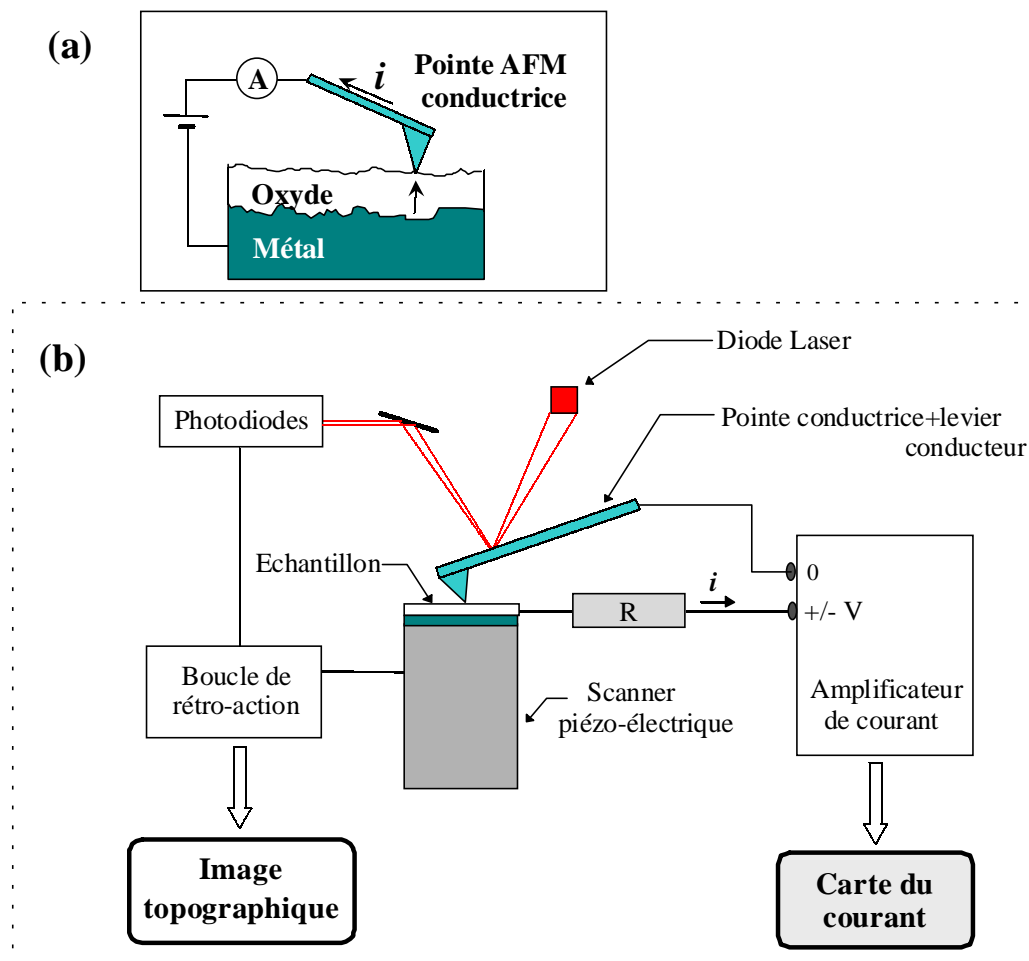


Figure 2.10. Schéma de principe de la technique de cartographie des courants tunnel
(a) schéma simplifié. Une tension est appliquée entre la pointe conductrice qui forme l'électrode supérieure de la jonction tunnel et l'électrode inférieure métallique.
(b) schéma plus détaillé. L'AFM opérant en mode contact mesure simultanément la topographie et les courants tunnel à travers la couche isolante.

Afin d'effectuer une mesure sur une barrière tunnel donnée, le dépôt de l'empilement multicouche est stoppé juste après la couche isolante. En opérant en mode contact et à force constante (quelques nN), la pointe conductrice sonde la surface supérieure de l'oxyde et est utilisée comme électrode supérieure de la jonction tunnel (figure 2.10.(a)). Une tension

continue, typiquement IV , est appliquée entre l'électrode métallique inférieure de la jonction tunnel et la pointe conductrice pour faire circuler un courant à travers la barrière (figure 2.10). Cette technique permet de mesurer simultanément la rugosité de la surface et l'intensité du courant transmis. Ainsi, elle permet de localiser les différents types de défauts dans la barrière isolante qui induisent des fluctuations du courant tunnel à une échelle nanométrique. L'échelle de la mesure est alors déterminée par la dimension de la pointe qui est approximativement 30nm.

Cette technique nous donne rapidement des informations sur la qualité d'une barrière isolante sans avoir recours aux étapes de lithographie nécessaires aux mesures de transport dans la géométrie *CPP* (courant perpendiculaire au plan). Ainsi elle est une technique très utile lors de travaux concernant l'optimisation de la qualité des barrières tunnel puisqu'elle permet d'accéder directement à l'homogénéité du courant tunnel.

Références du chapitre 2

[denBoef90]

A. J. den Boef, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 2045, (1990)

[Binnig86]

G. Binnig, C. F. Quate, Gh. Gerber, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 930, (1986)

[daCostaJAP98]

V. da Costa, F. Bardou, C. Beal, Y. Henry, J.P. Bucher, K. Ounadjela, *J. Appl. Phys.* **83**, 6703, (1998)

[Flanders88]

P. J. Flanders, *J. Appl. Phys.* **63**, 3940, (1988)

[Grütter92]

P. Grütter, H. J. Mamin, D. Rugar, *Scanning Tunneling Microscopy II, Springer Series in Surf. Sci.* **28**, 151, (1992)

[Hehn96]

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

[Hehn97]

M. Hehn, *thèse de doctorat*, Université Louis-Pasteur, (1997)

[Houze96]

F. Houzé, R. Meyer, O. Shniegans, and L. Boyer, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 1975 (1996)

[Martin1987]

Y. Martin, H. K. Wickramasinghe, *Appl. Phys. Lett.* **50**, 1455, (1987)

[Morita89]

S. Morita, T. Ishizaka, Y. Sugawara, T. Okada, S. Mishima, S. Imai, and N. Mikoshiba, *Jpn. J. Appl. Phys. part 2*, **28**, L1634 (1989).

[Nassar99]

J. Nassar, *thèse de doctorat*, Ecole Polytechnique, 1999

[Persat97]

N. Persat, *thèse de doctorat*, Université Louis-Pasteur, (1997)

[Rugar90]

D. Rugar, H. J. Mamin, P. Guethner, S. E. Lambert, J. E. Stern, I. Mc. Fayden, T. Yogi, *J. Appl. Phys.* **68**, 1169, (1990)

[Vossen91]

J. L. Vossen, W. Kern, *Thin Film Processes II*, Academic Press Inc. Boston, (1991)

[Zoll97]

S. Zoll, *thèse de doctorat*, Université Louis-Pasteur, (1997)

Chapitre 3

Croissance et propriétés structurales des multicouches

3.1. Contexte et objectifs de ce travail

Une vingtaine d'années après les résultats pionniers obtenus par Jullière à basse température, les premiers résultats de magnéto- résistance tunnel à température ambiante ont commencé à être rapportés par différents groupes Moodera [MooderaPRL95], [GallagherJAP97]. Certains groupes avaient auparavant annoncé des résultats à basse température [Maekawa82], [Nowak92] ou bien des résultats non reproductibles à température ambiante [Miyazaki94].

La difficulté de la fabrication des jonctions tunnel magnétorésistives est liée à une extrême sensibilité du transport tunnel polarisé à tout ce qui touche la qualité de la barrière isolante. Le transport tunnel dépend de tous les types de défauts, des écarts à la stœchiométrie, de la présence d'impuretés et de ponts métalliques ou « trous d'épingle » créant un contact direct entre les électrodes lorsque la rugosité des interfaces est trop importante. Les « trous d'épingle » peuvent à la fois court-circuiter la jonction et coupler magnétiquement les électrodes et donc empêcher l'obtention d'une configuration d'aimantation antiparallèle.

En effet, des études laborieuses ont été effectuées afin d'obtenir des barrières tunnel continues, de qualité suffisante pour avoir une conduction uniquement par effet tunnel simple et pour pouvoir mesurer des effets de MR tunnel à température ambiante. Dans ces études, le choix de la barrière joue un rôle important.

Les expériences de mesure de polarisation de Meservey et Tedrow [Meservey84] ainsi que les premiers résultats obtenus à température ambiante font de l'alumine le meilleur candidat. Même si ces premiers résultats ont été obtenus par oxydation d'une couche d'aluminium métallique [MooderaPRL95], des expériences antérieures sans succès avaient été tentées avec

des dépôts directs d'une barrière d'alumine. Cette méthode aurait permis de s'affranchir de l'optimisation des conditions d'oxydation.

En effet, le temps d'oxydation doit être ajusté pour obtenir une épaisseur de couche métallique déposée sans oxyder l'électrode inférieure, ni laisser une couche d'aluminium métallique non- oxydée. Malheureusement, les essais effectués dans les différents groupes [Moodera82, dépôt d'alumine par évaporation], [Bee96], [Pla97], [Fer98] ont montré que le dépôt réactif ou non d'une cible d'alumine ne permettait l'obtention de jonctions valides qu'avec un faible rendement. De plus, les résultats obtenus montrent une faible magnétorésistance avec des réponses sous champs magnétiques intimement liées à des effets géométriques. Il semble donc que l'oxydation d'une couche métallique préalablement déposée soit le meilleur moyen d'obtenir une barrière tunnel sans défaut.

En plus par rapport aux jonctions métal/oxyde/métal utilisant des métaux non magnétiques, le transport des électrons est gouverné par un paramètre extrêmement important dans les jonctions tunnel magnétiques qui est le magnétisme des électrodes. Depuis les balbutiements de cet domaine de recherche, les efforts dans le domaine des jonctions tunnel magnétiques ont été focalisés sur la qualité des couches d'oxyde, afin d'améliorer la qualité du transport électronique par effet tunnel. Puis, l'accent a progressivement été mis sur le magnétisme des électrodes afin d'augmenter les effets magnétoresistifs. Afin de pouvoir définir dans de larges gammes de champ magnétique les deux états extrêmes de résistance donnés par l'orientation parallèle et antiparallèle des aimantations des électrodes magnétiques, les rigidités magnétiques des deux électrodes doivent être significativement différentes.

De manière générale, l'obtention d'une couche ayant un champ coercitif inférieur à 50 Oe ne pose pas de problèmes majeurs. A l'inverse, il est difficile d'obtenir des coercivités supérieures à la centaine d'Oersted pour des couches uniques non épitaxiées. Généralement, les couches sont alors rigidifiées soit par l'effet d'un couplage d'échange avec une couche composée d'un matériau antiferromagnétique classique, soit par l'effet d'un couplage avec une autre couche magnétique à travers une couche intercalaire non- magnétique.

Dans le cadre de ce travail de thèse, nous avons utilisé la seconde option pour réaliser l'électrode magnétique dure. L'ensemble des deux couches magnétiques, séparées par une couche non- magnétique et couplées par une interaction d'échange antiferromagnétique, est appelé *système antiferromagnétique artificiel (AAF)*. Les structures AAF permettent d'obtenir un système magnétique rigide, de rigidité bien contrôlée et ajustable avec une

stabilité thermique au delà de 300°C. L'asymétrie des moments magnétiques m_1 et m_2 des deux couches ferromagnétiques 1 et 2 de l'AAF entraîne l'apparition d'un moment magnétique résultant non nul même pour l'orientation antiparallèle des aimantations. L'AAF se comporte alors comme une couche unique de moment réduit égal à $m_1 - m_2$ et de rigidité égale à celle d'une couche unique pondérée par le facteur $Q = (m_1 + m_2) / (m_1 - m_2)$ dans un modèle monodomaine. Plus de détails sur le fonctionnement de ce système seront présentés dans les chapitres suivants de ce manuscrit.

Comme nous le verrons plus tard, l'augmentation de la dureté magnétique s'accompagne de l'apparition d'une structure en domaines dans la couche dure, domaines qui sont à l'origine de la perte d'une partie du signal de magnétorésistance tunnel. L'impact de cette structure en domaines sur le transport polarisé en spin fera l'objet d'un chapitre complet dans ce manuscrit.

3.2. Jonction tunnel à base de système antiferromagnétique artificiel

Dans le cadre de ce travail de thèse, nous présentons les résultats issus de l'étude de JTMs dont la couche dure est un système antiferromagnétique artificiel composé d'une tri-couche Co(1.8nm) / Ru(0.8nm) / Co(3nm) ou Co(2nm)/Ru(0.8nm)/Co₅₀Fe₅₀(3nm) alors que la couche douce est composée d'une bi-couche Co(1nm)/Fe(6nm) ou Co₅₀Fe₅₀(1nm)/Fe(6nm). Ces deux électrodes sont séparées par une barrière isolante d'Al₂O₃ d'épaisseur comprise entre 1 et 2 nm, obtenue par oxydation réactive dans un plasma RF Ar/O₂ d'une couche d'Al placée à la cathode du bâti de sputtering. L'ensemble de ces couches a été déposé sur une couche tampon de Si(111)/Cr(2nm)/Fe(6nm)/Cu(30nm). La séquence multicouche est illustrée dans la figure 3.1.

La couche tampon a des propriétés fonctionnelles très importantes car elle détermine les propriétés des couches du dépôt. En effet, d'une part la qualité de la barrière isolante dépend de manière critique de la rugosité de l'électrode inférieure et donc de la rugosité de la couche tampon, d'autre part les propriétés magnétiques des couches dépendent de la microstructure induite par la couche tampon. Les paramètres du dépôt, la séquence multicouche ainsi que les épaisseurs des différentes couches de la couche tampon ont été ajustées afin d'obtenir des rugosités et des propriétés magnétiques optimales pour les couches de Co ou CoFe en contact avec la barrière.

3.3. Fabrication des empilements multicouches : croissance, oxydation

3.3.1. Croissance

Les multicouches sont élaborées par pulvérisation cathodique dans un bâti *Alliance Concept* à l'IPCMS à Strasbourg. Les dépôts sont réalisés sur des substrats de silicium (111) non oxydés. La surface est recouverte uniquement par une couche d'oxyde natif. Avant d'entrer les substrats dans le bâti, ils sont nettoyés dans un bain d'acétone aux ultrasons pendant 10 minutes puis dans un bain d'alcool aux ultrasons pendant 5 minutes. Ce nettoyage est effectué afin de dégraisser la surface et d'éliminer la poussière de Si qui provient de la découpe des wafers de 3 pouces en morceaux de 1 centimètre de côté environ.

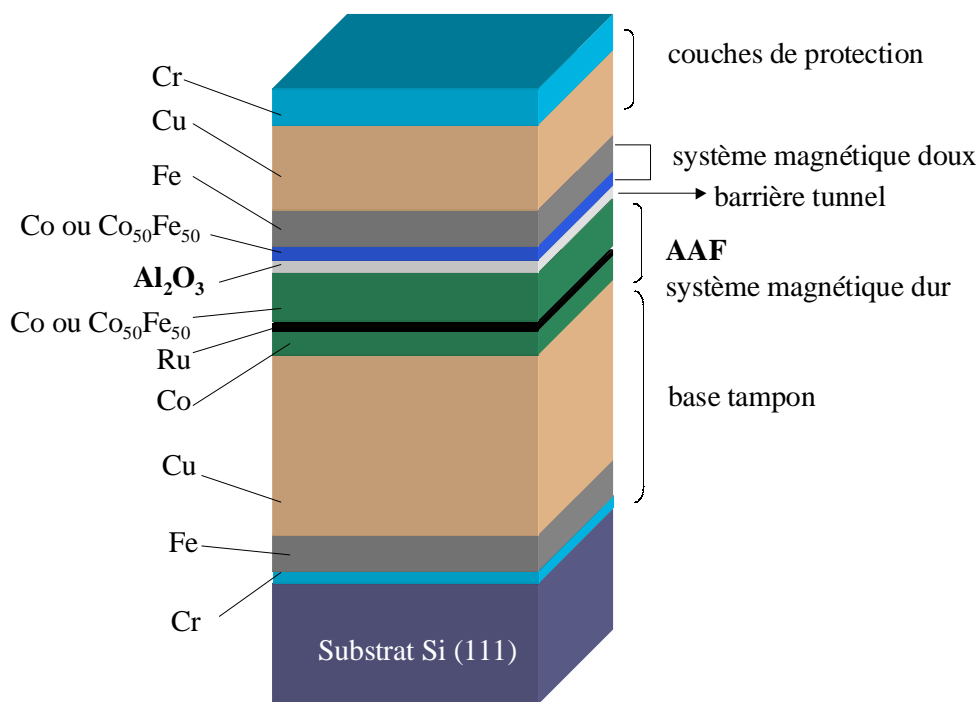


Figure 3.1. Schéma d'un empilement multicouches d'une jonction tunnel dont l'électrode dure est constituée d'un système antiferromagnétique artificiel. Les échantillons étudiés durant cette thèse sont basés sur cet empilement.

Dans le bâti de pulvérisation, les substrats sont décapés dans un plasma RF Ar pendant 30 minutes avant de commencer les dépôts des multicouches. Ce plasma est obtenu en appliquant au porte substrat une puissance de 0.03 W/cm^2 dans une atmosphère d'argon. Puis le dépôt de la multicouche peut commencer.

Les couches individuelles sont déposées en utilisant les paramètres donnés dans le tableau 3.1.

Le vide de base avant les dépôts est de l'ordre de 10^{-8} mbar. La pression d'argon lors des dépôts de toutes les couches est égale à 3×10^{-3} mbar.

L'alliage $\text{Co}_x\text{Fe}_{1-x}$ est réalisé par codéposition des deux métaux, avec des taux de dépôt différents. Les vitesses de dépôt (f_{Fe} et f_{Co}) sont ajustées à l'aide de la puissance RF pour le Fe et le courant DC pour le Co, en tenant compte des courbes de variation des vitesses de dépôt avec la puissance RF et le courant DC.

	Source Plasma	Puissance RF [W]	Courant DC [mA]	Pression Ar [mbar]	Pression O ₂ [mbar]	Vitesse dépôt [Å/s]	
Décapage	RF porte substrat	0.03W/cm ²	-	1.8x 10 ⁻²	-	-	
Cr	DC plan	-	100	3 x 10 ⁻³		0.8	
Fe	RF convergent	110	-			0.5-1	
Cu	DC face à face	-	100			0.5	
Co	DC convergent	-	200			1.0-1.2	
Co _x Fe _{1-x}	Codéposition Co : DC convergent + Fe : RF convergent	P _{Fe}	I _{Co}			La puissance RF ainsi que le courant DC sont ajustés afin d'obtenir les concentrations désirées des deux métaux dans l'alliage	x = f _{Co} / (f _{Fe} + f _{Co})
Al	RF face à face	290	-			0.15-0.2	
Oxydation		0.05W/cm ²	-	9 x 10 ⁻³ $P_{\text{O}_2}/P_{\text{Ar}} = 1$	9 x 10 ⁻³	-	

Tableau 3.1. Paramètres utilisés pendant le dépôt des échantillons par pulvérisation cathodique

3.3.2. L'oxydation

Le phénomène d'oxydation est complexe car de nombreux facteurs interviennent simultanément durant la réaction comme les réactions de surface, la diffusion, le transport d'électrons et d'espèces ioniques, la température... Examinons d'abord les phénomènes généraux intervenant lors d'une oxydation.

a) L'oxydation thermique

Dès sa mise en contact avec une surface, l'oxygène s'adsorbe sur la surface métallique pour former rapidement une première couche d'oxyde. Dès lors que cette couche d'oxyde est continue, l'oxydation ne peut se poursuivre que par des phénomènes de transport et diffusion ionique d'oxygène ou du métal à travers l'oxyde. Le transport ionique est alors assuré soit par le champ électrique établi par la mise en équilibre des potentiels chimiques, soit sous l'effet d'un plasma.

Cabrera et Mott [Cab48] ont montré que l'effet du champ électrique dans les couches épaisses pouvait être négligé et que l'oxydation dans ce cas est contrôlée par la diffusion des différentes espèces en présence. Le flux de diffusion est proportionnel au gradient de concentration de l'espèce diffusante dans l'oxyde qui est inversement proportionnel à l'épaisseur de l'oxyde X . La loi de croissance de l'épaisseur de l'oxyde est alors parabolique, c'est à dire que X^2 varie linéairement avec le temps.

Lorsque l'épaisseur de la barrière est faible, c'est à dire dans le cas des barrières tunnel, le rôle du champ électrique devient prépondérant. Dans le cas de l'oxydation thermique, le champ électrique provient de l'égalisation des potentiels chimiques du métal et de l'oxygène adsorbé en surface. Pour des couches suffisamment minces, la différence de potentiel est maintenue par transfert d'électrons par effet tunnel ou émission thermoionique. Pour l'aluminium, cette différence de potentiel est de l'ordre du volt. Les champs électriques sont ainsi très importants, de l'ordre de 10^7 V/cm, permettant aux ions injectés dans l'oxyde d'être transportés rapidement à l'interface opposée. La vitesse d'oxydation est néanmoins limitée par la vitesse d'incorporation des ions dans l'oxyde. La réaction est donc très rapide au départ puis s'atténue progressivement lorsque l'épaisseur de l'oxyde augmente. Le phénomène d'oxydation est très sensible à la température et trois régimes de température peuvent être dégagés. En dessous d'une température critique, la réaction s'arrête à une certaine épaisseur X_L par auto-passivation. Si la température est supérieure à cette température critique, l'oxydation continue et la valeur du champ électrique diminue. On entre dans un régime où l'oxydation va être limitée par le transport des ions à travers l'oxyde. Quand l'épaisseur de l'oxyde augmente, l'égalisation des potentiels chimiques par effet tunnel ou émission thermoionique devient impossible et l'oxydation s'arrête. Pour finir, à plus haute température, la diffusion des espèces commence à gouverner le processus d'oxydation.

L'oxydation peut continuer en suivant une loi parabolique comme c'est le cas pour les couches d'oxyde épaisses.

Dans le cas de l'aluminium, les trois régimes successifs d'oxydation s'appliquent et donc le passage d'un régime à l'autre se fait si la température est suffisante. On passe ainsi d'un régime limité par l'extraction des cations métalliques à un régime limité par le transport à travers l'oxyde sous l'influence d'un champ électrique puis dans un régime de diffusion. Ainsi, à température ambiante, on observe la saturation d'un oxyde amorphe à des épaisseurs de l'ordre de 1 à 2nm pour un temps d'oxydation de quelques heures. En augmentant la température, l'oxydation continue et se poursuit en suivant une loi parabolique. Au niveau de la structure cristallographique, on passe progressivement d'un oxyde amorphe à un oxyde polycristallin. Malheureusement, les températures impliquées sont très élevées ($>300^{\circ}\text{C}$) et donc ne sont pas compatibles avec les systèmes multicouches à cause des effets d'interdiffusion.

Ainsi, l'oxydation thermique à température ambiante semble être un processus auto- limité à des épaisseurs de barrière fine. De plus, les résultats obtenus en utilisant cette technique d'oxydation sont peu reproductibles et évoluent dans le temps, les résistances des jonctions sont très faibles, typiquement $7\text{k}\Omega.\mu\text{m}^2$ pour une couche d'Al de 5.5nm oxydée 24h à l'air [Miazaki94].

En utilisant une oxydation *in-situ*, dans une atmosphère d'oxygène contrôlée [Tsu97], des résultats plus reproductibles ont été obtenus mais ils restent insatisfaisants. Les résistances de jonction atteignent $1.5\text{k}\Omega.\mu\text{m}^2$ et les magnétorésistances sont de l'ordre de 5%.

b) L'oxydation dans un plasma RF

Le plasma active les processus d'oxydation permettant d'obtenir des vitesses d'oxydation importantes sans trop chauffer l'échantillon. Les actions du plasma sont complexes.

En présence d'un plasma, les champs électriques à travers l'oxyde sont plus importants que ceux créés par l'équilibrage des potentiels chimiques. En plus, ces champs ne sont plus limités par l'épaisseur de la couche d'oxyde puisque l'apport des charges électriques est assuré par le plasma. Cela permet d'oxyder des épaisseurs importantes sans avoir à recourir à la diffusion activée thermiquement. Les processus de surface et particulièrement l'incorporation de l'oxygène dans l'oxyde sont aussi influencés par le plasma. Les électrons incidents activent la dissociation de l'oxygène moléculaire. La présence d'espèces énergétiques (ions, électrons) va permettre l'activation des réactions de surface.

Les conditions de l'oxydation plasma peuvent varier en fonction du type de plasma utilisé (DC, RF, micro-ondes), de la puissance, de la pression partielle d'oxygène et éventuellement d'argon.

Les barrières d'oxyde d'aluminium utilisées dans nos jonctions tunnel sont réalisées par oxydation d'une couche d'aluminium dans un plasma RF créé dans une atmosphère mixte oxygène/argon.

L'échantillon est placé dans un plasma RF Ar/O₂, réalisé en excitant par polarisation alternative RF le porte-substrat, et subit un bombardement d'ions énergétiques. A la surface de l'échantillon, il y a une compétition entre l'oxydation due à l'oxygène et la gravure liée à la présence d'argon. Si la vitesse de gravure de l'oxyde est supérieure à la vitesse d'oxydation du métal, la surface reste métallique. Dans le cas contraire, l'oxydation progresse jusqu'à ce que la vitesse d'oxydation qui décroît avec l'épaisseur de la couche d'oxyde formée devienne égale à la vitesse de gravure. On atteint alors un régime stationnaire où l'épaisseur d'oxyde reste constante mais l'épaisseur de la couche métallique diminue progressivement. Ce mécanisme est bien décrit par Greiner [Greiner71] et cette méthode est utilisée avec succès dans des autres groupes [NassarAPL98]. Plus des détails sur cette technique d'oxydation peuvent également être trouvés dans le travail de thèse de F. Montaigne [Montaigne99].

L'oxydation dans une décharge continue et dans un plasma réactif RF sont actuellement les techniques les plus utilisées pour obtenir d'une manière reproductible des jonctions tunnel magnétiques de bonne qualité.

D'autres techniques alternatives commencent à être utilisées de nos jours pour obtenir des barrières de bonne qualité et de très faible épaisseur. Parmi ces techniques, l'oxydation UV est utilisée comme alternative à l'oxydation thermique. Les photons permettent alors de transférer plus facilement des électrons du métal à la surface et ainsi de maintenir la différence de potentiel à travers l'oxyde et cela pour des épaisseurs plus importantes que celles accessibles par oxydation thermique normale.

L'oxydation par faisceaux d'ions a aussi commencé à être utilisée. Grâce à sa capacité de découpler complètement le plasma de l'échantillon, tous risques de contamination peuvent être évités et cette technique permet de sélectionner en énergie les espèces arrivant à la surface.

3.4. Caractérisation structurale

3.4.1. Propriétés cristallographiques des multicouches (XRD)

Les informations obtenues par diffraction de rayons X aux grands angles dans la géométrie $\theta/2\theta$ confirment le fait que les couches sont généralement polycristallines. Etant données les faibles épaisseurs des couches dans l'empilement multicouche et leur caractère polycristallin, les pics de Bragg enregistrés proviennent essentiellement du substrat de silicium (111), des différents silicures apparaissant à l'interface silicium/multicouche et de la couche de cuivre dont l'épaisseur est dix fois plus grande que celle des autres couches.

Afin d'optimiser les propriétés magnétiques et la rugosité des différentes couches, nous avons testé deux types de couches tampon : Cr(1.8nm)/Cu(30nm) et

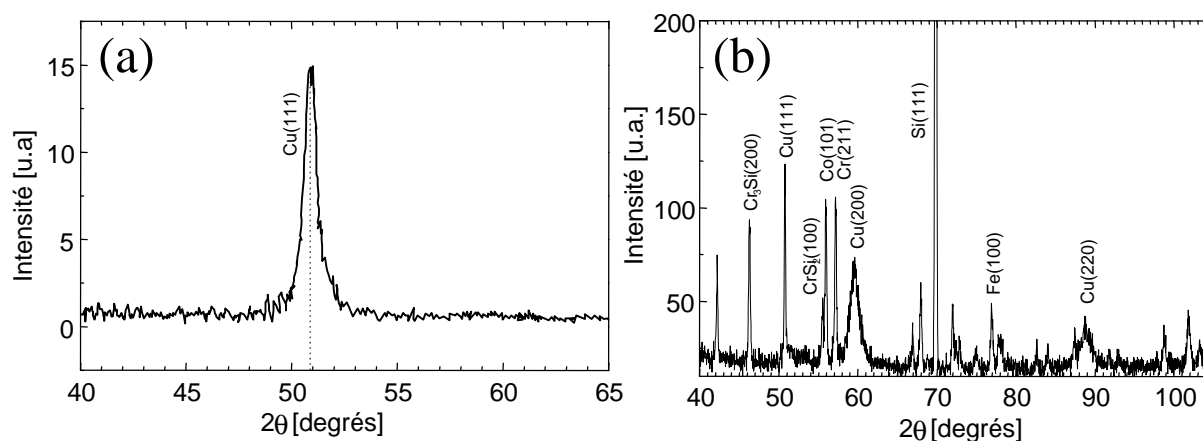


Figure 3.2. Spectres de diffraction de rayons X obtenus aux grands angles pour des empilements multicouches utilisant deux couches tampon différentes

(a) Si(111)/Cr(1.6nm)/Cu(30nm)/Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm)/Al(2nm)/Co(1nm)/Fe(6nm)/Cu(10nm)/Cr(5nm)

(b) Si(111)/Cr(1.6nm)/Fe(6nm)/Cu(30nm)/Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm)/Al(2nm)/Co(1nm)/Fe(6nm)/Cu(10nm)/Cr(5nm)

Cr(1.8nm)/Fe(6nm)/Cu(30nm).

Lorsqu'une couche tampon de Cr/Cu est utilisée, le seul pic de Bragg enregistré en dehors des pics du substrat est celui correspondant au Cu(111). Les autres pics des autres constituants de la multicouche ne sont pas résolus du bruit de fond ce qui montre le caractère polycristallin des autres couches ou bien un manque de signal lié à un temps d'acquisition trop court (figure

3.2 (a)). Le cuivre présente dans ce cas une texture (111) qui peut éventuellement induire une texture dans la séquence de la multicouche.

Dans l'empilement utilisant la seconde couche tampon composée d'une tri-couche Cr/Fe/Cu, une multitude de pics de Bragg, d'intensités équivalentes, se détachent du bruit de fond en dehors des pics du substrat et des pics du Cu (figure 3.2 (b)). Nous avons attribué ces pics à des silicules de Cr. Ici, le Cu est polytexturé, les pics de Bragg observables dans le spectre $\theta/2\theta$ correspondent aux orientations (111), (200) et (220). Dans le spectre, nous avons aussi localisé la position des pics de Bragg correspondant aux Co (101) et Fe (100).

Afin d'obtenir des diagrammes de diffraction de rayons X aussi différents, ces deux échantillons ont été réalisés en suivant des procédés d'élaboration différents dont les effets accentuent ceux liés à l'utilisation (ou non) d'une couche de Fe additionnelle.

Dans le cas de l'étude de la couche tampon sans Fe, la croissance du cuivre se fait sur une base de silice. En effet, après le nettoyage de la surface du Si (111) par gravure dans un plasma Ar, les multicouches sont déposées, échantillon par échantillon. Etant donnée la pression partielle d'eau dans le bâti, après le dépôt du premier échantillon, la surface de Si est à nouveau oxydée. Dans ces conditions de dépôt, le Cu tend à se déposer suivant ses plans denses, les plans (111). Dans le cas de l'utilisation de Fe dans la couche tampon, la couche de Cr a été déposée juste après le décapage de la surface de Si grâce à un plasma Ar. Dans ce cas, la surface du Si est à une température d'environ 80°C et le dépôt de Cr à sa surface entraîne la formation d'un silicule de Cr. Ce dernier protège très rapidement la surface du Si qui ne s'oxyde alors pas. Les silicules offrent alors une bonne base pour une croissance de très bonne qualité conduisant à des faibles rugosités en favorisant la croissance du Cu suivant différentes orientations.

A ce stade de l'étude de la couche tampon, il est difficile de dire quelles vont être ses couches constitutives. Le rôle fonctionnel de la couche tampon va être mis en évidence de manière précise dans les paragraphes suivants qui concernent les propriétés topographiques et magnétiques des différentes couches.

3.4.2. Propriétés topographiques des surfaces (AFM, TEM)

a) Analyse par la microscopie à force atomique (AFM)

Etant donnée la dépendance exponentielle du courant tunnel avec l'épaisseur d'une barrière tunnel, des fluctuations importantes du courant sont attendues à cause de faibles fluctuations d'épaisseur effective de la barrière. Ainsi, l'une des premières nécessités dans l'étude de jonctions métal/isolant/métal est de stabiliser des surfaces et des interfaces de faible rugosité. La rugosité maximale des interfaces métal/oxyde doit être inférieure à l'épaisseur de la couche d'oxyde, afin d'obtenir une barrière isolante continue. Au-delà de cette nécessité, il faut encore diminuer le plus possible les fluctuations de l'épaisseur de l'isolant, induites par la rugosité des interfaces.

De plus, dans les jonctions tunnel magnétiques, la réalisation du système antiferromagnétique artificiel (AAF) nécessite également des valeurs de rugosité très faibles. En effet, le couplage entre les deux couches magnétiques composant l'AAF est une fonction de l'épaisseur de la couche séparatrice non- magnétique [GrunbergPRL86], [BrunoPRB95], [ParkinPRL90]. En fonction de cette épaisseur, le couplage oscille entre un couplage ferromagnétique et antiferromagnétique. Des fluctuations suffisamment importantes de l'épaisseur de la couche non magnétique, induites par la rugosité, peuvent alors entraîner une distribution spatiale du couplage. Selon l'échelle des fluctuations, des régions couplées antiferromagnétiques, ferromagnétiques et/ou biquadratiques peuvent coexister. La réalisation d'un système antiferromagnétique artificiel de bonne qualité est donc pratiquement impossible sur une couche tampon rugueuse.

En conclusion, la rugosité des couches est un paramètre clé qu'il faut réduire au maximum afin d'améliorer les propriétés magnétiques et le transport tunnel dans les jonctions tunnel magnéto-résistives.

Topographie du substrat de Si (111)

Avant le dépôt d'une multicouche sur le substrat de Si (111), sa planéité est améliorée par un décapage de 30 minutes dans un plasma Ar . La rugosité RMS (rugosité quadratique moyenne) de la surface passe alors de 15 Å à 4 Å comme nous pouvons le constater sur les figures 3.3 (a) et (b). Les microscopies AFM et TEM nous indiquent également qu'à l'aide de

ce décapage, nous sommes en mesure de retirer la couche d'oxyde native qui se forme à la surface du Si et qui présente des piliers d'oxyde de hauteur approximativement égale à 5nm. Les images AFM en sections transverses montrent d'une manière claire l'amélioration de la qualité de la surface du silicium (111) après le décapage. Le temps de décapage a été fixé à 30 minutes suite à des tests de qualité de silicium par la microscopie AFM pour des temps de décapage compris entre 10-30 minutes.

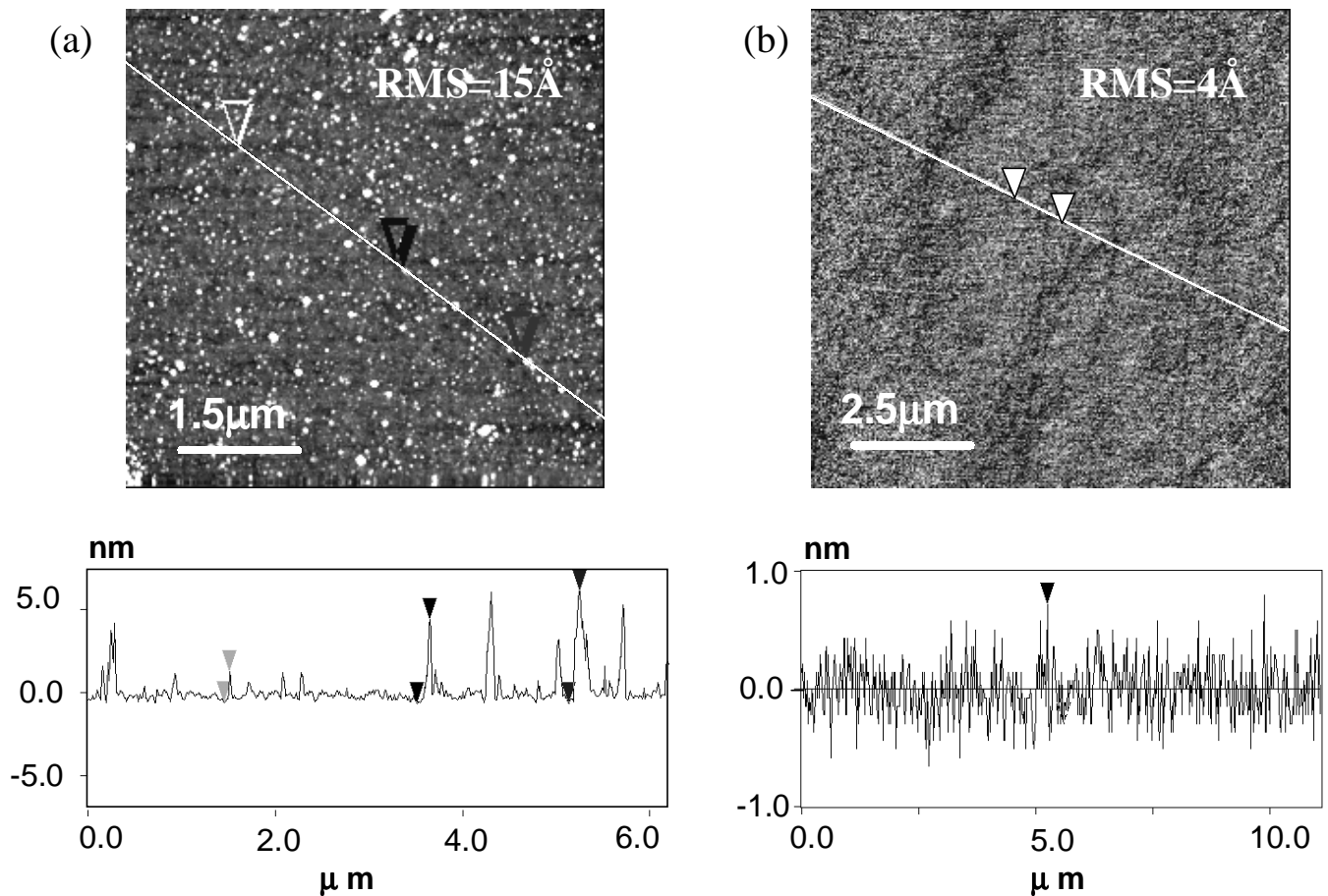


Figure 3.3. Images AFM en vue plane et section transverse du substrat de silicium (111)

(a) le substrat brut avant décapage par pulvérisation cathodique

(b) le substrat après 30 minutes de décapage par un plasma RF d'argon, juste avant le dépôt de la multicouche

Topographie de la couche tampon avec et sans Fe

A partir de la surface « propre » de silicium, nous déposons une couche tampon. Pendant le travail d'optimisation des propriétés structurales et magnétiques des multicouches, nous avons testé plusieurs configurations de couche tampon. Nous présentons dans la figure 3.4 des résultats de microscopie AFM obtenus sur deux types de couches tampon testés pour

l'amélioration de la qualité des empilements multicouches pour les jonctions magnétiques. Les meilleurs caractéristiques topographiques ont été obtenus pour une couche tampon contenant une couche de Fe : Cr(1.6nm)/Fe(6nm)/Cu(30nm).

En comparaison avec une couche tampon Cr(1.6nm)/ Cu(30nm), l'adjonction de Fe entraîne une réduction de la rugosité de 4.9 Å RMS à 1.3 Å RMS.

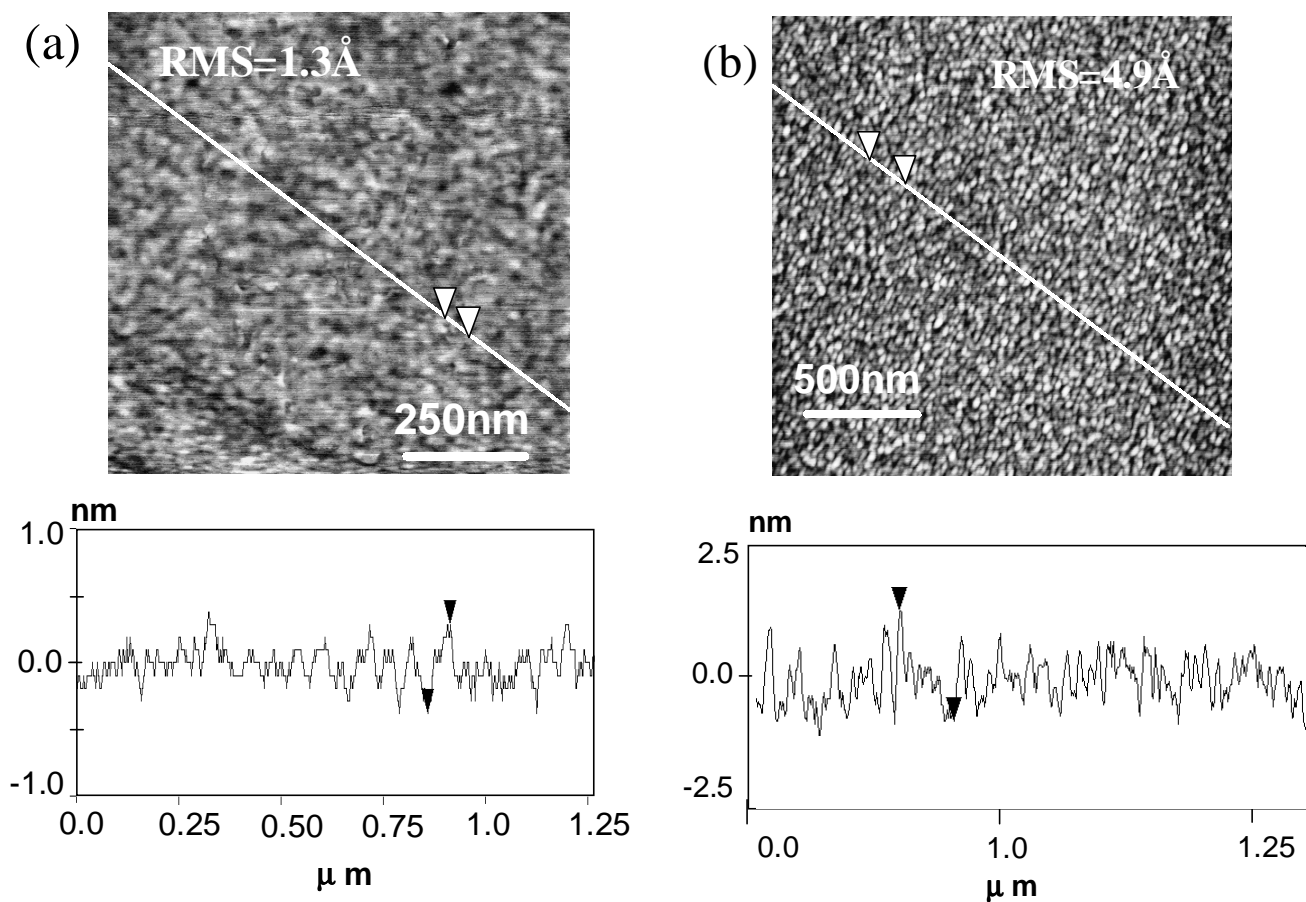


Figure 3.4. Images AFM en vue plane et section transverse des surfaces des couches tampon : (a) Si(111)/Cr(1.6nm)/Fe(6nm)/Cu(30nm) et (b) Si(111)/Cr(1.6nm)/ Cu(30nm)

La rugosité de la couche tampon augmente avec l'épaisseur de Cu. Néanmoins, l'utilisation d'une épaisseur d'environ 30 nm de Cu est nécessaire. En effet, dans la JTM cette couche va constituer l'électrode inférieure de la JTM dont la résistance électrique doit être faible en comparaison avec celle de la jonction tunnel. D'autre part la rugosité de la couche tampon décroît avec l'augmentation de l'épaisseur de Fe de la couche tampon. Cependant, cette couche de Fe donne une contribution d'aimantation supplémentaire dans les cycles d'aimantation, rendant leur interprétation difficile. Nous avons alors volontairement limité son

épaisseur. Un bon compromis a été trouvé en utilisant la configuration Cr(1.6nm)/Fe(6nm)/Cu(30nm).

Topographie des différentes couches sur la couche tampon optimisée Cr/Fe/Cu

Dans ce paragraphe du manuscrit, nous donnons quelques informations concernant la rugosité des surfaces libres de dépôts qui ont été réalisés sur la couche tampon optimisée. En effet, il faut s'assurer que dans la succession des couches, la faible rugosité de la couche tampon est conservée ou légèrement augmentée. C'est une faible rugosité de la surface de l'AAF qui permettra d'obtenir une barrière tunnel peu rugueuse et donc une distribution spatiale du courant tunnel très étroite.

L'analyse par la microscopie AFM en vue plane et en section transverse (figure 3.5) montre que la rugosité de surface après le dépôt de l'AAF reste faible avec des valeurs de rugosité RMS de 1.4 Å mesurées sur des AAFs Co/Ru/Co. Des rugosités de même ordre de grandeur ont été mesurées sur les AAFs Co/Ru/CoFe. Seule une augmentation de 0.1 Å RMS a pu être observée.

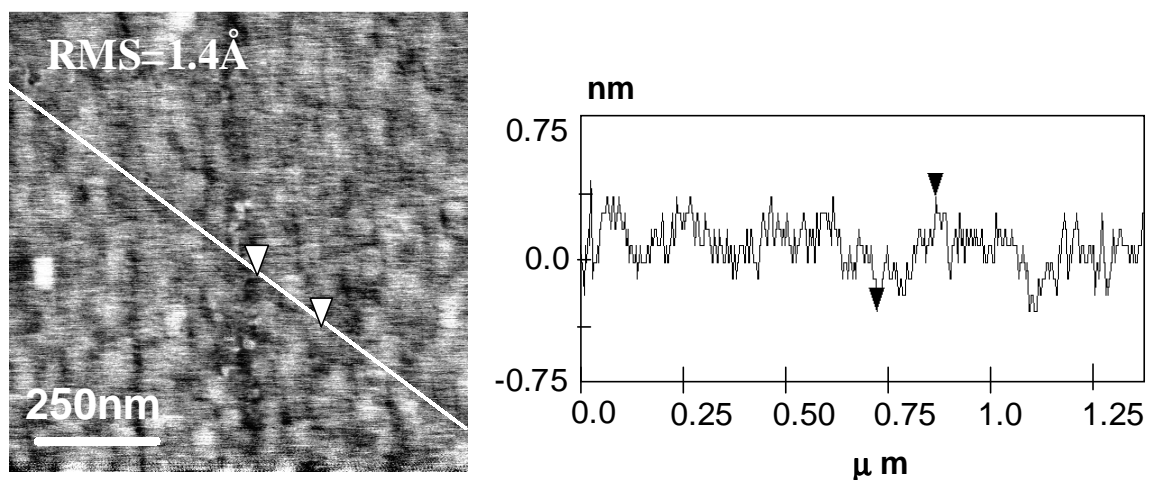


Figure 3.5. Images AFM en vue plane et section transverse de la surface de l'AAF : Si(111)/Cr(1.6nm)/Fe(6nm)/Cu(30nm)/Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm)

Une faible rugosité de surface est conservée après le dépôt de la barrière isolante. Des rugosités ayant des valeurs RMS de 1.9 Å, respectivement 1.7 Å, ont été mesurées sur les surfaces supérieures d'oxydes empilés sur des AAF Co/Ru/Co, respectivement Co/Ru/CoFe (figure 3.6).

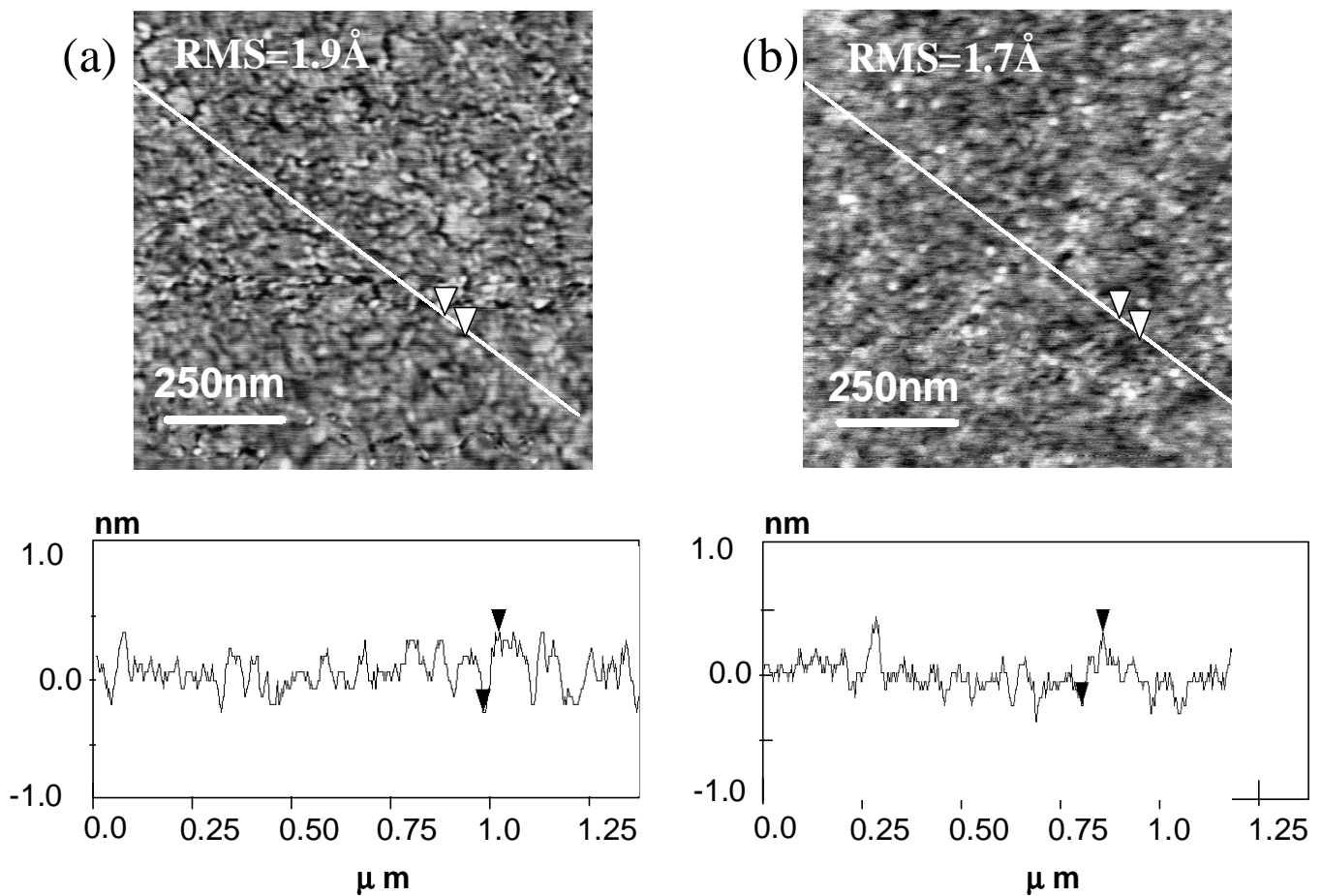


Figure 3.6. Images AFM en vue plane et section transverse des surfaces supérieures de l'oxyde d'aluminium Al_2O_3 dans les empilements multicouches des JTMs utilisant les deux types d'AAF (a) $\text{Co}(1.8\text{nm})/\text{Ru}(0.7\text{nm})/\text{Co}(3\text{nm})$ et (b) $\text{Co}(2\text{nm})/\text{Ru}(0.8\text{nm})/\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}(3\text{nm})$

L'optimisation de la planéité des surfaces des différentes couches constitutives de la jonction tunnel a été une étape importante de ce travail de thèse. Tous les paramètres pouvant modifier l'énergie et la mobilité des atomes métalliques à la surface de l'échantillon jouent un rôle essentiel sur les valeurs des rugosités et la microstructure des couches déposées. Afin de parvenir à des dépôts de cette qualité, nous avons ajusté lors des dépôts par la pulvérisation cathodique la puissance RF ou le courant DC des magnétons, la pression d'argon dans le bâti pendant le dépôt, la température du substrat et les temps de dépôt de chaque couche. Durant les différentes étapes d'optimisation des propriétés structurales, des essais de dépôt à basse température ($T=70\text{K}$) ont également été réalisés mais sans grand succès à cause des difficultés liées à des problèmes de mouillage et d'adhésion du dépôt.

De toute façon, l'accent a été porté sur l'optimisation de conditions de croissance des jonctions magnétiques tunnel à température ambiante pour faciliter le transfert technologique à une échelle industrielle.

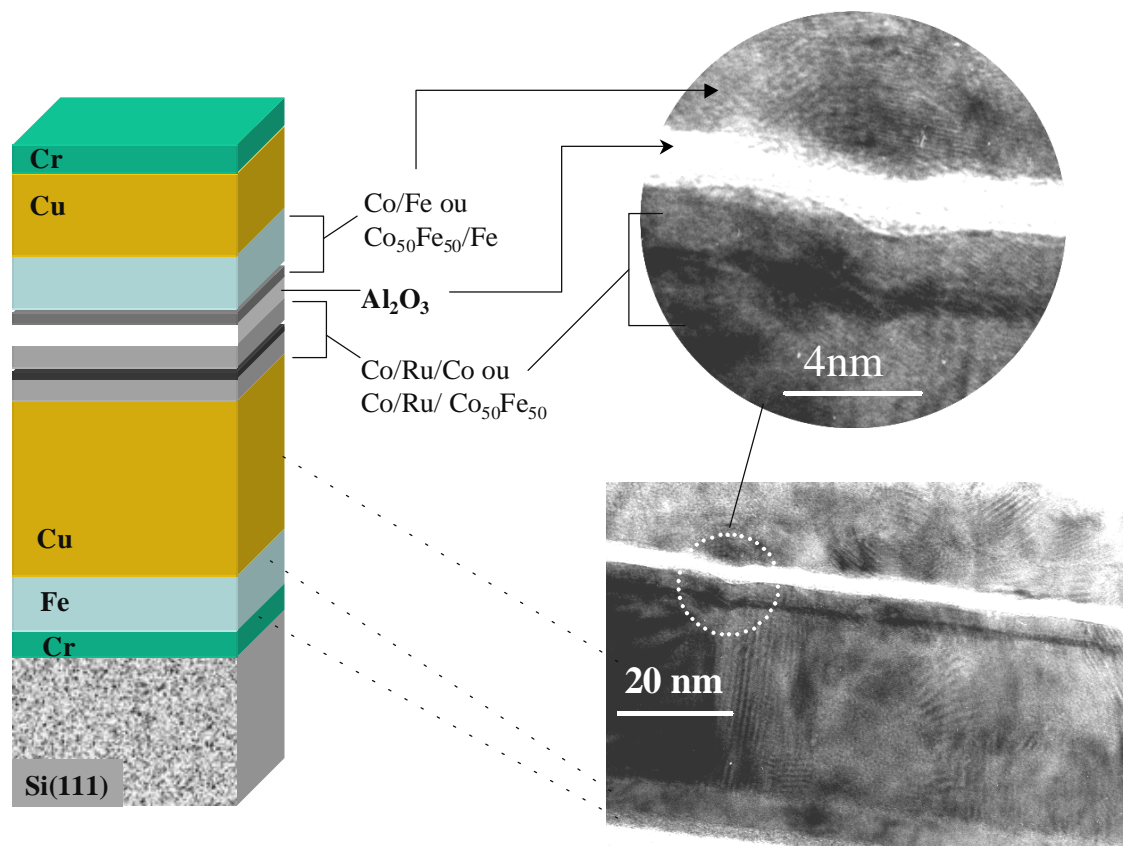


Figure 3.7 Image de microscopie MET en section transverse de l'empilement multicouches. Le zoom montre les corrélations des interfaces supérieure et inférieure de la barrière.

b) Analyse des interfaces par microscopie électronique en transmission (MET)

Afin d'analyser la qualité des interfaces dans l'empilement multicouche, nous avons utilisé la microscopie électronique en transmission. Des images de sections transverses contenant l'ensemble des couches d'une structure de jonction tunnel magnétique ont été prises à différents endroits de l'échantillon. Comme nous allons le voir, ces images corroborent l'analyse de la qualité topographique de la barrière isolante réalisée à l'aide de l'AFM. Sur chaque image, nous avons vérifié la continuité de la couche isolante et la corrélation des rugosités des interfaces supérieure et inférieure de la barrière tunnel. Lorsque les deux interfaces sont corrélées, les maxima, respectivement aux minima, de rugosité de l'interface inférieure correspondent aux maxima, respectivement les minima, de rugosité de l'interface supérieure. Ainsi, même si les interfaces présentent une rugosité, les fluctuations de

l'épaisseur de la couche d'oxyde sont beaucoup plus petites. La corrélation des rugosités des interfaces est donc un paramètre très important.

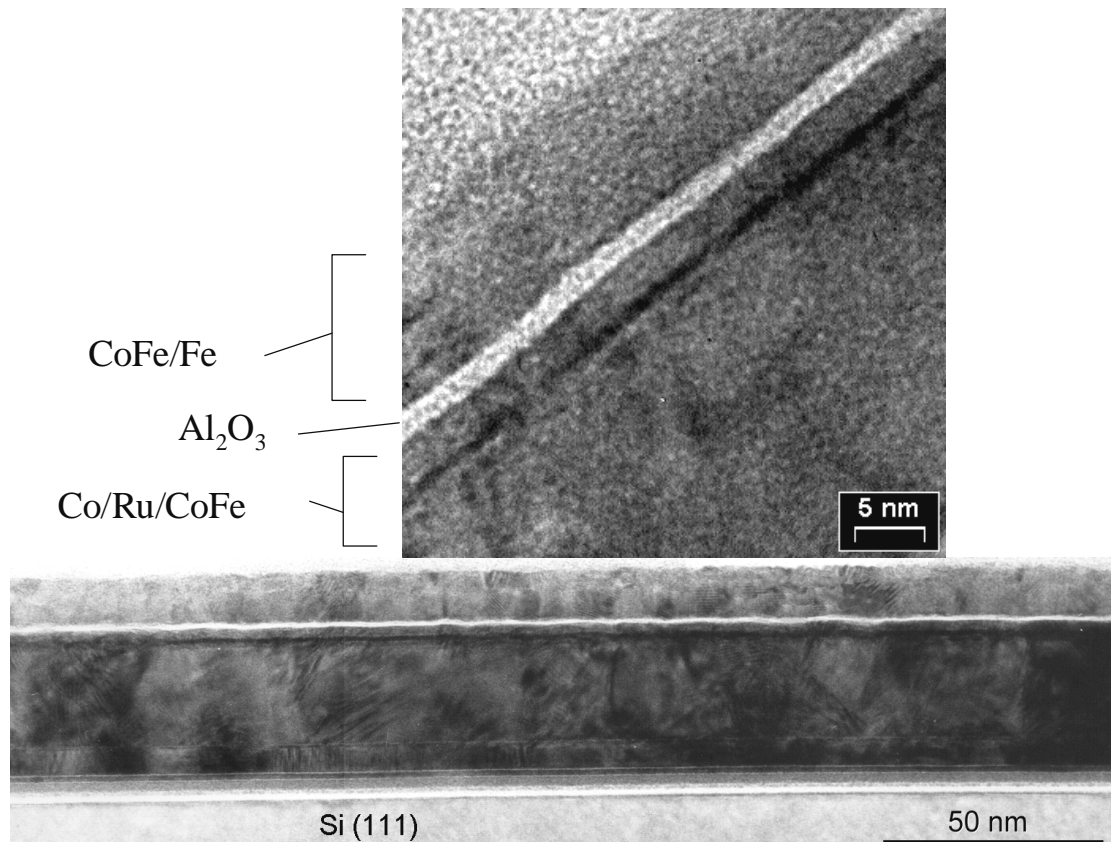


Figure 3.8. Image de microscopie MET d'un empilement JTM. L'image montre la continuité de la couche isolante sur une échelle de quelques centaines de nm. Le zoom, sur une échelle nanométrique, montre la haute qualité de la topographie de la barrière d'oxyde.

- Grâce à la technique d'oxydation plasma RF utilisée dans le cadre de ce travail de thèse, nous sommes en mesure d'obtenir des couches d'oxyde d'aluminium continues de très bonne qualité, avec des épaisseurs comprises entre 8Å et 20Å (figure 3.7). Dans la figure 3.8. la continuité d'une couche d'oxyde de très bonne qualité topographique, sur une distance de quelques centaines de nanomètres, est démontrée.

- Dans nos échantillons, les rugosités des interfaces métal/oxyde supérieure et inférieure sont toujours bien corrélées (figure 3.7 (zoom) et figure 3.8 (zoom)). Ces barrières nous permettent donc de construire et d'étudier des jonctions tunnel de très bonne qualité pour le transport électronique dépendant du spin. Les propriétés magnétorésistives des jonctions à température ambiante feront l'objet d'un chapitre complet de ce manuscrit.

3.4.3. Propriétés chimiques de la barrière tunnel (XPS)

Optimisation du temps d'oxydation

Comme nous l'avons déjà mentionné, il est essentiel que le temps d'oxydation soit adapté à l'épaisseur d'aluminium déposée, afin d'obtenir une interface métal magnétique/alumine et non une interface métal magnétique/métal magnétique oxydé/alumine (la situation de la sur-oxydation) ou métal magnétique/aluminium/alumine (la situation de la sous-oxydation).

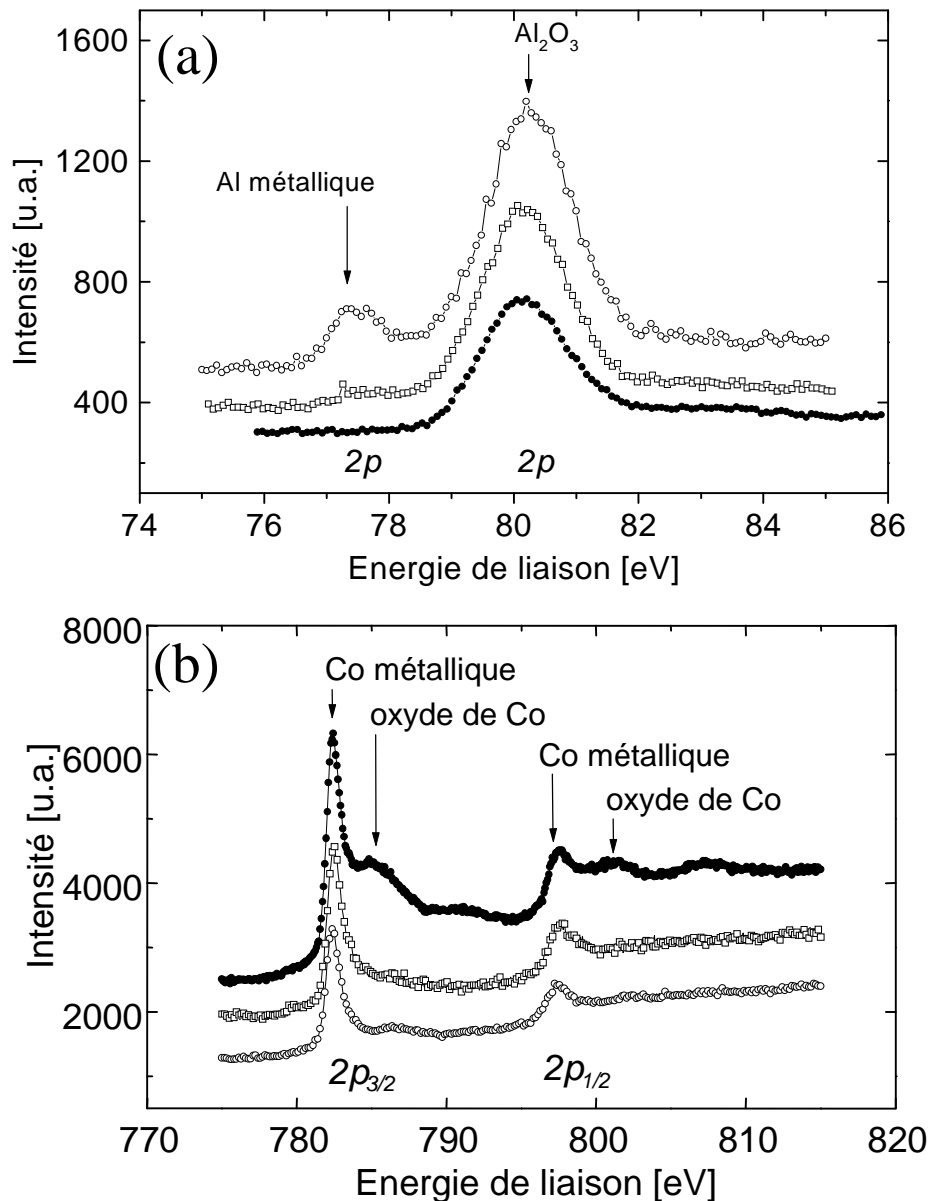


Figure 3.9. Spectres XPS autour du pic $2p$ de l'Al (a), respectivement des pics $2p_{1/2}$ et $2p_{3/2}$ du Co (b). Les spectres sont enregistrés sur des échantillons oxydés dans un plasma RF Ar/O₂ pendant 1 minute ayant différentes épaisseurs d'Al:

(--•---) : 7.5 Å ; (-- --) : 15 Å ; (--o--) 25 Å

La technique utilisée afin d'optimiser le temps d'oxydation est la suivante. Pour des raisons pratiques, nous avons utilisé le même temps d'oxydation pour une série d'échantillons dans laquelle on a modifié l'épaisseur de l'aluminium métallique empilé sur le système magnétiquement dure dans la configuration d'une JTM. Ainsi, pour un temps d'oxydation donné certains échantillons dont l'épaisseur d'aluminium est très faible vont être sur- oxydés et en conséquence le métal magnétique en dessous de la couche d'Al va être attaqué par l'oxygène. D'autres échantillons dont l'épaisseur d'aluminium est trop grande vont être sous- oxydés et en conséquence de l'aluminium métallique non- attaqué par l'oxygène est conservé. Dans l'échantillon dont épaisseur d'aluminium est optimale pour ce temps d'oxydation, l'aluminium métallique est entièrement oxydé et le métal magnétique de dessous n'est pas attaqué par l'oxygène. En utilisant un échantillonnage suffisant en épaisseur d'aluminium métallique, la méthode donne de bons résultats.

L'analyse de grande sensibilité de la présence des différents spécimens chimiques : alumine, aluminium métallique, métal magnétique pur, métal magnétique oxydé se fait par Spectroscopie X de photo- émission d'Electrons (XPS).

Nous présentons ici un exemple d'analyse XPS, effectuée sur une série d'échantillons, dont nous présentons que les résultats les plus représentatifs . Ces échantillons ont des épaisseurs d'aluminium métallique égales à: 25 Å, 15 Å et 7.5 Å. Tous les échantillons sont oxydés pendant 1 minute dans un plasma RF O₂/Ar. Dans la figure 3.9 nous montrons des fragments de spectres XPS autour des pics 2p de l'Al, 2p_{1/2} et 2p_{3/2} du Co. Les spectres montrent d'une manière claire le fait que dans l'échantillon Al 25 Å, après 1 minute d'oxydation, il reste de l'Al métallique non- oxydé alors que dans l'échantillon d'épaisseur d'Al la plus faible (7.5.Å) l'aluminium métallique est complètement oxydé et la couche de Co en dessous est également attaquée par l'oxygène. Ce fait est confirmé par l'apparition des pics 2p_{1/2} et 2p_{3/2} de l'oxyde de Co. Dans cet exemple, l'épaisseur optimale d'Al métallique pour un temps d'oxydation de 1 minute est autour de 15 Å. Pour cette épaisseur, l'aluminium métallique est complètement oxydé sans affecter la couche de Co du dessous.

Pour obtenir des barrières d'oxyde d'épaisseurs variables, nous avons également utilisé une autre technique afin d'optimiser les épaisseurs d'aluminium pour différents temps d'oxydation fixés. Cette méthode est plus rapide et plus accessible que l'analyse par XPS.

Elle consiste à effectuer des mesures magnétiques sur le système antiferromagnétique artificiel pour des échantillons dont l'épaisseur d'aluminium est variable. La méthode utilise la sensibilité extrême des propriétés magnétiques de l'AAF aux fluctuations d'épaisseurs de ses couches magnétiques. Une oxydation d'une partie de la couche supérieure de l'AAF, en contact avec l'aluminium qui est sur- oxydé, se traduit par une perte du moment magnétique de cette couche. Cette perte de moment entraîne des modifications visibles dans les cycles d'aimantation.

Ainsi, par des mesures magnétiques, nous pouvons détecter directement les effets de la sur-oxydation et trouver l'épaisseur optimale d'aluminium pour des temps d'oxydation différents. Par rapport aux mesures de spectroscopie XPS, cette méthode est plus rapide mais moins précise et plus indirecte. De plus cette analyse magnétique ne quantifie pas les effets de la sous- oxydation, lorsqu'une partie de l'aluminium reste non -oxydée.

3.5. Conclusion du chapitre 3

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à la croissance et aux propriétés structurales et topographiques des multicouches composant les futures jonctions tunnel magnétiques.

Dans une première partie, nous avons présenté la structure de la multicouche à l'aide de laquelle sont réalisées les jonctions tunnel magnétiques à base de systèmes antiferromagnétiques artificiels. Ensuite, nous avons décrit la fabrication de ces empilements et notamment la croissance des couches par pulvérisation cathodique et la réalisation de la barrière tunnel par oxydation dans un plasma RF d'une couche métallique pré-déposée.

Dans la seconde partie du chapitre, nous avons présenté des résultats issus de la caractérisation structurale et topographique des empilements multicouches des jonctions tunnel magnétiques.

- l'analyse par microscopie à force atomique à chaque étape de la croissance, à partir du substrat de Si(111) jusqu'après la barrière d'oxyde, nous a permis de montrer le rôle fonctionnel de la couche tampon sur la rugosité des différentes couches empilées. L'analyse des images de microscopie électronique en transmission en section transverse nous a permis de montrer la continuité de la couche d'oxyde sur une échelle nanométrique.
- l'analyse des propriétés chimiques de la couche d'oxyde, nous a permis d'optimiser le temps d'oxydation pour éviter une sur- ou une sous- oxydation de la couche d'aluminium préalablement déposée.

Les propriétés structurales et topographiques des différentes couches de l'empilement multicouches ont un impact direct sur les propriétés magnétiques de l'ensemble. Dans le chapitre suivant, nous présentons les propriétés magnétiques de ces empilements à une échelle macroscopique et microscopique.

Références du chapitre 3

[Bee96]

R. S. Beech, J. Anderson, J. Daughton, B. A. Everit, D. Wang, *IEEE Trans. Magn.* **32** (5), 4713, (1996)

[BrunoPRB95]

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

[Gallagher97]

W. J. Gallagher, S.S.P. Parkin, Y. Lu, X.P. Bian, A. Marley, K.P. Roche, R.A. Altman, S. A. Rishton, C. Jahnes, T. M. Shaw, G. Xiao, *J. Appl. Phys.* **81**, 3741, (1997)

[Greiner71]

J. H. Greiner, *J. Appl. Phys.* **42** (12), 5151, (1971)

[GrunbergPRL96]

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

[Maekawa82]

S. Maekawa, U. Gafvert, *IEEE Trans. Magn.* **18**, 707, (1982)

[Meservey84]

R. Meservey, P.M. Tedrow, *Phys. Rep.* **238**, 173, (1984)

[Miyazaki94]

T. Miyazaki and N. Tezuka, *J. Magn. Magn. Mater.* **139**, L231, (1994)

[Montaigne99]

F. Montaigne, Thèse de l'Université Paris VII, (1999)

[Moodera82]

J. S. Moodera, R. Meservey, P. M. Tedrow, *Appl. Phys. Lett.* **41** (5), 488, (1982)

[Moodera95]

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

[NassarAPL98]

J. Nassar, M. Hehn, A. Vaurès, F. Petroff, A. Fert, *Appl. Phys. Lett.* **73** (5), 698, (1988)

[ParkinPRL90]

S.S.P. Parkin, N. More, K. P. Roche, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2304, (1990)

[Pla97]

T. S. Plaskett, P.P. Freitas, J.J. Sun, R.C Sousa, F.F. da Silva, T.T.P. Galvao, N. M. Pinho, S. Cardoso, M. F. da Silva, J.C. Soares, *Mat. Res. Soc. Proc.*, **475**, 469, (1997)

[Tsuge97]

H. Tsuge, T. Mitsuzuka, *Appl. Phys. Lett.* **71** (22), 3296, (1997)

Chapitre 4

Propriétés magnétiques des jonctions tunnel magnétorésistives, à l'échelle macroscopique et microscopique

4.1. Magnétisme à l'échelle macroscopique

L'utilisation d'un système antiferromagnétique artificiel (AAF), comme sous-système magnétique dur dans les jonctions tunnel magnétiques, nécessite la compréhension de ses propriétés magnétiques sous champ. Cette nécessité est justifiée par la grande sensibilité du transport tunnel polarisé en spin à l'évolution sous champ magnétique des phases magnétiques dans les couches de la JTM en contact avec la barrière. Autrement dit, la qualité de la réponse magnétorésistive d'une JTM passe par l'optimisation des caractéristiques magnétiques de ses électrodes.

Le système AAF est constitué de deux couches magnétiques, séparées par une couche non-magnétique, couplées antiferromagnétiquement par une interaction de type RKKY (i.e. voir le modèle Bruno- Chappert [Bruno91], [Bruno92]). D'une manière générale, ce couplage peut être ferromagnétique (F) ou antiferromagnétique (AF) suivant l'épaisseur de la couche séparatrice. En fait, l'intensité du couplage oscille et décroît en fonction de l'épaisseur de la couche séparatrice, passant alternativement d'un couplage F à un couplage AF [Parkin90].

Dans une configuration d'aimantation antiparallèle symétrique, c'est à dire lorsque les moments magnétiques des deux couches couplées sont égaux, le moment magnétique net du système est nul. Le système forme alors un matériau *antiferromagnétique artificiel*.

Dans une configuration d'aimantation antiparallèle asymétrique, c'est à dire lorsque les deux couches magnétiques ont des moments magnétiques différents, le système forme un matériau *ferrimagnétique artificiel*. Dans ce cas, le système présente un moment magnétique net non nul, plus faible que le moment net de l'une de ses couches. De plus, grâce au couplage antiferromagnétique, la stabilité magnétique d'un système AAF dans un champ extérieur est

augmentée par rapport à celle des couches individuelles dont il est composé. Par conséquent, ce système est un candidat idéal comme sous-système magnétiquement rigide dans une jonction tunnel magnétique.

4.1.1. Fonctionnement d'un système antiferromagnétique artificiel

Les propriétés magnétiques et le fonctionnement d'un système AAF sont *totalemment* contrôlés par les paramètres clefs suivants:

- les *propriétés magnétiques* des couches magnétiques individuelles dont l'AAF est constitué.
- le *couplage AF* entre les deux couches magnétiques.

Le mécanisme de fonctionnement d'un système AAF peut être expliqué en première approximation à l'aide d'une simulation de cycle d'aimantation. Dans un modèle monodomaine, c'est à dire lorsque les couches magnétiques sont constituées d'un moment magnétique unique « géant », la fonctionnelle d'énergie totale E s'écrit de manière simple et est donnée par l'équation (4.1). Les notations utilisées dans cette équation sont les suivantes : M_1 , M_2 sont les aimantations (moments magnétiques par unité de volume) des deux couches magnétiques de l'AAF d'épaisseurs respectives t_1 et t_2 . Etant données que les épaisseurs des couches magnétiques sont fines, les moments des différentes couches restent dans le plan du film. θ_1 et θ_2 donnent alors l'orientation angulaire de ses moments magnétiques par rapport à la direction du champ appliqué. Dans l'équation (4.1), les deux premiers termes contiennent les anisotropies planaires supposées uniaxiales K_1 respectivement K_2 par unité de volume des couches magnétiques. Le troisième et quatrième termes caractérisent le couplage inter-couche, J_{AF} est l'intensité du couplage bilinéaire antiferromagnétique et J_{BQ} est l'intensité du couplage biquadratique. Enfin, le dernier terme contient l'énergie de Zeeman de chaque couche magnétique dans le champ magnétique H .

$$E = K_1 t_1 \sin^2 \theta_1 + K_2 t_2 \sin^2 \theta_2 - J_{AF} \cos(\theta_1 - \theta_2) - J_{BQ} \cos^2(\theta_1 - \theta_2) - H[M_1 t_1 \cos \theta_1 + M_2 t_2 \cos \theta_2] \quad (4.1)$$

Par une minimisation numérique de la fonctionnelle d'énergie par rapport aux angles θ_1 et θ_2 , nous avons calculé les variations des angles $\theta_1 = \theta_1(H)$ et $\theta_2 = \theta_2(H)$ avec le champ appliqué et par conséquent le cycle d'aimantation global de l'AAF.

Le résultat d'une telle simulation numérique est représenté dans la figure 4.1, en fixant des valeurs pour $K_1 = K_2$, J_{AF} , J_{BQ} , t_1 , t_2 , $M_1 = M_2$, proches de celles imposées et déduites de l'expérimentation. Ces paramètres sont respectivement égaux à $t_1 = 3\text{nm}$, $t_2 = 1.8\text{nm}$, $J_{AF} = -1.1\text{ erg/cm}^2$, $J_{BQ} = 0$, $K_1 = K_2 = 0.1 \cdot 10^6\text{ erg/cm}^3$ et $M_1 = M_2 = 1430\text{ emu/cm}^3$. Ce résultat nous donne le cycle d'aimantation d'un système AAF asymétrique ($t_1 > t_2$), dans le modèle idéal monodomaine.

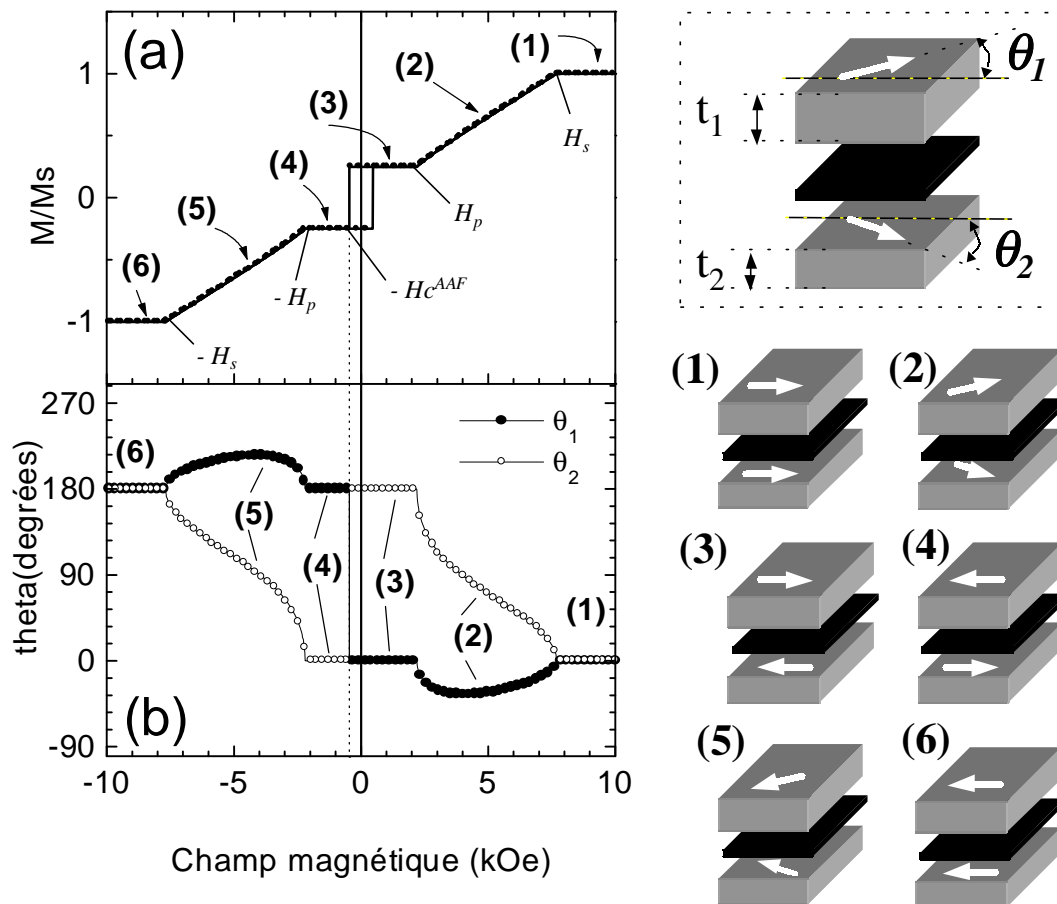


Figure 4.1. Calcul théorique, dans un modèle analytique monodomaine, pour l'évolution magnétique d'un AAF sous champ magnétique. (a) Cycle d'aimantation M-H. (b) Evolution des angles des aimantations dans chaque couche de l'AAF par rapport à la direction du champ magnétique appliqué. Schéma : Les états (1)-(6) représentent les configurations de base d'un AAF soumis à un champ magnétique extérieur. Dans chaque dessin, la flèche du haut représente l'aimantation de la couche épaisse et la flèche du bas celle de la couche fine.

Du champ de saturation, H_s , au champ de plateau H_p

D'après la figure 4.1, pour des champs magnétiques suffisamment intenses ($H > H_s$), l'AAF est saturé. Ses deux couches magnétiques sont alors parallèles et orientées dans la direction et le sens du champ appliqué H (figure 4.1 (a), (b), état (1)).

A partir de la saturation et en diminuant l'intensité du champ magnétique appliqué en dessous de H_s , les moments magnétiques des deux couches magnétiques tournent afin de stabiliser une configuration antiparallèle sous l'effet du couplage AF (figure 4.1., état (2)). La configuration antiparallèle est stabilisée pour un champ appliqué H_p . Le mode de retournement des aimantations dans le flanc du cycle d'aimantation situé entre H_s et H_p peut être visualisé clairement dans la figure 4.1 (b), qui représente les variations des angles $\theta_1 = \theta_1(H)$ et $\theta_2 = \theta_2(H)$.

Dans la couche épaisse, d'épaisseur t_1 ($t_1 > t_2$), le moment magnétique tourne dans un premier temps progressivement jusqu'à une déflexion maximale $|\theta_1^{max}|$ et dans un second temps, lorsque H se rapproche de H_p , le moment magnétique se réoriente selon la direction et le sens du champ magnétique appliqué. La valeur de $|\theta_1^{max}|$ dépend des paramètres de l'AAF (Q , J_{AF} etc....) et est inférieur à 45° pour les paramètres utilisés lors de la simulation et donc dans les échantillons étudiés au courant de cette thèse.

Dans la même gamme de champ magnétique, le moment magnétique de la couche fine, d'épaisseur t_2 , va progressivement s'orienter antiparallèlement par rapport au moment magnétique de la couche épaisse, entraîné par le couplage AF.

Pour les champs compris entre $+H_p$ et $-H_p$

Lorsque $|H| < H_p$, l'énergie de couplage AF inter-couche est plus grande que la somme des énergies Zeeman et d'anisotropie, les deux couches magnétiques de l'AAF restent alors dans une configuration antiparallèle. Ainsi, pour $-H_p < H < H_p$, l'AAF asymétrique se comporte comme une couche magnétique unique de moment net $m_1 - m_2$, où m_1 et m_2 sont les moments magnétiques des deux couches magnétiques de l'AAF. En effet, dans un champ magnétique positif et après saturation positive, le moment net reste aligné dans la direction et le sens du champ positif (figure 4.1, état (3)). En renversant le sens du champ appliqué, qui devient alors négatif, cette configuration est préservée jusqu'à une valeur du champ $H = -H_c^{AAF}$ où le moment net de l'AAF se renverse pour redevenir parallèle avec le champ appliqué sous l'effet de l'interaction de Zeeman.

Du champ de plateau $-H_p$ au champ de saturation négatif $-H_s$

La configuration antiparallèle des moments magnétiques est cependant conservée et cela jusqu'au champ $H = -H_p$ où l'évolution de $\theta_1 = \theta_1(H)$ et $\theta_2 = \theta_2(H)$ symétrique de celle décrite dans le paragraphe précédent.

Mécanisme de coercivité dans les systèmes AAF

De manière générale, les mécanismes à l'origine de la coercivité des matériaux magnétiques sont assez complexes et la fonctionnelle d'énergie de l'équation (4.1) ne permet pas de déterminer le champ coercitif de l'AAF. Dans la simulation numérique présentée figure 4.1, un axe d'anisotropie « fictif » a été rajouté pour obtenir une valeur raisonnable de coercivité. En réalité, la rigidité magnétique d'un système AAF est augmentée par rapport à celle d'une couche unique dont il est composé. Cette augmentation est directement liée à l'augmentation de l'anisotropie effective des couches par le couplage antiferromagnétique inter-couche, à la réduction du moment magnétique total du système des deux couches, $M = m_1 - m_2$, et à l'augmentation de la friction [Berg IEEE96], [BergJMMM97]. Cette dernière caractérise la résistance qu'oppose un matériau magnétique à la rotation de son aimantation. Plus le volume du matériau est grand, plus la friction est grande.

Lorsque les moments magnétiques de l'AAF sont dans une configuration antiferromagnétique et que le couplage inter-couche est fort, la friction totale qu'oppose l'AAF à la rotation de son aimantation nette est la somme des frictions qu'oppose chaque couche à la rotation de sa propre aimantation, pondérées par leur épaisseur. Si τ_1^{fr} et τ_2^{fr} représentent les densités volumiques de couple frictionnel des deux couches magnétiques, la friction totale par unité de surface est égale à :

$$T^{\text{fr}} \sim t_1 \tau_1^{\text{fr}} + t_2 \tau_2^{\text{fr}} \quad (4.2)$$

Les densités volumiques de couple frictionnel sont eux mêmes proportionnels au produit de l'aimantation du matériau et de la rigidité des couches uniques. Ainsi, l'équation (4.2) devient :

$$T^{\text{fr}} \sim (t_1 M_1 + t_2 M_2) H_c^{\text{unique}},$$

si l'on considère que les champs coercitifs des couches de l'AAF sont indépendants de leur épaisseur.

Alors que la friction totale est proportionnelle à l'épaisseur totale des couches magnétiques, le champ magnétique induit un couple sur un moment magnétique total réduit, égal à la différence des moments des deux couches. En somme, un AAF présente une rigidité à la rotation supérieure à celle d'une couche unique et une sensibilité au champ magnétique

inférieure. Le moment magnétique résultant de l'AAF tournera lorsque les couples se compenseront c'est à dire lorsque

$$(t_1 M_1 - t_2 M_2) H_c^{AAF} = (t_1 M_1 + t_2 M_2) H_c^{unique}$$

Dans un système AAF, le champ coercitif d'une couche est unique est donc « amplifié » par un facteur Q,

$$Q = (M_1 t_1 + M_2 t_2) / (M_1 t_1 - M_2 t_2) = (m_1 + m_2) / (m_1 - m_2) \quad (4.3)$$

contenant les effets d'augmentation de la friction et de la stabilité des parois.

Il vient alors que:

$$H_c^{AAF} = Q H_c^{couche\ unique} \quad (4.4)$$

Dans ce modèle, les champs de saturation et de plateau sont donnés par [Berg IEEE96] :

$$H_s = J (t_1 M_1 + t_2 M_2) / (t_1 M_1 t_2 M_2) \quad (4.5)$$

et

$$H_p = H_s / Q. \quad (4.6)$$

Pour une intensité du couplage donnée qui est fixée par l'épaisseur de la couche séparatrice non- magnétique, nous pouvons ajuster la rigidité magnétique de l'AAF en faisant varier les épaisseurs de ses couches magnétiques.

Utilisation de l'AAF comme système magnétique rigide pour des champs inférieurs à |Hp|

En utilisant comme base de travail un modèle monodomaine, nous avons pu analyser et comprendre les aspects qualitatifs principaux et les facteurs clefs du fonctionnement de l'AAF. L'utilisation de l'AAF comme couche magnétique rigide pour les JTMs peut se faire dans la fenêtre en champ où l'AAF se comporte comme un bloc de moment net réduit $m_1 - m_2$. Dans ce cas, le moment magnétique net doit être le plus rigide possible. Pour cela et d'après les conclusions tirées des modèles exposés précédemment, nous pouvons modifier trois facteurs clefs qui jouent sur la rigidité de l'AAF (équation 4.4):

- le facteur Q (déterminé par l'épaisseur relative des couches magnétiques),
- la rigidité magnétique des couches magnétiques uniques,
- le couplage inter- couche qui doit être le plus grand possible.

Etant donnée l'équation (4.4), la rigidité de l'AAF semble être ajustable à volonté en modifiant le facteur Q . Si l'on considère une couche unique de coercivité fixe, la rigidité de l'AAF peut être augmentée en augmentant le facteur Q . Cependant, dans ce cas le degré d'alignement des aimantations des couches magnétiques de l'AAF devient de plus en plus faible. En effet, dans la fenêtre de champ comprise entre $\pm H_p$, la déflexion angulaire de l'aimantation dans les couches de l'AAF augmente avec l'augmentation du Q [BergIEEE96].

Cependant, la réalité expérimentale et les processus d'aimantation décrits ci dessus sont beaucoup plus complexes. En effet, dans la suite de ce manuscrit, nous allons voir que les cycles M-H expérimentaux présentent des caractéristiques additionnelles à celles prédites par des simulations théoriques. Ces caractéristiques sont induites par la présence des inhomogénéités magnétiques (i.e. structure en domaine) dans les deux couches de l'AAF, créés par une distribution d'anisotropie (anisotropie aléatoire) dans l'échantillon. Ce phénomène n'a pas été pris en compte dans le modèle analytique présenté auparavant. Les effets de la structure en domaines sur le fonctionnement de l'AAF et une analyse micromagnétique détaillée de l'évolution de la structure en domaines en fonction du champ feront le sujet des paragraphes suivants. De plus, comme nous allons le constater dans la suite de ce manuscrit, l'évolution de la structure en domaines dans un système AAF, et notamment la stabilité des parois, est directement reliée à la valeur du facteur Q . Plus le facteur Q est grand, plus les parois créées durant le renversement magnétique de l'AAF sont stables. Leur présence dans une large gamme de champ appliqué joue un rôle négatif sur la qualité de la réponse magnéto-résistive des capteurs utilisant l'AAF comme sous-système rigide [TiusanPRB00].

Ainsi, pour les applications de l'AAF dans les jonctions tunnel magnétiques, nous nous sommes limités à des valeurs du facteur $Q = 4$ et plus petits. Néanmoins, quelques JTM ont été réalisées avec des systèmes AAF utilisant des facteurs Q plus grands, jusqu'à $Q=10$. Dans ce cas et comme nous allons le voir dans le chapitre 5, la JTM a été utilisée pour étudier le comportement de l'AAF sous champ magnétique en fonction du facteur Q et ainsi tester les modèles théoriques exposés précédemment. En se basant sur un facteur $Q = 4$, nous avons développé une étude laborieuse concernant l'optimisation du champ coercitif des couches uniques afin d'obtenir les coercivités de couche unique les plus grandes possibles et donc les systèmes AAF les plus rigides possible.

4.1.2. Propriétés magnétiques macroscopiques des couches uniques

L'optimisation des propriétés magnétiques des couches magnétiques individuelles doit se faire en parallèle avec l'optimisation de la qualité cristallographique et topographique des surfaces et interfaces. En effet, la rugosité des dépôts joue un rôle primordial sur la faisabilité expérimentale d'un système antiferromagnétique artificiel de bonne qualité. Une forte rugosité d'interface est responsable de fluctuations d'épaisseur de la couche non magnétique séparatrice des deux couches magnétiques. Ces fluctuations peuvent entraîner un couplage direct entre les deux couches magnétiques lorsque la couche est discontinue, ou bien induire des fluctuations dans le caractère du couplage, entre ferromagnétique et antiferromagnétique. On peut alors se retrouver avec un couplage moyen nul ou un couplage biquadratique. De même, les propriétés magnétiques de chaque couche magnétique sont fortement influencées par la microstructure des surfaces /interfaces dans l'empilement multicouche.

Pour toutes ces raisons, les multicouches ont été déposées sur une couche tampon. L'optimisation de ses paramètres de croissance a constitué une partie importante du travail d'élaboration des jonctions tunnel utilisant le système AAF. A partir des résultats obtenus préalablement au laboratoire [ZollPRB98], [Persat98], [PersatJAP97] sur des AAFs Co/Ru/Co, Co/Rh/Co et Co/Cu/Co, nous avons choisi d'utiliser une couche tampon constituée d'une tri-couche Cr/Fe/Cu déposée sur un substrat de Si (111) non-oxydé.

Tout comme les propriétés structurales et de topographie, les propriétés magnétiques sont fortement influencées par chaque composant de la couche tampon. Des changements importants dans la topographie et le magnétisme des couches uniques ont été observés avec les épaisseurs de Cr, Fe, Cu, mais aussi en fonction de la présence ou non de Cr et de Fe.

Rôle du Fe sur le magnétisme des couches uniques

L'absence de Fe dans la couche tampon conduit à des propriétés magnétiques des couches uniques qui ne sont pas exploitables pour la fabrication d'un AAF de qualité. En effet, la rugosité d'une bi-couche Cr(1.6nm)/Cu(30nm) est grande comme nous l'avons montré au chapitre 3 (figure 3.4) et les résultats de diffraction de rayons X montrent que les différentes couches sont polycristallines (figure 3.1, chapitre 3). D'après ce qu'on peut voir sur la figure 4.2, le champ coercitif d'une couche de Co(3nm) empilée sur une couche tampon de Cr(1.6nm)/Cu(3nm) est faible. De plus, le retournement magnétique n'est pas net, le cycle étant arrondi vers la saturation. Pour un champ inverse de -35 Oe environ, 65% du moment

net est inversé alors que pour obtenir le renversement total, il faut appliquer un champ magnétique supérieur à 2 kOe.

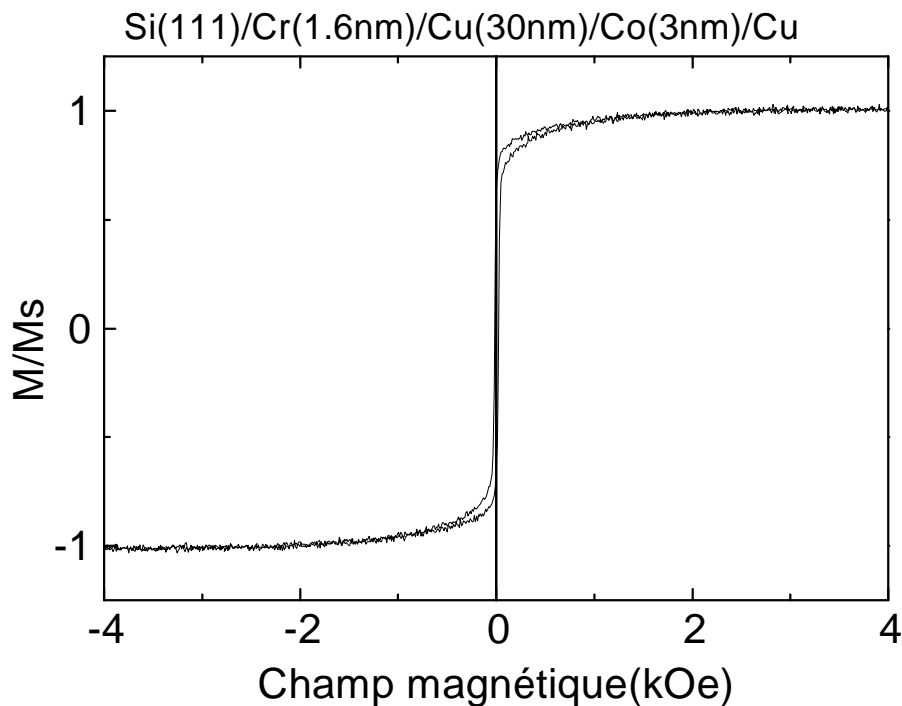


Figure 4.2. Cycle d'aimantation pour une couche unique de Co(3nm) déposée sur une couche tampon de Si(111)/Cr/Cu. Le renversement de l'aimantation n'est pas net, le cycle est arrondi vers la saturation.

En ajoutant du Fe dans la couche tampon, les propriétés cristallographiques et topographiques et notamment la rugosité s'améliorent. Dans ce cas, le champ coercitif de la couche unique de Co(3nm) augmente avec l'augmentation de l'épaisseur de Fe (voir la figure 4.3) alors que la rugosité des surfaces/interfaces diminue (voir dans le chapitre 3). Des coercivités importantes, variant entre -200 et -300 Oe, sont obtenues pour des couches de Co(3nm) empilées sur une couche tampon de Cr(1.6nm)/Fe(3nm, 6nm ou 7.5nm)/Cu(30nm) et recouvertes pour protection contre l'oxydation avec du Cu. La présence de Fe dans la couche tampon conduit de surcroît à un renversement net de l'aimantation dans une gamme de champ magnétique très étroite ($\Delta H/H_c=0.05$).

Rôle du Cr sur le magnétisme des couches uniques

D'après la figure 4.4, la présence de Cr dans la couche tampon renforce ces tendances. Le silicure de Cr qui se forme à l'interface Si/Cr détermine une croissance de meilleure qualité

pour les couches déposées par la suite. Ainsi, le champ coercitif d'une couche magnétique de Co(3nm) augmente d'un facteur 2 entre une configuration sans chrome : Si(111)/Fe(3nm)/Cu(30nm)/Co(3nm)/Cu et une configuration avec du chrome : Si(111)/Cr(1.6nm)/Fe(3nm)/Cu(30nm)/Co(3nm)/Cu. Cette augmentation de coercivité s'accompagne d'un renversement de l'aimantation de la couche de Co(3nm) plus net.

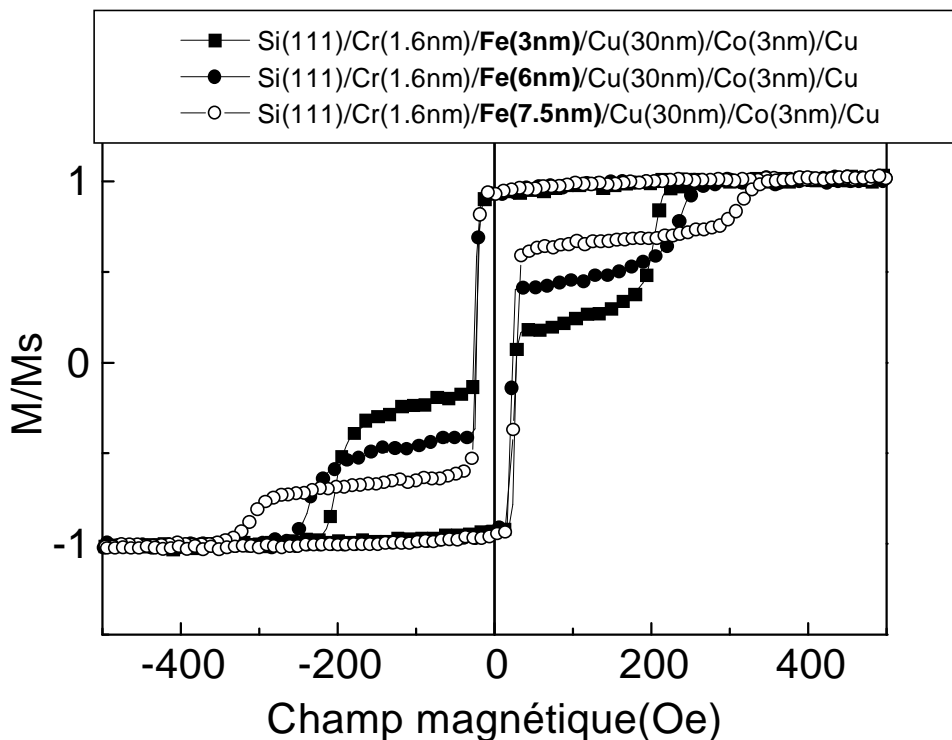


Figure 4.3. L'effet de l'épaisseur de la couche de Fe de la couche tampon sur la rigidité magnétique et sur les caractéristiques du renversement d'une couche de Co(3nm)/Cu.

L'élément clef de l'augmentation de la coercivité avec l'adjonction de Cr dans la couche tampon provient de la protection de la surface de Si(111) après son décapage. En effet, lors des dépôts des multicouche dans le bâti de pulvérisation cathodique, nous avons observé une évolution de la surface des substrats de silicium après le décapage initial en fonction du temps (voir le chapitre 3, paragraphe 3.3 concernant la croissance). L'oxydation de la surface de Si(111) entraîne l'apparition de pics d'oxyde de Si dont la hauteur peut atteindre quelques nanomètres. Ces pics entraînent des problèmes de reproductibilité des propriétés magnétiques des couches de Co. Le problème a été résolu par la protection de la surface du Si par la couche de Cr(1.6nm) tout de suite après le décapage initial dans le plasma Ar. En effet, de cette manière, nous évitons la formation de ces pics d'oxyde car la surface de Cr se passive très vite et l'oxyde de Cr ne forme pas de pics.

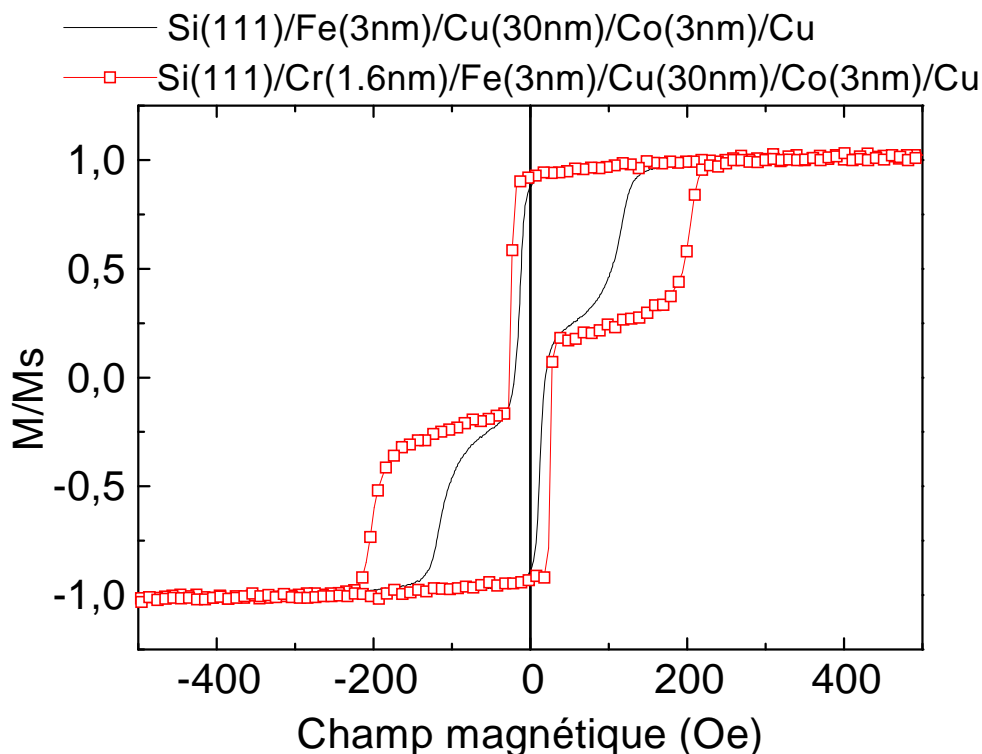


Figure 4.4. Effet du Cr de la couche tampon sur les propriétés magnétiques d'une couche de Co(3nm)/Cu empilée sur une couche tampon de Cr/Fe/Cu.

Choix définitif des paramètres de la couche tampon

Malgré l'amélioration des propriétés magnétiques et topographiques des couches de Co avec l'augmentation de l'épaisseur de la couche de Fe, nous avons choisi d'utiliser une épaisseur de couche de Fe égale à 6nm. De cette manière, nous limitons le signal magnétique issu du Fe de la couche tampon par rapport à celui des couches magnétiques actives de l'empilement multicouche d'une JTM.

Les épaisseurs des différentes couches constituant la couche tampon ont été fixées à Cr(1.6nm)/Fe(6nm)/Cu(30nm). Malgré l'augmentation de la rugosité de la couche de Cu avec son épaisseur, 30 nm de Cu ont été nécessaires, d'une part pour s'assurer du découplage magnétique de la couche de Fe de la couche tampon avec les autres couches magnétiques de la JTM et, d'autre part, pour réduire la résistance électrique de l'électrode inférieure de la jonction. Cette dernière doit avoir une résistance électrique plus petite que la résistance de la barrière tunnel, afin d'éviter des effets liés à la géométrie de mesure sur le signal magnétorésistif [VerdAPL97].

Influence de la couche de couverture du Co sur les propriétés magnétiques

Lors de cette étude, il est apparu que les propriétés magnétiques d'une couche de Co(3nm) sont toutes aussi sensibles à la nature et à la composition de la couche tampon qu'à celles de la couche de couverture. Jusqu'à présent, nous avons présenté la situation où la couche de couverture est composée de Cu. Pourtant, dans une structure d'AAF type Co/Ru/Co, la première couche de Co est couverte avec du Ru. C'est pour cela que nous avons été amené à étudier les propriétés magnétiques d'une couche de Co(3nm) couverte avec du Ru. Dans ce cas, le cycle d'aimantation présente un renversement graduel avec un champ coercitif d'environ 100 Oe (Figure 4.5). Ce cycle contraste avec le renversement plus abrupt et le champ coercitif plus grand, égal à environ 250 Oe, obtenu pour une couche de Co déposée dans des conditions identiques mais couverte avec du Cu. Il semble donc que le Co soit adouci par sa couverture avec du Ru et que l'origine de cet adoucissement soit le mélange du Co et du Ru à l'interface Co/Ru. En effet, plusieurs études montrent que l'interface Co/Ru est mélangée sur une épaisseur beaucoup plus importante que l'interface Co/Cu [Panissod98], [ZollPRB98]. Le champ coercitif de la couche est alors déterminé par celui de l'interface.

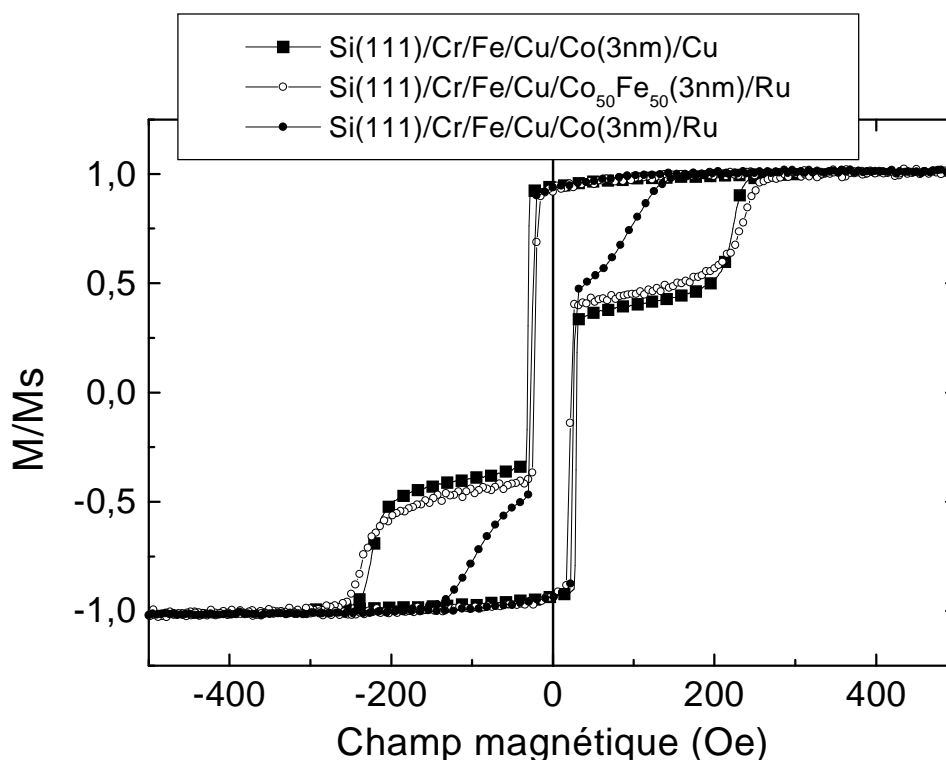


Figure 4.5. Cycles d'aimantation M-H des couches Co(3nm)/Cu, Co(3nm)/Ru et $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}(3\text{nm})/\text{Ru}$ empilées sur une couche tampon standard Cr/Fe/Cu.

A cause de la structure granulaire du Co dans un film polycristallin, le Ru peut diffuser entre les grains à l'interface et ainsi diminuer l'épaisseur magnétique effective de la couche et le couplage d'échange latéral entre les grains. L'affinité chimique de ces deux éléments tend à mélanger l'interface de manière indépendante à la technique de dépôt, l'épaisseur de la région inter- mélangée étant approximativement égale à 3 monocouches à chaque interface [ZollPRB98]. Des mesures magnétiques de l'aimantation d'une couche de Co(3nm) couverte avec du Ru nous donnent environ 1100 emu/cm^3 , par rapport à l'aimantation du Co massif égale à 1420 emu/cm^3 . D'autre part, le renversement graduel de l'aimantation dans le cas du couple Co/Ru est en accord avec un mécanisme de renversement de type rotation cohérente des moments magnétiques individuels dans chaque grain [Berkov98].

Diminution de l'influence de la couche de couverture sur les propriétés magnétiques de la couche de Co : adjonction de Fe dans la couche

Afin d'éliminer ou de réduire les conséquences du mélange Co/Ru sur le magnétisme dans le cas des couches de Co recouvertes avec du Ru, nous avons rajouté du Fe dans le Co. Ces éléments sont miscibles comme le Co et le Ru mais leur affinité chimique est plus importante et de surcroît ils forment des composés définis. Ainsi, le mélange à l'interface $\text{Co}_x\text{Fe}_{1-x}/\text{Ru}$ doit être fortement réduit.

Une étude de la rigidité magnétique en fonction de la concentration de Fe dans le Co présentée dans la figure 4.6, nous a amené à choisir la configuration équiatomique $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$. Cette configuration permet d'obtenir une couche de forte coercivité accompagnée d'un fort moment magnétique. De plus, comme nous pouvons le voir dans la figure 4.6, de faibles variations de concentration, pouvant apparaître lors de la codéposition des deux métaux par pulvérisation cathodique, ne vont pas affecter de manière drastique la coercivité de l'alliage obtenu. Une étude systématique de l'aimantation d'une couche de $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ couverte avec du Ru en fonction de son épaisseur montre que seulement une demie monocouche est magnétiquement morte à l'interface $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}/\text{Ru}$. Lorsque la concentration de Fe est réduite à zéro, il apparaît que deux couches atomiques sont alors magnétiquement mortes (cas de l'interface Co/Ru).

Le résultat de cette étude est donné dans la figure 4.5. Nous montrons que la courbe d'aimantation d'une couche de $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ (3nm) protégée avec du Ru semble être identique à celle d'une couche de Co(3nm) couverte avec du Cu. En effet, le champ coercitif est supérieur

à 220Oe, 2 à 3 fois plus grand que dans le système Co(3nm)/Ru empilé sur la même couche tampon. De plus, il apparaît que le renversement de l'aimantation est plus abrupt.

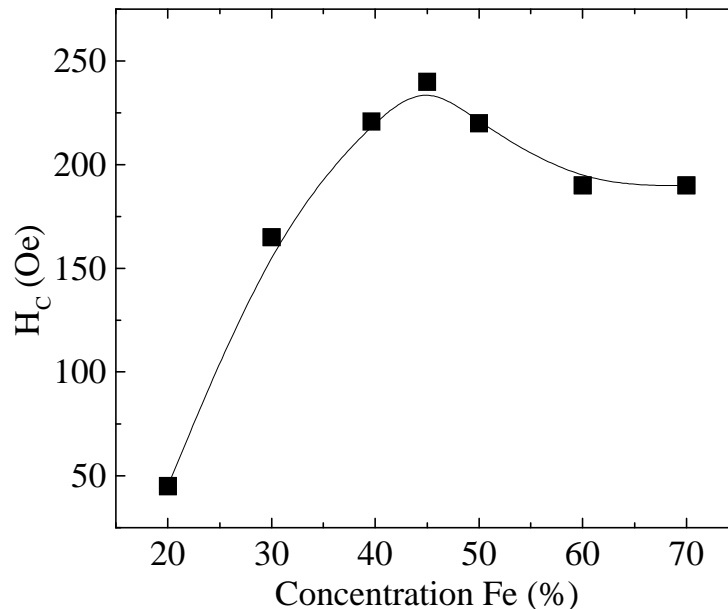


Figure 4.6. Variation du champ coercitif d'un alliage binaire $\text{Co}_x\text{Fe}_{1-x}$ en fonction de la concentration de Fe lorsque la couche est couverte avec du Ru

A partir de ces résultats obtenus pour des couches magnétiques individuelles, nous avons réalisé des systèmes antiferromagnétiques artificiels (AAF).

4.1.3. Propriétés magnétiques macroscopiques des systèmes antiferromagnétiques artificiels

Etant donné que les propriétés magnétiques des AAFs reposent sur celles de leur couches constituantes, la couche tampon a une forte influence sur la stabilité et le renversement du moment résultant de l'AAF. En effet, les cycles d'aimantation présentés dans la figure 4.7 ont été mesurés sur deux échantillons comportant le même AAF mais cet AAF est déposé sur des couches tampon contenant ou non du Fe. Comme nous l'avons montré dans la figure 4.2, lorsque la couche de Fe est supprimée de la couche tampon, les couches uniques présentent un faible champ coercitif ainsi qu'une saturation graduelle de l'aimantation. Ce même type de comportement se retrouve alors dans le système AAF. Comme nous pouvons le voir dans la figure 4.7, l'AAF ne se comporte alors plus comme un bloc rigide.

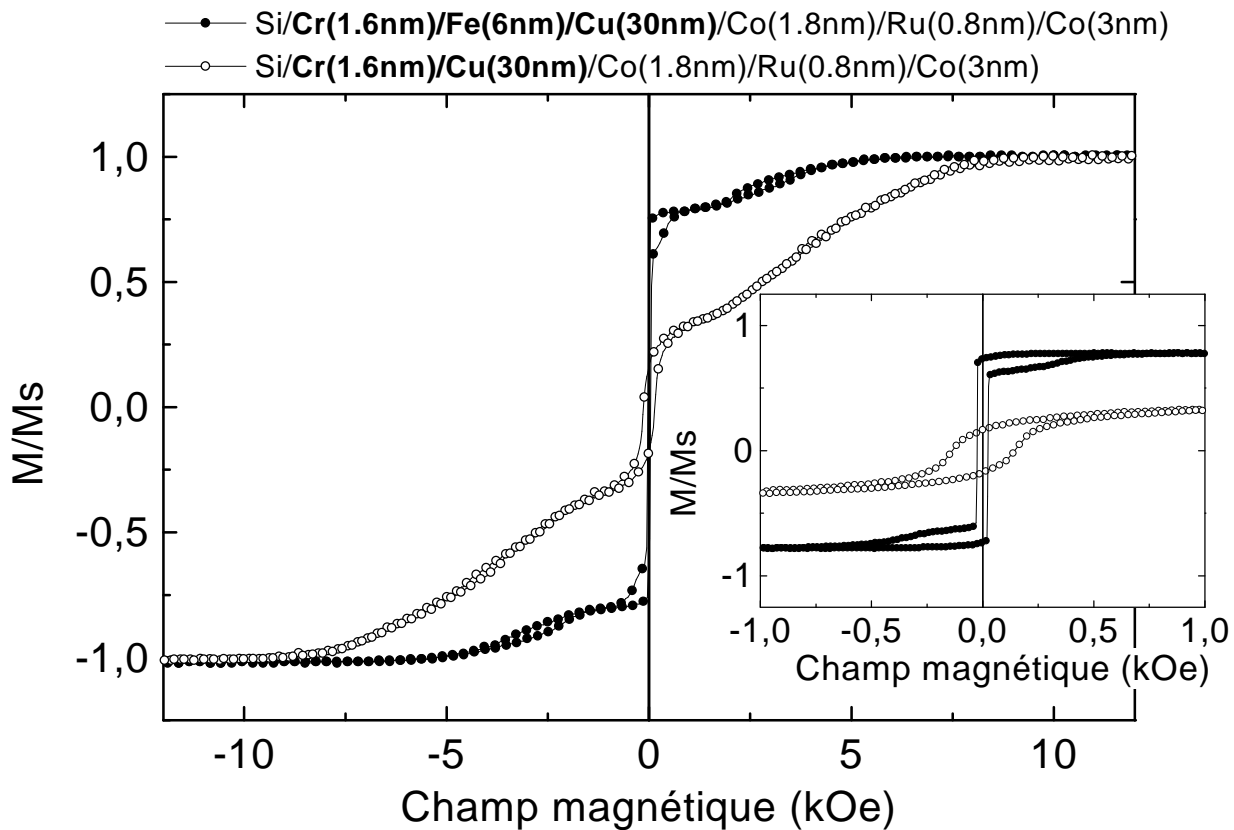


Figure 4.7. L'influence des propriétés magnétiques des couches uniques induites par la couche tampon, sur le magnétisme de l'AAF. Le même AAF, Co/Ru/Co empilé sur deux couches tampon différentes présente des caractéristiques magnétiques différentes, en terme de rigidité magnétique et allure du retournement de l'aimantation.

Dans un champ magnétique inverse, le moment net de l'AAF se retourne de manière continue, la rémanence en champ nul n'est pas égale à la différence des moments magnétiques. Par conséquent, un AAF de ce type ne possède pas les caractéristiques requises pour former un système magnétique rigide pour les applications envisagées. Dans la suite, nous analysons les propriétés magnétiques des AAFs empilés sur la couche tampon optimisée Cr(1.6nm)/Fe(6nm)/Cu(30nm).

Les propriétés magnétiques macroscopiques des AAFs utilisant le Co et le $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ sont étudiées à partir des cycles d'aimantation M-H. Etant donné que les caractéristiques magnétiques intrinsèques de chaque couche individuelle ont été étudiées et optimisées, il s'agit maintenant de stabiliser une structure antiferromagnétique dont le couplage est le plus fort possible. L'intensité du couplage d'échange AF a été systématiquement estimée à partir des mesures de cycle d'aimantation à température ambiante dans des sandwiches Co/Ru/Co, Co/Ru/CoFe ou CoFe/Ru/CoFe, pour une épaisseur de couche séparatrice de Ru variable.

Dans la mesure où l'aimantation des couches magnétiques de Co ou de CoFe reste dans le plan de l'empilement multicouches et qu'il n'y a pas de direction privilégiée dans le plan, le champ de saturation, déterminé à partir des courbes d'aimantation, est directement proportionnel au couplage d'échange AF. L'intensité du couplage peut alors être estimée grâce à la formule [BergJMMM97] :

$$J_{bil} = H_s \frac{t_1 M_1 t_2 M_2}{t_1 M_1 + t_2 M_2} \quad (4.7)$$

où H_s est le champ de saturation de l'AAF, M_1 et M_2 sont les moments magnétiques par unité de volume des deux couches magnétiques de l'AAF d'épaisseurs t_1 , t_2 . Cette formule ne tient pas compte des inhomogénéités latérales du couplage et nous donne donc la valeur maximale du couplage. En fait, le *couplage effectif*, une valeur moyenne du couplage, est toujours plus petit que celui estimé à l'aide de (4.7).

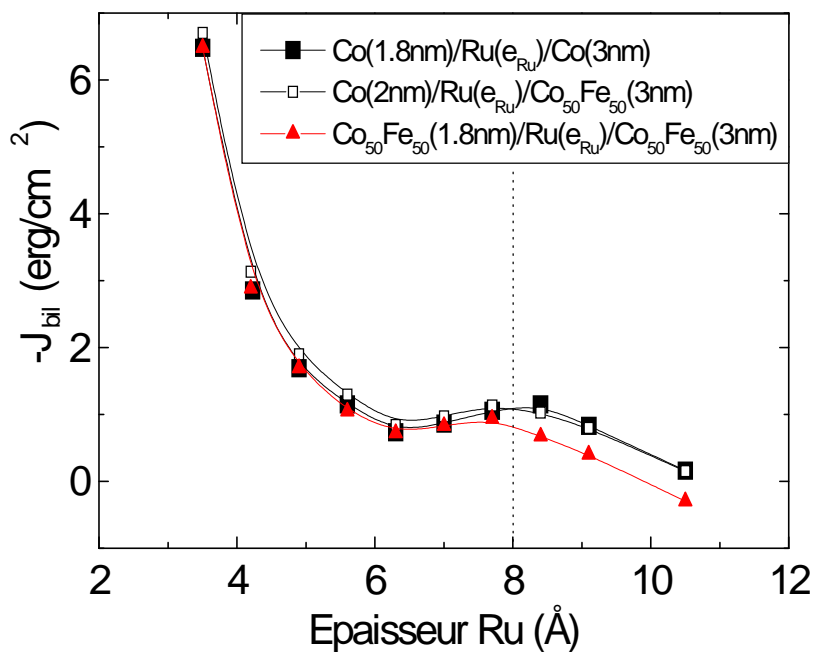


Figure 4.8. Oscillations du couplage AF entre deux couches magnétiques de Co ou/et CoFe, à travers une couche non magnétique de Ru, en fonction de l'épaisseur de la couche séparatrice.

Les couplages inter-couches ont été mesurés pour des AAF utilisant des couches de Co et de Co₅₀Fe₅₀. Dans la figure 4.8, nous présentons des estimations de J_{bil} pour des AAFs typiques Co(1.8nm)/Ru/Co(3nm), Co(2nm)/Ru/Co₅₀Fe₅₀(3nm) et Co₅₀Fe₅₀(1.8nm)/Ru/Co₅₀Fe₅₀(3nm) en fonction de l'épaisseur de Ru. Il apparaît que les couplages AF pour les trois AAF ont des intensités comparables.

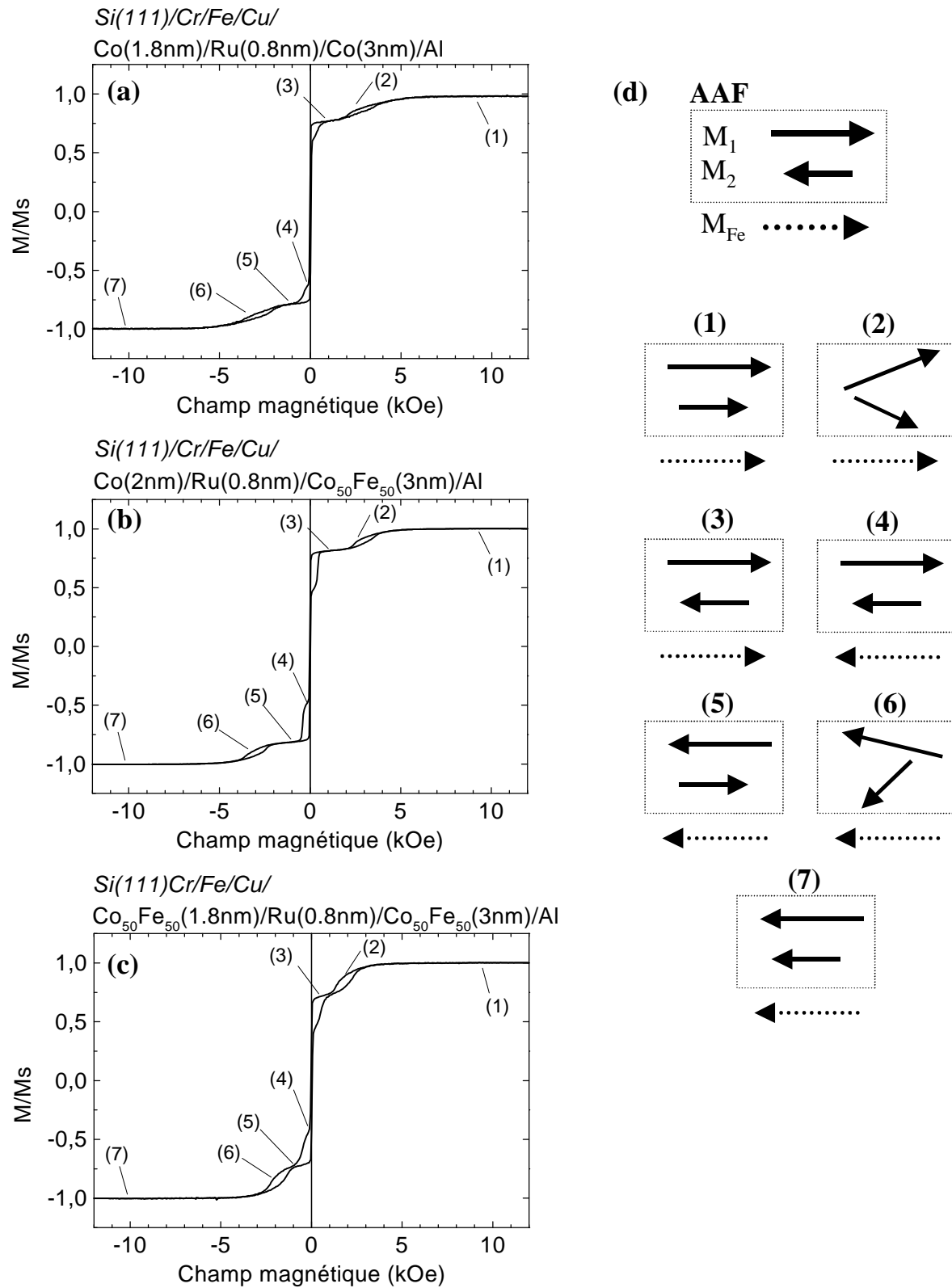


Figure 4.9. Cycles complets d'aimantation mesurés pour des AAFs: (a) Co/Ru/Co, (b) Co/Ru/CoFe et (c) CoFe/Ru/CoFe. (d) Configuration des aimantations d'un AAF pour les champs magnétiques (1)-(7). M_1 est la couche épaisse de l'AAF et M_2 la couche fine. M_{Fe} représente l'aimantation de la couche de Fe de la couche tampon.

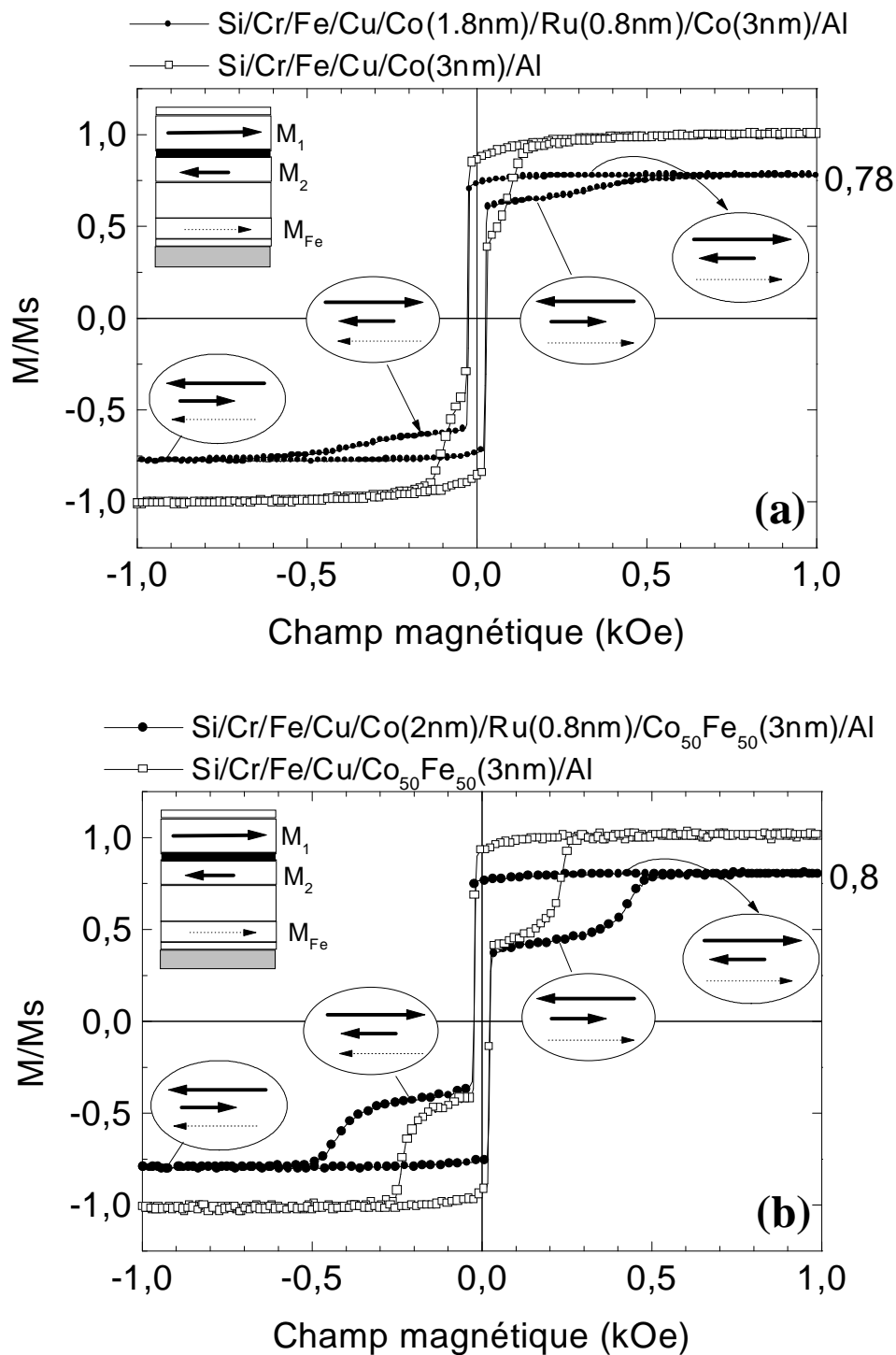


Figure 4.10. Cycles M-H mineurs d'AAF (a) Co/Ru/Co et (b) Co/Ru/Co₅₀Fe₅₀, comparés aux cycles M-H majeurs des couches uniques de Co respectivement Co₅₀Fe₅₀. Une analyse comparative des cycles des couches uniques et des AAFs montre l'amplification du champ coercitif de la couche unique dans une structure AAF. Les dessins représentent l'orientation relative des aimantations de la couche épaisse (M_1), et fine (M_2) de l'AAF et de la couche de Fe de la couche tampon (M_{Fe}) tout au long du cycle mineur.

Le comportement oscillatoire avec l'épaisseur de Ru présente un premier maximum à 3Å et un second maximum situé autour de 8Å. Dans les empilements AAF utilisés dans les jonctions tunnel, nous avons choisi l'épaisseur de Ru qui correspond au second maximum. Ainsi la stabilité thermique de l'empilement est augmentée et le couplage biquadratique, qui peut se manifester autour du premier pic de couplage [Zoll97], est supprimé.

Des exemples typiques de courbes d'aimantation, correspondant à des AAFs Co/Ru/Co, Co/Ru/CoFe ou CoFe/Ru/CoFe, sont illustrés dans la figure 4.9 (a), (b), (c). Les flèches, reportées dans les dessins (1) - (7), représentent l'orientation relative des aimantations des deux couches magnétiques de l'AAF ainsi que de celle de la couche de Fe contenue dans la couche tampon. Dans les sept dessins, la flèche supérieure représente l'orientation de l'aimantation de la couche épaisse de l'AAF, la flèche intermédiaire représente celle de la couche fine de l'AAF et la flèche inférieure représente celle de la couche de Fe de la couche tampon.

En comparaison avec le cycle d'hystérésis théorique (Figure 4.1), le saut d'aimantation apparaissant autour du champ nul dans le cycle expérimental provient du renversement de l'aimantation du Fe contenu dans la couche tampon. De plus dans le cycle expérimental, une hystérèse peut être observée dans le flanc du cycle (région comprise entre H_p et H_s définis dans la figure 4.1). Cette hystérèse est attribuée au développement et l'évolution d'une structure en domaines pendant le renversement de la couche fine de l'AAF [PersatJMMM99] et elle ne peut pas être expliquée dans un modèle monodomaine.

La formation et l'évolution de cette structure en domaines sera présentée de manière plus détaillée dans un paragraphe suivant en utilisant le transport tunnel polarisé en spin pour étudier le micromagnétisme de chacune des deux couches de l'AAF de manière indépendante [TiusanPRBs1].

Dans la suite, nous analysons les propriétés magnétiques des AAFs dans une fenêtre des champs située dans le plateau AF. Ces cycles sont appelés des cycles M-H mineurs et correspondent à une gamme de champ magnétique pour laquelle les moments magnétiques des deux couches ferromagnétiques sont antiparallèles.

Dans la figure 4.10 (a) et (b), nous présentons des cycles mineurs d'AAF utilisant le Co et l'alliage équiatomique $Co_{50}Fe_{50}$. Les schémas accompagnant les cycles mineurs décrivent à l'aide de flèches les configurations des aimantations de chaque couche magnétique. Dans un

champ magnétique positif, l'AAF se comporte comme un moment magnétique unique égal à $m_1 - m_2$ et orienté selon le champ appliqué. En renversant la direction du champ magnétique et pour une intensité du champ d'environnement -400 Oe, le moment net $m_1 - m_2$ va se renverser pour redevenir parallèle avec la direction du champ négatif appliqué. Entre 0 et -400 Oe, l'AAF constitue un bloc d'aimantation rigide.

Dans chacune des figures 4.10 (a) et 4.10 (b), nous avons superposé les cycles M-H de la couche unique et de l'AAF correspondant. Ainsi, nous pouvons analyser le fonctionnement de l'AAF dans son rôle *amplificateur* de champ coercitif de couches uniques. Comme nous l'avons évoqué dans les paragraphes précédents, le champ coercitif d'un AAF est égal au produit du champ coercitif de la couche unique par le facteur Q défini comme le rapport du moment magnétique total à saturation et du moment magnétique net dans la configuration AF: $Q = (m_1 + m_2) / (m_1 - m_2)$. Le gain en rigidité théorique est alors calculé à partir des épaisseurs des couches magnétiques déposées. Ce gain est ensuite comparé aux valeurs expérimentales Q_{exp} , calculées en comparant les champs coercitifs des AAFs avec ceux des couches uniques.

Pour l'AAF Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm), le gain expérimental mesuré, $Q_{exp} \sim 3$, est plus faible que le gain théorique visé, $Q = 4$. Pour l'AAF Co(2nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm), il en est de même puisque le gain expérimental est égal à 2 alors que le gain théorique visé est toujours $Q=4$. La différence observée entre les gains théorique et expérimental peut être expliquée par deux effets distincts [TiusanPRB00] :

- des effets de mélange aux interfaces couches magnétiques/Ru, qui fait que le moment magnétique réel de chaque couche magnétique est plus faible que le moment estimé à partir de l'épaisseur déposée.

- des effets liés à une structure en domaines magnétiques résiduelle après le renversement magnétique de l'AAF et l'anisotropie aléatoire intra-couche. Leur présence est responsable d'une perte de moment magnétique qui se répercute dans les deux couches magnétiques par couplage AF. Dans ce cas, les résultats issus d'un modèle monodomaine ne sont plus applicables.

Dans le cas du Co/Ru/CoFe, la différence entre le Q calculé et le Q mesuré est plus grande car les mélanges aux interfaces Co/Ru et CoFe/Ru ne sont pas égaux. En effet, la couche de Co va perdre par mélange avec le Ru un moment magnétique plus important que la couche de $Co_{50}Fe_{50}$. Cette dernière préserve en principe l'épaisseur magnétique "déposée" grâce à la stabilité de ses interfaces avec le Ru. Néanmoins, l'AAF Co(2nm)/Ru(0.8nm)/ $Co_{50}Fe_{50}$ (3nm)

présente une rigidité magnétique similaire à celle de l'AAF Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co (3nm) même si son gain effectif expérimental est plus faible. Cela est possible car il *amplifie* d'un facteur Q plus faible la coercivité de la couche de Co₅₀Fe₅₀(3nm)/Ru qui est déjà 2 à 3 fois plus grande que celle de la couche Co(3nm)/Ru. L'utilisation de couches uniques plus rigides dans la construction d'un AAF permet d'utiliser des facteurs Q plus faibles pour viser une même rigidité d'AAF. Comme nous allons le voir, la valeur de Q a une influence particulièrement importante sur le micromagnétisme du système antiferromagnétique artificiel et notamment sur l'évolution et la stabilité de la structure en domaines développée lors du renversement du moment net de l'AAF.

4.2. Magnétisme à l'échelle microscopique

Dans cette partie du manuscrit, nous présentons une étude microscopique des propriétés magnétiques des couches ferromagnétiques uniques ainsi que de celles de chacune des couches constituant le système AAF. L'analyse microscopique nous donne accès aux fluctuations locales de l'aimantation et donc aux structures en domaines sous champ magnétique. Elle se base sur l'utilisation de la microscopie à force magnétique (MFM) ainsi que sur les modèles de renversement de l'aimantation dans des couches fines polycristallines. Nous allons montrer que les phénomènes hystérétiques observés à une échelle macroscopique ont une origine microscopique et proviennent de la stabilité de parois de Néel à 360° .

Les modèles de renversement de l'aimantation dans les systèmes polycristallins sont basés sur la formation de configuration d'aimantation de type « rides magnétiques », traduit de l'anglais « ripple ». Ces modèles ont été développés et perfectionnés depuis les années 60 par différents auteurs [Fuller60], [Laver68], [Spain68], [Herzer89], [Harte97] et [Berkov98]. Dans tous les cas, ils considèrent un film mince polycristallin, constitué de petits grains magnétiques couplés entre eux par des interactions d'échange dont l'intensité fluctue spatialement.

A une échelle macroscopique, les couches sont magnétiquement isotropes car l'orientation des axes faciles d'aimantation de chaque grain est complètement aléatoire. Pourtant, à une échelle microscopique et locale, on peut définir une *anisotropie locale effective* ainsi qu'une longueur de corrélation d'échange l_{ex} , distance sur laquelle l'aimantation s'inverse. Cette dernière est souvent plus grande que la taille des grains et est très sensible aux variations spatiales de l'anisotropie cristalline, aux fluctuations thermiques, au moment magnétique et couplage entre les grains. On peut alors s'attendre à une distribution spatiale des longueurs de corrélation ainsi que de l'anisotropie locale effective. De plus, dans un film polycristallin, l'intensité du couplage d'échange dépend de l'épaisseur du film magnétique [Berkov98]. Des calculs de micromagnétisme montrent que pour des films de faibles épaisseurs, constitués de grains faiblement couplés, le retournement de l'aimantation s'effectue par rotation des moments magnétiques individuels de chaque grain. Une structure caractéristique de type « rides magnétiques » apparaît lorsque soit le couplage entre les grains, soit l'épaisseur du film magnétique augmente [Berkov98].

4.2.1. Propriétés microscopiques des couches uniques

Les renversements de l'aimantation sous champ magnétique dans les couches individuelles de Co(3nm) et de Co₅₀Fe₅₀(3nm) sont présentés dans les figures 4.11 et 4.12 respectivement. Les figures présentent en parallèle les cycles d'aimantation et les images de microscopie à force magnétique (MFM) enregistrées sous champ magnétique pour des valeurs significatives de champ. Dans la figure 4.11, nous avons représenté en parallèle l'évolution magnétique de deux régions différentes localisées sur la surface de la couche de Co(3nm).

Le mécanisme microscopique qui régit le renversement de l'aimantation dans ces deux systèmes est le même. Cependant, comme nous l'avons montré dans l'un des paragraphes précédents, le magnétisme macroscopique de ces couches uniques est fort différent notamment au niveau de la valeur du champ coercitif et du caractère abrupt du renversement de l'aimantation. Cette différence provient de la taille différente des grains magnétiques dans les deux couches, du moment magnétique de l'alliage Co₅₀Fe₅₀ supérieur à celui du Co, d'un couplage d'échange inter-grain différent ainsi que d'une dureté magnétique de l'interface Co₅₀Fe₅₀/Ru supérieure à celle de l'interface Co/Ru. A cause de l'intermélange aux interfaces plus important dans le cas de la couche de Co que dans celui de la couche de CoFe, les grains magnétiques dans la couche Co(3nm) sont plus petits, moins fortement couplés et l'interface Co/Ru est plus douce. Par conséquent, la longueur de corrélation diminue et l'anisotropie locale effective augmente par rapport à une couche de Co₅₀Fe₅₀(3nm) empilée sur la même couche tampon.

Passons maintenant à la description du renversement de l'aimantation au niveau microscopique à partir de l'interprétation des images de microscopie à force magnétique. Voyons tout d'abord quels sont les points communs aux deux renversements d'aimantation. Lorsque le champ magnétique externe est réduit de la saturation positive à zéro, des contrastes gris et blancs apparaissent dans les images MFM prises en champ nul (Figure 4.11 (a), Figure 4.12 (a)). Ces contrastes correspondent aux accumulations de charges magnétiques qui sont cohérentes avec l'existence de fluctuations de l'orientation des aimantations relatives à la direction initiale du champ saturant. Cette structure magnétique est créée par des rotations indépendantes des aimantations de site à site, lorsque nous nous dirigeons de la saturation positive vers un champ appliqué nul. En effet, en diminuant le champ magnétique, la relaxation des moments magnétiques vers la direction de l'anisotropie locale effective est énergétiquement favorisée.

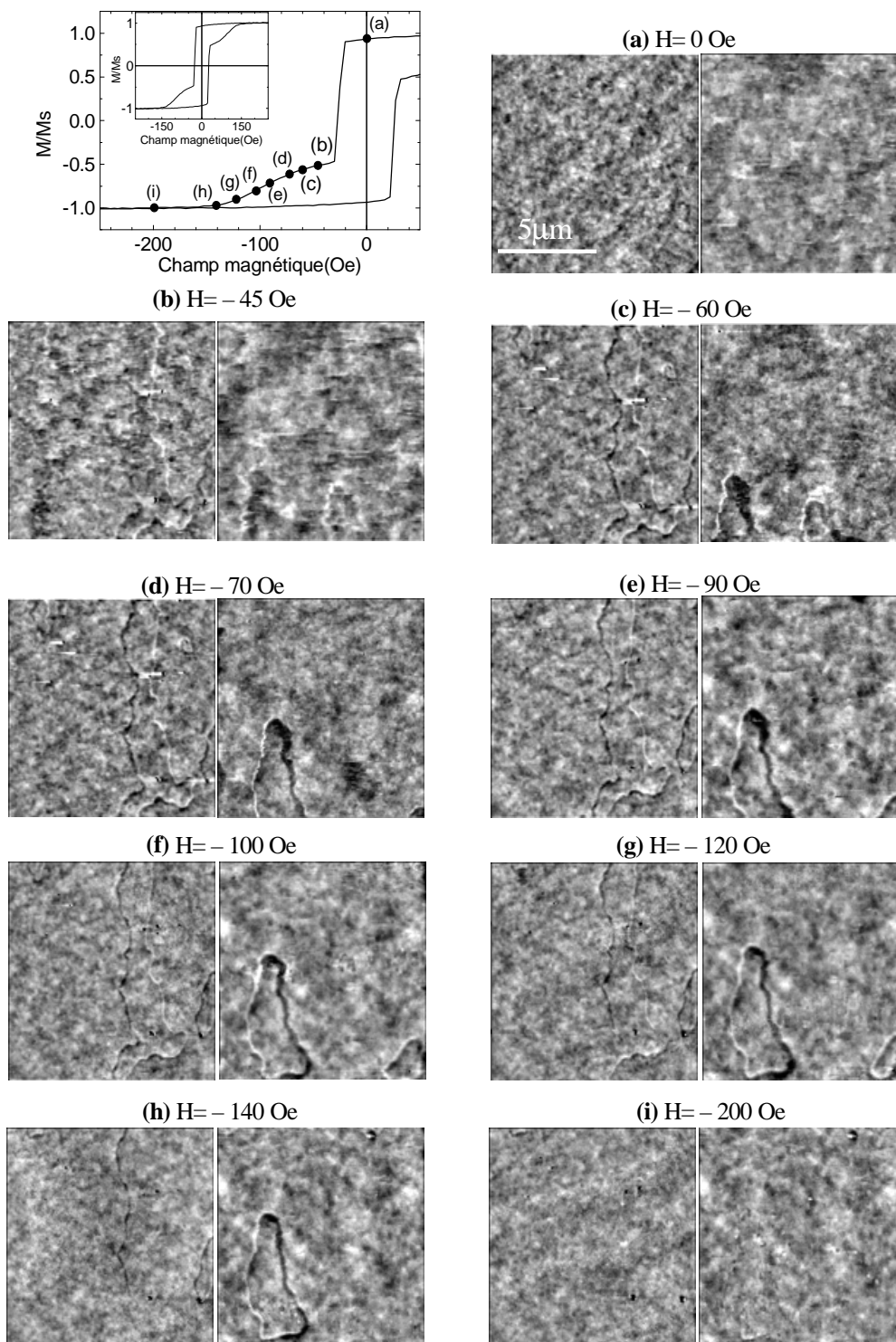


Figure 4.11. Ensemble d'images MFM mesurées durant le renversement de l'aimantation d'une multicouche Si(111)/Cr/Fe/Cu /Co(3nm)/Ru. Les images ont été enregistrées à des valeurs de champ magnétique données, indiquées sur la courbe M-H jointe. Pour chaque valeur de champ appliqué, nous avons représenté en parallèle l'évolution magnétique de deux régions différentes localisées sur la surface de la couche de Co(3nm). L'aimantation de la pointe magnétique MFM est orientée perpendiculaire à la surface de l'échantillon.

Lorsque le champ magnétique est renversé dans la direction négative, les moments magnétiques à l'intérieur de régions uniformément aimantées mais faiblement couplées avec les régions voisines, commencent à tourner en premier. Cette première étape correspond à une augmentation du contraste dans les images MFM (figure 4.12 b).

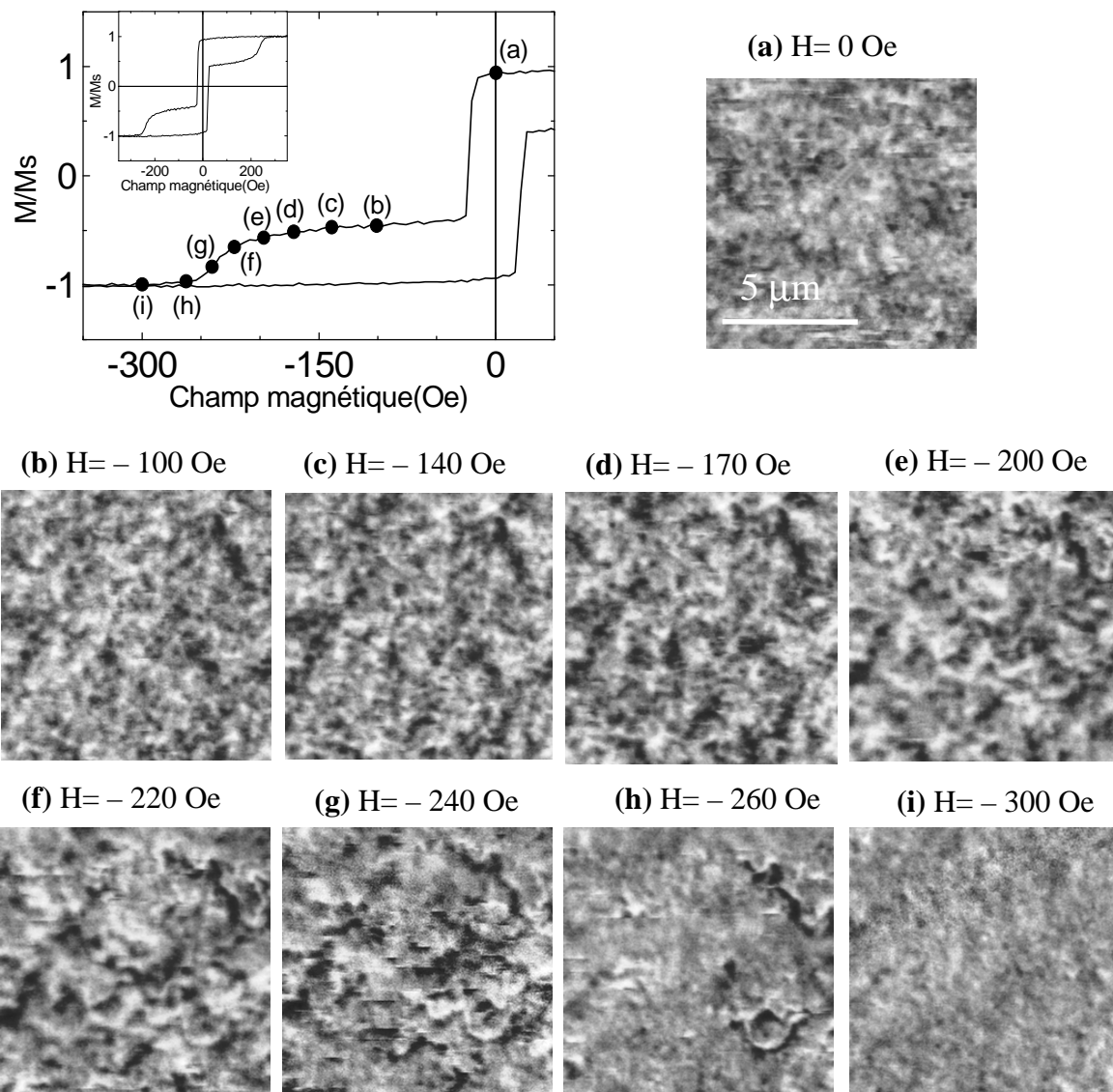


Figure 4.12. Ensemble d'images MFM mesurées durant le renversement de l'aimantation d'une multicouche Si(111)/Cr/Fe/Cu/CoFe(3nm)/Ru. Les images ont été enregistrées à des valeurs de champ magnétique données, indiquées sur la courbe M-H jointe. L'aimantation de la pointe magnétique MFM est orientée perpendiculaire à la surface de l'échantillon.

Dans un film polycristallin, le sens de rotation des moments magnétiques est dicté par l'anisotropie locale effective. Etant donnée la répartition aléatoire des inhomogénéités qui influencent l'anisotropie locale effective, des moments magnétiques suffisamment espacés

pour être considérés comme indépendants peuvent tourner soit dans le sens des aiguilles d'une montre, soit dans le sens contraire. Deux régions premières voisines tournant en sens opposés laissent apparaître une frontière. Cette frontière est une paroi de Néel étant données que les épaisseurs des couches sont minces. Au centre de cette paroi, le couple magnétique du champ appliqué est complètement équilibré et donc globalement nul. Par conséquent, le moment magnétique du centre de la paroi va rester bloqué dans la direction de saturation positive.

Tant que les angles de rotation des domaines sont assez petits, une configuration magnétique avec une haute densité de parois reste stable et les angles des domaines et donc des parois peuvent évoluer de manière réversible. Cette réversibilité disparaît lorsque les aimantations des régions couplées plus fortement sont entraînées en rotation par les interactions d'échange et pour des valeurs de champ plus grandes. Cela peut être visualisé dans les figures 4.11 (b), (c) respectivement 4.12 (c), (d) (e) lorsque le champ négatif augmente. Dans ces images, la formation de parois de type Néel peut clairement être visualisée par l'accumulation de charges magnétiques sous l'effet des rotations des moments des régions voisines tournant en antiphase. Lorsque le champ inverse augmente, l'angle des parois devient de plus en plus grand et le contraste MFM mesuré est de plus en plus net. D'autre part, les domaines voisins sont corrélés du fait des interactions d'échange de sorte que la longueur de la paroi peut augmenter. Si le champ magnétique inverse est encore augmenté, les moments magnétiques dans les domaines séparés par des parois de type Néel vont être pratiquement renversés, devenant presque parallèles avec la direction du champ appliqué. Dans ce cas, une structure de parois de type Néel dont l'angle est de 360° est formée. Comme nous le verrons au paragraphe 4.2.4, le contraste MFM mesuré est consistant avec le champ de fuite créé par des parois à 360° .

Dans un champ magnétique inverse suffisamment fort, l'existence d'une paroi à 360° devient énergétiquement défavorable. L'instabilité d'une telle paroi provient surtout du fait qu'au centre d'une paroi à 360° , le moment magnétique a une orientation inverse à celle du champ magnétique appliqué. Par conséquent, des parois ou segments de parois à 360° vont être annihilés progressivement. Cela est visible dans les figures 4.11 (c) - (d) et (e) - (h) pour la couche de Co(3nm) et dans les figures 4.12 (e) - (g) pour la couche de $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ (3nm). Comme nous pouvons le voir dans ces figures, des structures circulaires (géométrie fermée) très stables de parois à 360° peuvent rester piégées jusqu'à des valeurs du champ magnétique inverses assez intenses. Finalement, à la saturation, les parois à 360° circulaires sont annihilées, les films retrouvent une configuration monodomaine (figures 4.11 (i),

respectivement 4.12 (i)). Cette configuration monodomaine correspond à la saturation négative.

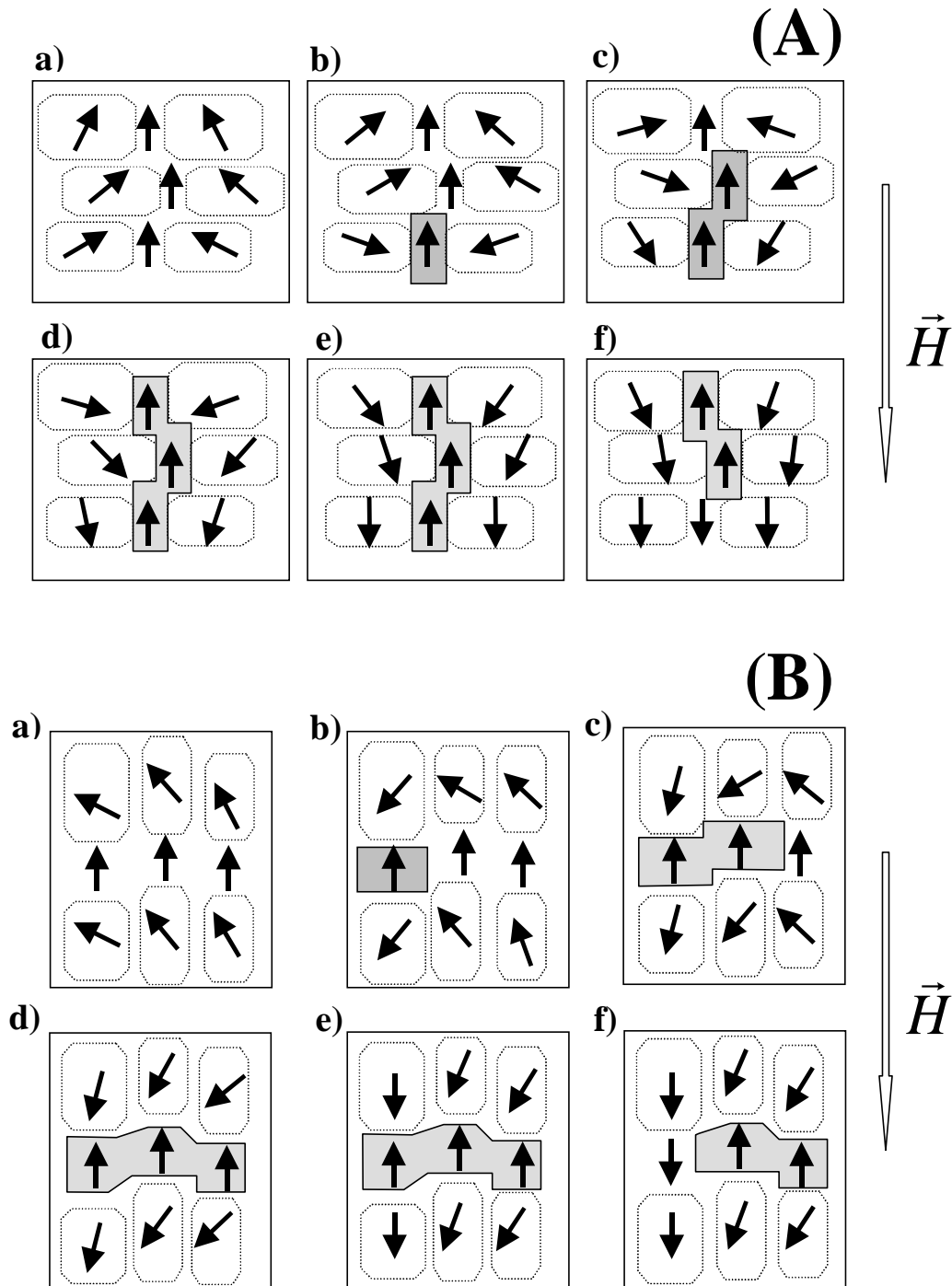


Figure 4.13. Schéma qui montre la formation des parois corrélées à 360° parallèles (A) et perpendiculaire (B) à la direction d'application du champ magnétique durant le renversement de l'aimantation dans un champ magnétique négatif. De (a) à (f), l'intensité du champ négatif H augmente. La paroi est représentée en gris. Elle apparaît sur le contraste MFM lorsque l'angle de la paroi est supérieur à 180°.

Les caractéristiques du renversement de l'aimantation d'un système polycristallin peuvent être résumées et schématisées dans la figure 4.13.

La figure présente un modèle d'évolution de la distribution des moments magnétiques dans un film polycristallin, modèle tiré à la fois des mesures expérimentales de MFM et des considérations théoriques issues des références [Fuller60], [Laver68], [Spain68], [Herzer89], [Harte97] et [Berkov98]. Après une saturation dans un champ positif et sous l'action d'un champ magnétique négatif externe H , le moment magnétique situé en bas à gauche, m_{bg} , tourne dans le sens des aiguilles d'une montre et le moment magnétique situé en bas à droite, m_{bd} , tourne dans le sens inverse en suivant chacun l'anisotropie effective locale. Il existe alors une région dans le centre où le couple du champ magnétique est compensé, et dans cette région, les moments magnétiques, m_{bc} , restent bloqués dans la direction initiale du champ de saturation positif (figure 4.13 (a)). Lorsque l'intensité du champ négatif augmente, la rotation de m_{bg} et m_{bd} progresse et conduit à l'apparition de deux parois de Néel à 180° de même chiralité (figure 4.13 (b)). Etant donnée que l'extension spatiale de m_{bc} ne dépasse pas la largeur d'une paroi à 180° , l'aimantation tourne de manière continue entre les directions de m_{bg} et m_{bd} . Ainsi, la région qui sépare m_{bg} et m_{bd} peut être décrite comme une paroi unique de type Néel à 360° dont le centre est m_{bc} .

Lorsque le champ négatif augmente, des moments voisins sont entraînés en rotation vers la direction du champ par interaction d'échange ou magnétostatique par voisins qui ont déjà débuté leur retournement. Par conséquent, l'extrémité de la paroi de Néel qui apparaît dans la figure 4.13 (b) se propage en augmentant ainsi la longueur effective de parois (figure 4.13 (c) et (d)).

Différences dans les renversements des aimantations des couches de Co et de CoFe

Même si les mécanismes impliqués dans le renversement des couches uniques de Co(3nm)/Ru et de CoFe(3nm)/Ru sont identiques, l'évolution des phases magnétiques sous champ magnétique présente quelques différences significatives. Ces différences proviennent essentiellement d'une valeur de longueur de corrélation différente dans les deux systèmes, plus petite dans le cas du Co/Ru, et d'un moment magnétique macroscopique différent, plus petit dans le cas du Co/Ru.

La petite taille des grains magnétiques et la distribution spatiale d'un couplage d'échange inter-grain faible entraînent une diminution du champ coercitif de la couche Co(3nm)/Ru ainsi qu'un renversement graduel de l'aimantation. Pourtant, on pourrait penser que dans le système Co(3nm)/Ru qui possède un moment magnétique net plus faible, la stabilisation de parois de Néel de longueur plus grande peut être favorisée (analyser de manière comparative les figures 4.11 et 4.12). Cela est possible car, pour un champ magnétique extérieur donné, le couple du champ magnétique qui s'exerce sur les domaines est proportionnel au moment magnétique net des domaines.

Cependant, comme nous pouvons le constater figure 4.12, la densité de parois de Néel corrélées qui peut être visualisée sur les images MFM enregistrées sur des surfaces de 10 μm de taille latérale est faible. Cela se justifie par une longueur de corrélation latérale faible liée à une petite épaisseur magnétique effective et un couplage d'échange inter-grains faible. L'aimantation de chaque petit grain va alors se retourner de manière continue et indépendante dans le champ magnétique inverse et ainsi une structure de parois de très petites tailles entre des grains voisins ne peut pas être résolue dans le contraste MFM. Dans des régions isolées du film où le couplage latéral est plus important, des parois de type Néel adjacentes peuvent être corrélées dans des structures plus longues, visibles dans le contraste MFM. La formation de ces structures de longueur importante est favorisée par un moment net faible de la couche magnétique qui correspond à une pression faible du champ magnétique sur les parois. En faisant des mesures MFM sous champ dans différentes régions d'un même échantillon, nous n'avons observé ces structures de parois de type Néel que dans des régions extrêmement isolées. Leurs disparitions s'accompagnent tout d'abord d'une augmentation du contraste MFM signe de l'accumulation de charges magnétiques suivie par une diminution du contraste vers la saturation négative.

Dans le cas du système $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}(3\text{nm})/\text{Ru}$, la taille des grains magnétiques ainsi que le couplage inter-grain sont plus importants. Un couplage plus grand détermine une longueur de corrélation de l'anisotropie locale effective plus large. De plus, le moment magnétique du $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ est supérieur à celui du Co. Ainsi le moment magnétique total de chacun des deux systèmes ayant la même épaisseur est différent même si l'on néglige le mélange des matériaux aux interfaces. Un moment magnétique plus grand signifie une friction contre la rotation des moments magnétiques plus importante. Le renversement magnétique est plus abrupt dans le cas du $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}(3\text{nm})/\text{Ru}$ à cause de la stabilité plus faible des parois Néel à

360° issues du renversement de l'aimantation. Cette stabilité plus faible provient du moment de centre de paroi plus grand dans le cas de cette couche. Grâce au couplage latéral inter-grain plus important, ainsi que la taille de grains plus grande, des contrastes de parois de type Néel corrélées peuvent être résolus dans les images MFM présentées dans la figure 4.12. La densité de parois sur une surface de 10 μm de taille latérale est supérieure à celle du Co(3nm)/Ru. La longueur de corrélation plus grande favorise la corrélation des parois adjacentes en augmentant leur longueur effective ce qui les rendent «discernables» dans les images MFM.

L'étude du renversement de l'aimantation dans les couches magnétiques individuelles est étendue à celle des structures antiferromagnétiques artificiels (AAF) constituées de ces couches uniques.

4.2.2. Propriétés microscopiques des systèmes antiferromagnétiques artificiels

Nous venons de voir dans la section précédente qu'une compétition entre les anisotropies locales et les interactions d'échange domine le développement de la structure en domaines dans les couches magnétiques uniques. Par rapport aux couches uniques, le couplage antiferromagnétique inter-couche dans un AAF rajoute des contributions supplémentaires à la nucléation et à la stabilité de la structure en domaines. En effet, dans un système AAF, des fluctuations de l'épaisseur de la couche séparatrice non - magnétique, induites par la rugosité de l'interface, sont responsables de fluctuations dans le couplage d'échange AF inter-couche. L'absence d'une anisotropie magnéto - cristalline et la présence d'une distribution spatiale du couplage AF empêche la rotation « monodomaine » de l'aimantation de la couche . De plus, les fluctuations latérales du couplage AF se traduisent par des centres de nucléation et de piégeage supplémentaires par rapport aux couches uniques. Par conséquent, la densité des parois augmentent en comparaison avec les couches uniques.

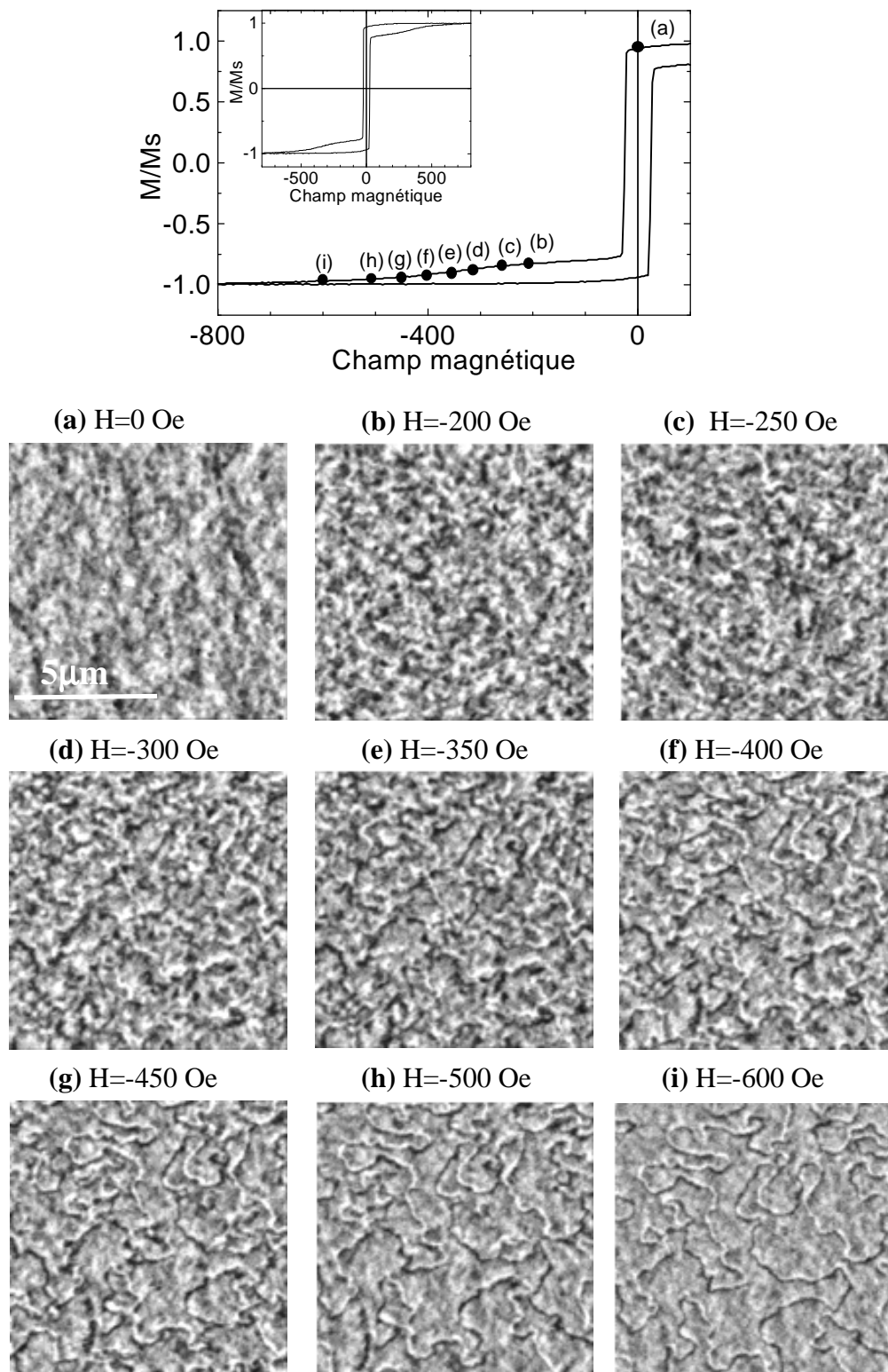
Préparation de l'état magnétique de l'AAF avant les mesures MFM

En partant de la saturation positive, où tous les moments magnétiques sont alignés dans la direction du champ appliqué positif, et en diminuant le champ appliqué jusqu'au plateau AF, l'aimantation du système AAF se retourne par la rotation de l'aimantation de la couche de moment magnétique le plus faible. Cette rotation vise à stabiliser une configuration antiparallèle des aimantations sous l'influence du couplage AF [Persat98]. Le retournement

de cette couche suit le mécanisme décrit pour les couches uniques. Pendant cette rotation, les régions où le couplage AF est le plus intense vont tourner les premières, car l'énergie de couplage l'importe sur l'énergie Zeeman. Pour chaque site de nucléation, le sens de rotation des moments est déterminé par l'orientation de l'anisotropie locale effective ou par des fluctuations thermiques. En diminuant le champ appliqué positif, les régions plus faiblement couplées vont ensuite être entraînées dans la rotation. Leur sens de rotation est imposé par les régions voisines si la distance entre les zones est inférieure à la *longueur de cohérence magnétique* définie par [BergIEEE93], [Berg98] : $\sqrt{t_M A / (-J_{AF})} \sim 5$ à 10 nm, où A est la constante d'échange de volume et t_M l'épaisseur d'une couche magnétique. A mesure que le champ appliqué est réduit, de plus en plus de domaines sont formés dans la couche dont l'aimantation tourne c'est à dire la couche fine de l'AAF et des parois de Néel sont créées à leurs jonctions.

A bas champ, vers le plateau AF, lorsque le couplage AF devient plus important que l'énergie Zeeman, des parois créées et existantes dans la couche fine peuvent être dupliquées par couplage AF dans la couche épaisse [TiusanPRBs1] (Voir chapitre 5). Tant que les angles des parois restent petits, la configuration magnétique avec une forte densité de parois reste énergétiquement favorable. Cependant, en réduisant le champ appliqué, l'énergie stockée dans les parois augmente et leur existence est compromise. Les parois vont alors s'annihiler progressivement dans les deux couches de l'AAF, en commençant par les régions où le couplage AF est le plus fort. Ainsi, dans le plateau AF, nous retrouvons une configuration magnétique dans laquelle les deux couches magnétiques de l'AAF sont dans une configuration antiparallèle, le moment net restant aligné dans la direction initiale du champ positif.

Ainsi, dans le plateau AF et cela jusqu'au champ appliqué nul, de larges régions uniformément aimantées apparaissent. Les moments magnétiques résultants de ces régions pointent tous dans des directions contenues dans un petit angle autour de la direction initiale du champ de saturation positif. Suivant le sens de rotation des moments résultants, cet angle peut être positif ou négatif.

**Figure 4.14.**

Images MFM mesurées durant le renversement du moment magnétique net du système AAF Si(111)/Cr/Fe/Cu/Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co (3nm)/AlO_x. Ces images sont mesurées pour une succession de champs appliqués, indiqués sur la courbe M-H jointe. L'aimantation de la pointe magnétique MFM est orientée perpendiculaire à la surface de l'échantillon.

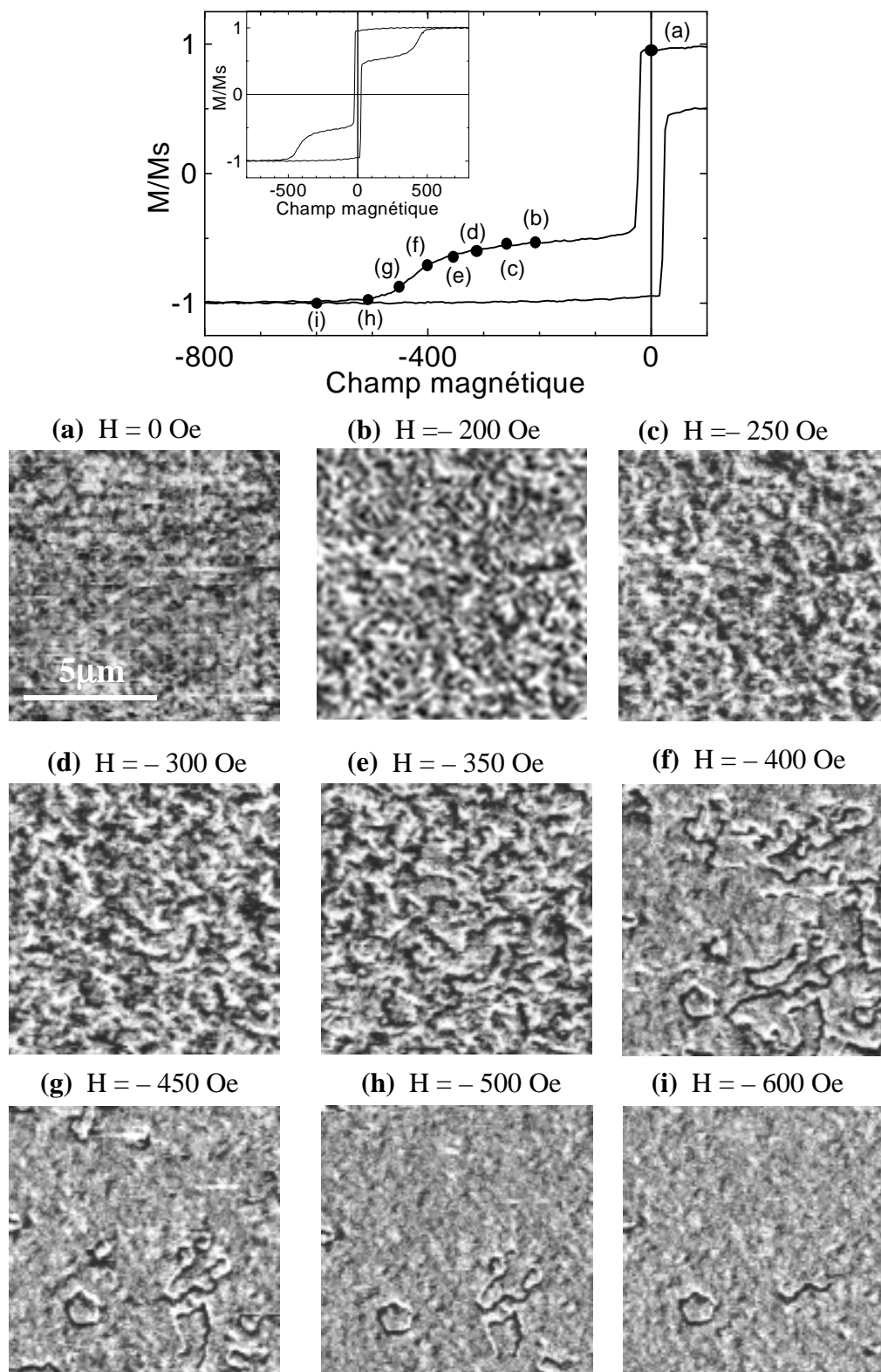


Figure 4.15.

Images MFM mesurées durant le renversement du moment magnétique net du système AAF Si(111)/Cr/Fe/Cu/Co(2nm)/Ru(0.8nm)/Co₅₀Fe₅₀ (3nm)/AlOx. Ces images sont mesurées pour une succession de champs appliqués, indiqués sur la courbe M-H jointe. L'aimantation de la pointe magnétique MFM est orientée perpendiculaire à la surface de l'échantillon.

Dans chacune de ces régions, dont la largeur est déterminée par la *longueur de cohérence magnétique* des moments magnétiques, l'aimantation des grains individuels forme une configuration de type ride magnétique constituée de petites fluctuations angulaires autour de la direction du moment résultant de la région. L'état rémanent est alors constitué, comme dans le cas des couches uniques, d'une distribution de faibles fluctuations aléatoires de l'orientation des moments magnétiques induites par des fluctuations de l'anisotropie locale effective. Cette structure est dupliquée dans les deux couches de l'AAF par l'intermédiaire du couplage antiferromagnétique. Dans les images MFM (figure 4.14 et 4.15, l'état (a)), nous pouvons distinguer dans l'état rémanent un contraste correspondant aux accumulations de charges dans les parois de Néel de petit angle, qui séparent des régions voisines dont l'aimantation est faiblement désorientée.

Mécanisme de renversement de l'aimantation nette de l'AAF autour de son champ coercitif

Dans les figures 4.14 et 4.15 sont présentées des images de microscopie à force magnétique (MFM) sous champ magnétique mesurées sur deux systèmes AAF de moments magnétiques nets différents : Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm) et Co (2nm)/Ru(0.8nm)/Co₅₀Fe₅₀(3nm). Les images sont enregistrées pour des valeurs significatives du champ magnétique appliqué, localisées sur les cycles d'aimantations associés aux images MFM.

Lorsque le champ magnétique est inversé dans la direction négative, les moments magnétiques contenus dans les régions où le couplage est plus faible (couplage d'échange latéral direct et/ou couplage AF indirect inter- couche) vont commencer à tourner en premier. Le sens de rotation est toujours dicté par l'anisotropie locale effective. En augmentant le champ négatif, l'aimantation dans des régions plus fortement couplées est entraînée en rotation. Pour ces régions, le sens de rotation est dicté par la rotation des régions voisines si la distance les séparant est inférieure à la longueur de cohérence magnétique et/ou est donné par l'anisotropie locale effective. Durant la rotation de l'aimantation des domaines, des parois de type Néel sont créées. A la fin du processus de renversement, lorsque l'aimantation dans les domaines est déjà retournée dans la direction du champ magnétique négatif, l'angle des parois de Néel est de 360°.

Le renversement de l'aimantation d'un AAF se différencie de celui d'une couche unique par la présence du couplage inter- couche qui augmente la friction locale contre la rotation. Le

développement de parois à 360° est plus prononcé dans les AAFs que dans les films uniques. En effet, les fluctuations du couplage AF et la duplication de la structure en domaines d'une couche à l'autre dans un AAF augmentent la densité des parois à 360° . Cette description du renversement de l'aimantation est illustrée par une analyse comparative des figures 4.14 (b) - (e) et 4.15 (b) - (e) concernant la formation des parois dans les systèmes Co/Ru/Co et Co/Ru/Co₅₀Fe₅₀ avec les figures 4.11 et 4.12 concernant l'évolution des domaines dans les couches uniques de Co et Co₅₀Fe₅₀ respectivement.

Comme nous venons de l'évoquer, non seulement la densité des parois est plus grande dans un AAF, mais aussi la stabilité des parois est augmentée. En effet, pour chaque paroi de Néel dupliquée dans les deux couches de l'AAF par le couplage AF, l'une possède un centre de paroi parallèle à la direction du champ appliqué et l'autre possède un centre de paroi antiparallèle à cette même direction. Cet effet a une importance majeure dans la stabilité des parois dans un AAF. Lorsque la couche épaisse de l'AAF développe des parois dont le centre est opposé à la direction du champ négatif appliqué, la couche fine développe des parois dupliquées dont le centre est orienté dans la direction du champ, ce qui les rendent énergiquement très stables. Ainsi, par rapport à une couche unique, la stabilité de l'aimantation de la couche épaisse par rapport au champ appliqué est augmentée. Il existe cependant un champ critique directement lié au couplage local pour lequel les parois de la couche épaisse vont disparaître. L'effondrement de ces parois intervient lorsque l'énergie Zeeman l'emporte sur le couplage d'échange provenant des parois stables localisées dans la couche fine de l'AAF.

Cette description du retournement de l'aimantation effective m_1 - m_2 de l'AAF est en accord avec les observations MFM concernant l'annihilation des parois dans la couche épaisse. En effet, d'après ce qu'on peut voir dans les figures 4.14 et 4.15 (f) - (h), les parois à 360° subsistent jusqu'à des champs magnétiques inverses grands pour lesquels l'aimantation dans les domaines est complètement inversée et saturée. Le champ nécessaire pour annihiler les parois à 360° est inversement proportionnel au facteur Q de l'AAF [BergJMMM97], [TiusanPRB00]. En effet, plus Q est grand, plus le moment net d'un ensemble de parois couplées AF, localisées dans les deux couches de l'AAF est petit. Ainsi, la pression exercée par le champ magnétique sur les parois est plus petite ce qui rend la paroi plus stable. Les observations MFM, figure 4.14 et 4.15 (f) - (h), montrent que la stabilité des parois à 360° augmente lorsque le moment magnétique net de l'AAF diminue.

Pour un champ magnétique donné, la densité de parois est toujours plus grande et la structure des parois est plus stable dans l'AAF Co/Ru/Co que dans à l'AAF Co/Ru/CoFe. Cela est possible car le moment net de l'AAF Co/Ru/Co est plus petit que celui de l'AAF Co/Ru/CoFe. Pour le champ magnétique maximal disponible dans notre système expérimental ($H = -600$ Oe), la densité résiduelle des parois à 360° stables dans l'AAF Co/Ru/CoFe est beaucoup plus faible que dans le système Co/Ru/Co. Dans ce dernier, nous n'arrivons pas à annihiler les parois créées lors du renversement.

Pour finir, le moment net d'un système AAF détermine également, tout comme dans le cas des couches uniques, la taille des parois et des domaines stabilisés pour un champ extérieur donné. Pour un moment net plus grand de l'AAF Co/Ru/CoFe, la taille des parois et des domaines est plus petite que dans l'AAF Co/Ru/Co. Ces constatations proviennent de l'analyse des figures 4.14 et 4.15 (e) - (i).

Pour récapituler, nous avons montré que le renversement du moment magnétique net $m_1 - m_2$ d'un système antiferromagnétique artificiel, dans le plateau AF, conduit à la formation de parois de type Néel à 360° . Après le renversement complet des domaines magnétiques, ces parois deviennent instables dans la couche épaisse et leur champ d'annihilation est inversement proportionnel au facteur Q . En contraste, les parois restent stables dans la couche fine dans la fenêtre opérationnelle de l'AAF. Elles commencent à disparaître vers la fin du plateau AF mais surtout dans le flanc qui conduit à la saturation négative.

L'annihilation des parois dans la couche fine se fait par l'extension de la région centrale orientée selon la direction du champ pour des champs magnétiques où l'énergie Zeeman l'emporte sur le couplage AF avec la couche épaisse.

L'évolution de la structure en domaines sous champ magnétique gouverne les propriétés de transport des jonctions tunnel dont la couche dure est constituée d'un AAF. Nos interprétations des images MFM seront confrontées en détail avec les cycles de transport tunnel mesurés sur des jonctions tunnel utilisant les AAFs. En effet, nous montrerons comment on peut analyser de manière individuelle, l'évolution de la structure en domaines dans chacune des couches d'un système AAF en utilisant le transport tunnel polarisé en spin dans les JTM.

4.2.3. Stabilité des parois à 360° pendant le renversement du moment net d'un système AAF

Dans cette section, nous montrons à l'aide d'un modèle mathématique l'origine de la stabilité des parois de type Néel à 360° dans un système antiferromagnétique artificiel. Dans un tel système, l'énergie totale des deux couches magnétiques d'épaisseurs t_1 et t_2 , d'aimantations M_1 et M_2 , couplées AF, sous champ magnétique est donnée par l'équation (4.1) :

$$E = \int dx \left\{ A \left[t_1 \left(\frac{d\theta_1}{dx} \right)^2 + t_2 \left(\frac{d\theta_2}{dx} \right)^2 \right] + K_L [t_1 \sin^2 \theta_1 + t_2 \sin^2 \theta_2] \right\} + \int dx \{ J [\sin \theta_1 \sin \theta_2 + \cos \theta_1 \cos \theta_2] - H [M_1 t_1 \cos \theta_1 + M_2 t_2 \cos \theta_2] \} \quad (4.1)$$

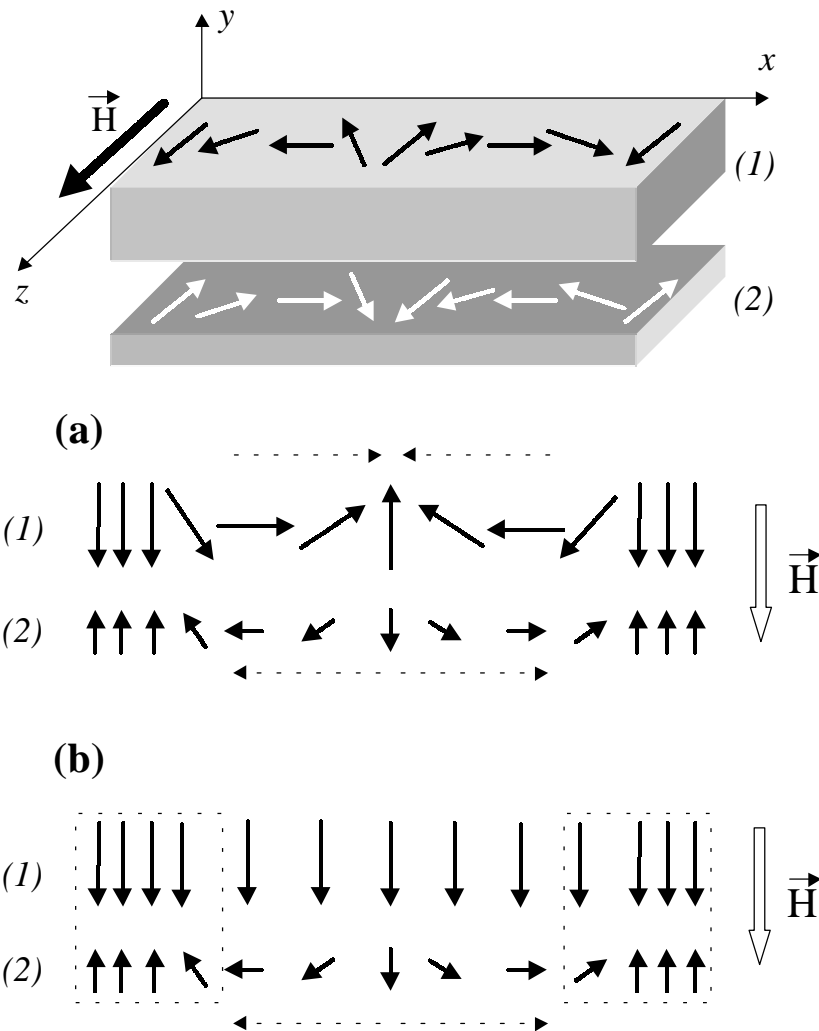


Figure 4.16. Illustration de l'orientation des moments magnétiques dans un ensemble de deux parois de Néel à 360° couplées AF. (a) configuration d'équilibre à deux parois. En augmentant le champ H , le centre de la paroi dans la couche (1), opposé à la direction du champ, se contracte. Dans la couche fine (2), le centre de la paroi est orienté selon la direction du champ et elle se dilate. (b) la paroi dans la couche épaisse (1) est annihilée, alors que l'extension du centre de la paroi dans la couche (2) est bloquée par le couplage AF avec la couche (1). En effet, la paroi dans la couche fine reste stable jusqu'à des champs où l'interaction Zeeman surmonte le couplage AF.

Les deux premiers termes de l'équation contiennent l'énergie d'échange intra-couche caractérisée par la constante d'échange A et l'énergie d'anisotropie locale effective K_L , qui inclut aussi bien les énergies magnétostatiques dues aux charges magnétiques dans le plan du film que la moyenne de l'anisotropie magnéto-cristalline sur la longueur de corrélation d'échange. Toutes deux varient comme $\sin^2\theta$ où θ est l'angle entre le champ appliqué à la saturation positive et la direction des moments magnétiques locaux. Les troisième et quatrième termes contiennent l'énergie de couplage inter-couche (J est l'intensité du couplage AF) et l'énergie Zeeman due au champ magnétique H . θ_1 et θ_2 donnent l'orientation angulaire des moments magnétiques par unité de surface $M_1 t_1$ et $M_2 t_2$ par rapport à la direction du champ appliqué pour obtenir la saturation positive. Ainsi, $\theta_1(x)$ et $\theta_2(x)$ donnent les profils des parois selon la direction x (voir la figure 4.16).

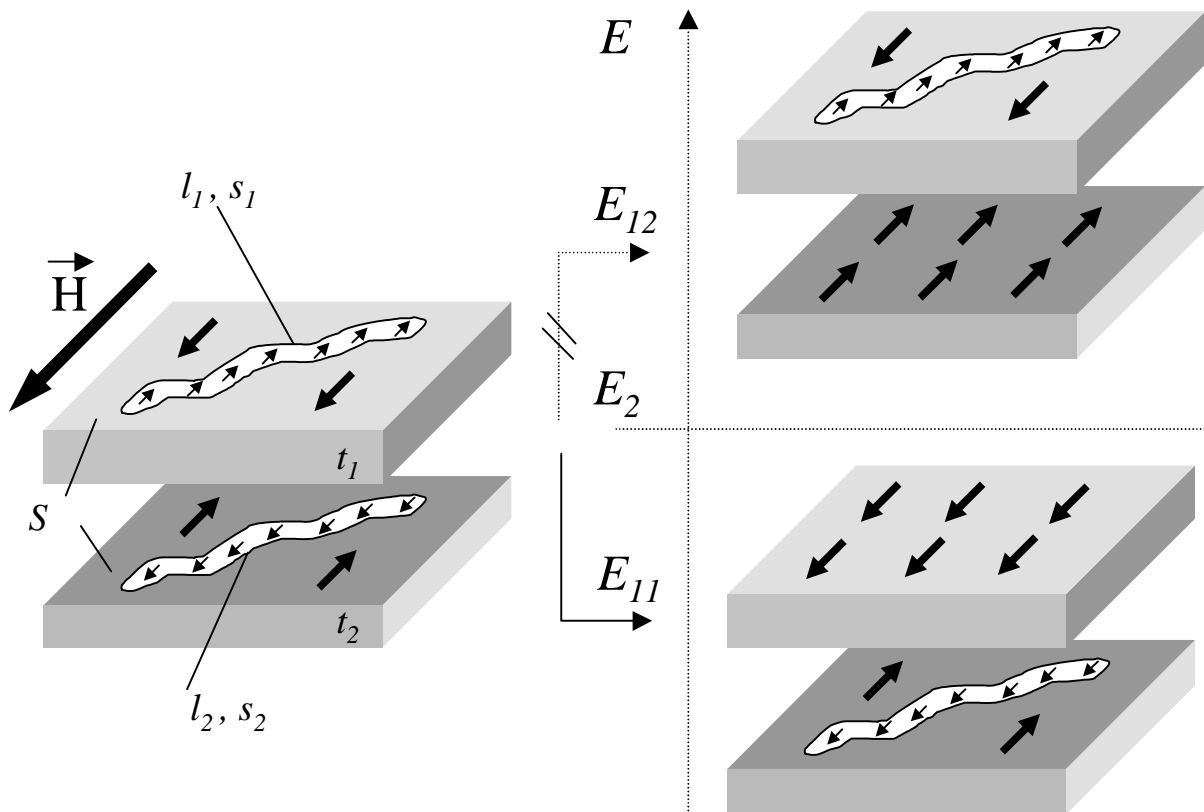


Figure 4.17. Modèle utilisé pour étudier la stabilité des parois à 360° dans les deux couches magnétiques d'un système AAF. A partir d'une configuration à deux parois, en augmentant le champ négatif, la situation énergétiquement favorable E_{11} à partir d'un champ critique est obtenue lorsque la paroi disparaît dans la couche épaisse et subsiste dans la couche fine. Le champ critique représente alors une mesure locale de l'intensité du couplage AF et de l'anisotropie. La situation inverse, c'est à dire lorsque la paroi disparaît dans la couche fine et subsiste dans la couche épaisse, est énergétiquement défavorable E_{12} dans la fenêtre en champ où nous étudions l'annihilation des parois à 360° .

Comme nous l'avons dit auparavant et le montrerons au chapitre suivant, des parois à 360° dupliquées antiferromagnétiquement apparaissent dans chaque couche de l'AAF durant le renversement de son moment magnétique net. Afin d'estimer la stabilité de ces parois dans un champ magnétique extérieur, nous proposons un modèle simplifié.

Considérons des volumes magnétiques de surface totale S qui sont couplés AF et qui sont centrés l'un sur l'autre (voir la figure 4.17). Supposons que dans chaque volume, une paroi à 360° existe. Soit l_1 et s_1 , respectivement l_2 et s_2 , le périmètre et la surface de la paroi dans la couche épaisse 1, respectivement dans la couche fine 2. Dans la couche épaisse, l'aimantation des domaines est orientée dans la direction du champ alors que celle du centre de la paroi elle s'y oppose.

Dans la couche fine, l'aimantation des domaines est opposée à la direction du champ alors que celle du centre de paroi est alignée selon le champ.

L'énergie totale $E_2(H)$ d'une telle configuration à «deux parois» est calculée et comparée à l'énergie de configurations à «une paroi» lorsque nous supposons que :

(i) la paroi disparaît dans la couche épaisse et subsiste dans la couche fine $E_{11}(H)$ ou (ii) la paroi disparaît dans la couche fine et subsiste dans la couche épaisse $E_{12}(H)$.

$$E_2(H) = -MH [S(t_1 - t_2) - 2(s_1 t_1 - s_2 t_2)] + \sigma(l_1 t_1 + l_2 t_2) - 2J(S/2 - s_1 + s_2) \quad (4.2)$$

$$E_{11}(H) = -MH [S(t_1 - t_2) + 2s_2 t_2] + \sigma l_2 t_2 - 2J(S/2 - s_2) \quad (4.3)$$

$$E_{12}(H) = -MH [S(t_1 - t_2) - 2s_1 t_1] + \sigma l_1 t_1 - 2J(S/2 - s_1) \quad (4.4)$$

La différence d'énergie entre les configurations à «deux parois» et à «une paroi» est :

$$\Delta E_1(H) = E_2(H) - E_{11}(H) = 2MH s_1 t_1 + \sigma l_1 t_1 - 2J[2s_2 - s_1] \quad (4.5)$$

La disparition de la paroi dans la couche épaisse et sa subsistance dans la couche fine, pour une valeur de champ H donnée, devient énergétiquement favorable lorsque $\Delta E_1(H) > 0$. Cette inégalité est vérifiée pour des champs :

$$H \geq \frac{J(2s_2 - s_1) - \sigma l_1 t_1 / 2}{M S_1 t_1} = H_{xc} - H_{\text{anisotropie}} \quad (4.6)$$

Il apparaît alors que la stabilité de la paroi est déterminée par la compétition entre la somme de l'énergie Zeeman et de l'énergie de paroi qui tendent à annihiler les parois et de l'énergie du couplage qui tend à préserver la paroi et qui joue le rôle d'une source de piégeage. Plus le couplage d'échange AF est grand, plus le champ pour lequel la paroi devient métastable est grand. Plus le moment de la couche épaisse est grand, plus le champ critique est faible car la pression du champ sur la paroi augmente avec le moment net. Des valeurs de champs critiques peuvent être estimées à partir des images MFM, en analysant la disparition des parois en fonction du champ magnétique appliqué. Ces valeurs peuvent nous fournir des mesures *locales* de l'intensité du couplage et de l'anisotropie effective.

Supposons maintenant que la paroi disparaît dans la couche fine et subsiste dans la couche épaisse de l'AAF. La variation totale d'énergie serait alors égale à :

$$\Delta E_2(H) = E_2(H) - E_{12}(H) = -2MH s_2 t_2 + \sigma l_2 t_2 - 2J s_2 \quad (4.7)$$

Ce processus est énergétiquement défavorable car l'énergie Zeeman et l'énergie de couplage entraînent toutes deux une diminution de $\Delta E_2(H)$. Dans l'intervalle de champ où les parois à 360° sont supposées s'annihiler, la disparition d'une paroi dans la couche fine et la subsistance de son image dupliquée dans la couche épaisse aurait pour effet d'augmenter l'énergie totale du système, ce qui en fait un processus impossible.

En conclusion, durant le renversement magnétique de l'AAF, les parois créées dans la couche épaisse sont dupliquées par échange AF dans la couche fine. Lorsque le champ magnétique augmente, les parois disparaissent dans la couche épaisse par contraction de leur centre. L'annihilation se produit à un champ critique qui dépend du couplage local AF et de l'anisotropie locale effective. Les parois localisées dans la couche fine sont stables, leur centre de paroi étant orienté selon la direction du champ appliqué. Pour ces parois, l'énergie Zeeman et le couplage d'échange se comportent de manière similaire, comme des sources de piégeage.

Tous ces aspects sur l'évolution différente de la structure en domaines et sur la stabilité différente des parois dans les deux couches de l'AAF se retrouvent dans le transport tunnel polarisé en spin dans des jonctions utilisant le système AAF. La magnétisme de la couche fine ou de la couche épaisse de l'AAF peut alors être étudié de manière sélective suivant la couche qui est mise en contact avec la barrière tunnel [TiusanPRBs1]. Ce dernier aspect fera l'objet du chapitre 5 de cette thèse.

4.2.4. Analyse du contraste MFM donné par une paroi à 360°

Lorsque le microscope à force magnétique est utilisé dans le mode de mesure *détection de phase*, la pointe MFM, aimantée dans la direction z perpendiculaire à la surface, sonde la dérivé seconde de la composante verticale du champ de fuite ($\partial^2 H_d / \partial z^2$) [Rugar90] [Saenz98]. La compréhension des images MFM passe donc par la modélisation de la structure micromagnétique des configurations d'aimantation pour l'obtention d'images typiques comme celle représentées dans la figure 4.18 (a). Elle présente une image d'une paroi à 360° circulaire séparant des régions uniformément aimantées (voir la figure 1.15 (i)). Ce type de paroi peut également être retrouvé dans les couches uniques (dans les figures 4.11 (g) respectivement 4.12 (h)).

Si l'on regarde les cycles d'aimantation (figures 4.11, 4.12, 4.14, 4.15), on peut voir que l'aimantation de la couche est quasiment renversée pour des valeurs de champs magnétiques correspondant à la stabilisation de parois circulaires à 360°. Ainsi, dans les domaines, l'aimantation est orientée dans la direction du champ négatif. Le contraste MFM n'est donné que par le champ de fuite de la paroi qui subsiste après le renversement de l'aimantation. La structure magnétique d'une paroi circulaire à 360°, proposée par Heyderman et al. [Heyd91], Gilles et al. [Gill95] et Cho et al. [Cho99] est représentée dans la figure 4.18 (b). Cette structure peut être utilisée pour expliquer tous les contrastes attendus pour les différentes orientations des parois à 360° par rapport à la direction du champ et à l'aimantation dans les domaines.

Nous avons simulé le contraste MFM dans les cas où la paroi est soit parallèle, soit perpendiculaire à la direction du champ magnétique appliqué.

Chaque configuration est définie par un certain profil d'aimantation [Pott70], [Hubert95]

$\vec{M}(x,y,z)$.

$$\vec{M}^{\parallel}(x, y, z) = \frac{c_1^2}{c_1^2 + [(x - \mu_1) / \Delta]^2} + \frac{c_2^2}{c_2^2 + [(x - \mu_2) / \Delta]^2} \quad (4.8)$$

$$\vec{M}^{\perp}(x, y, z) = c_1 \arctan[(x - \mu_1) / \Delta] + c_2 \arctan[(x - \mu_2) / \Delta] \quad (4.9)$$

Les paramètres c_1 , c_2 , μ_1 , μ_2 , Δ , sont ajustés afin de reproduire le profil de paroi correspondant, de largeur Δ . Dans chaque configuration, la composante selon l'axe verticale z

du champ de fuite, H_d^z , a été calculée à partir de la densité de charge magnétique $\rho(x,y,z)$, correspondant à une paroi à 360° .

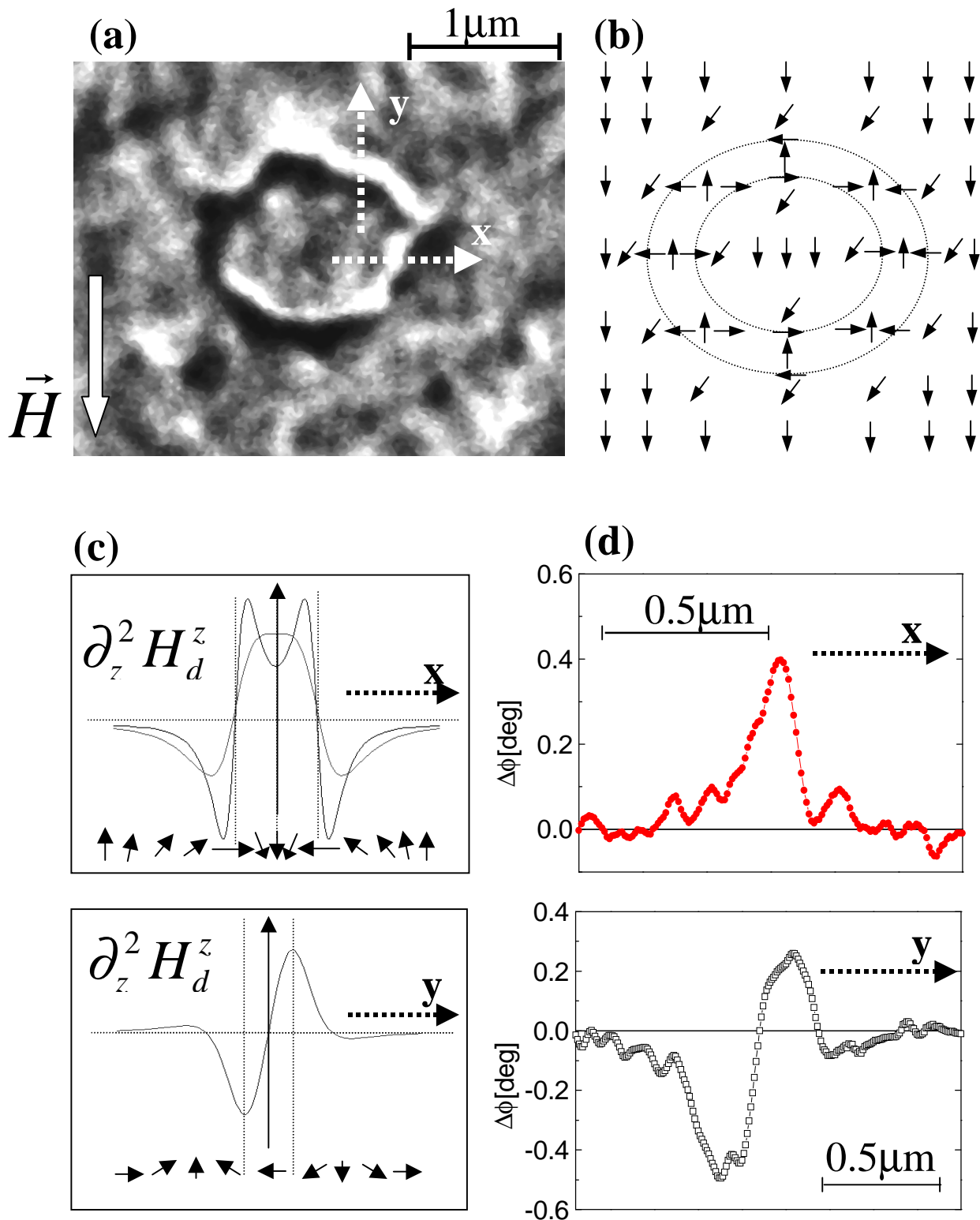


Figure 4.18. Contraste MFM mesuré (a) et configuration de l'aimantation (b) pour une paroi à 360° circulaire. Les contrastes MFM simulés et calculés dans deux situations distinctes, lorsque la paroi est parallèle ou perpendiculaire à la direction du champ (c), sont en accord avec les profils des sections mesurées dans les images MFM (d).

$$\rho(x, y, z) = -\vec{\nabla} \cdot \vec{M}(x, y, z) \quad (4.10)$$

Le potentiel scalaire Φ peut être obtenu à partir de l'équation de Poisson :

$$\Delta\Phi(x, y, z) = -4\pi \rho(x, y, z) \quad (4.11)$$

Il nous permet de calculer le champ de fuite :

$$\vec{H}_d(x, y, z) = -\vec{\nabla}\Phi(x, y, z) \quad (4.12)$$

Puis, le signal MFM peut être évalué de manière simple à l'aide de la dérivée seconde du champ de fuite : $\partial^2 H_d / \partial z^2$.

Les résultats de la simulation, reportés dans la figure 4.18 (c), sont en accord avec les profils des sections mesurées sur les images MFM (figure 4.18 (d)).

4.3. Magnétisme du sous-système magnétique doux

Jusqu'à présent, nous avons évoqué les propriétés macroscopiques et microscopiques de l'AAF qui constitue le système magnétique dure de la jonction tunnel magnétique. L'étude détaillée de ses propriétés nous a amené à mieux comprendre la structure et le fonctionnement du système antiferromagnétique artificiel, notamment l'évolution de ses phases magnétiques dans un champ magnétique externe.

Dans ce paragraphe, nous focalisons la discussion sur les propriétés magnétiques du système magnétique doux. Dans le langage technique, la couche douce est appelée *couche de détection* ou *DL (detection layer)*. En effet, elle « détecte » et filtre le courant d'électrons polarisés en spin injectés par effet tunnel de la couche dure à travers la barrière isolante.

4.3.1. Architecture du sous-système magnétique doux

Afin d'obtenir l'amplitude de variation maximale du courant dans une jonction tunnel magnétique utilisant l'architecture *douce- dure*, il faut que la couche dure soit magnétiquement rigide dans l'intervalle de champ pour lequel l'aimantation de la couche douce peut être renversée. Suivant les applications recherchées, les propriétés de la couche douce peuvent être différentes alors que la couche dure doit toujours rester rigide, donnant ainsi une direction de référence magnétique.

Pour des capteurs de position angulaire, la réponse magnétique de la couche de détection doit être isotrope dans le plan. Ainsi, la couche de détection doit être extrêmement douce. Pour des applications de stockage de l'information, par exemple dans les mémoires magnétiques non volatiles, les restrictions sur les propriétés de la couche de détection sont plus sévères. En effet, il faut contrôler le renversement de l'aimantation de la couche de détection lors de cycles d'écriture/ lecture des bits d'information dans l'élément de mémoire. Pour cela, il faut supprimer tous les phénomènes responsables du couplage magnétique entre la couche de détection et les autres sous- systèmes magnétiques qui entrent dans la composition de la JTM. De ce point de vue, les meilleures propriétés sont obtenues pour des matériaux ayant une faible anisotropie et un faible coefficient de magnétostriction. En ce que concerne l'amplitude du signal TMR, il faut que les matériaux à l'interface avec la barrière tunnel confèrent une grande polarisation de spin aux électrons d'après l'équation (1.2.) [Jullière].

Pour répondre à toutes ces requêtes, l'architecture de la couche de détection repose souvent sur la combinaison de deux couches magnétiques (système bicouche). L'une des deux couches, de faible épaisseur, est constituée d'un matériau magnétique à forte polarisation comme le Co ou le $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$. Elle est placée à l'interface avec la barrière tunnel pour augmenter la polarisation d'interface. L'autre couche, ayant une épaisseur significativement plus grande, est constituée d'un matériau doux de faible coefficient de magnétostriction. Cette seconde couche impose ses caractéristiques de renversement magnétique à l'ensemble de la bicouche de détection.

Du point de vue de l'élaboration, la couche douce est déposée directement sur la barrière d'oxyde. Cela joue un rôle important sur la croissance et les propriétés magnétiques. En effet, il est communément admis que la croissance de métaux de transition sur des isolants est tridimensionnelle, entraînant ainsi la formation d'îlots pour des dépôts de faibles épaisseurs. Expérimentalement, les couches magnétiques de Fe, Co ou d'alliage $\text{Co}_x\text{Fe}_{1-x}$ riche en Fe avec des épaisseurs comprises entre 3 et 9 nm présentent toutes des propriétés magnétiques satisfaisantes pour la réalisation du système magnétique doux. En effet, les champs coercitifs de tous ces matériaux sous forme de films minces sont inférieurs à 100 Oe. Dans une architecture de JTM basée sur l'utilisation d'un AAF comme système magnétique rigide, des champs coercitifs de quelques dizaines d'Oersteds pour la couche douce nous permet d'opérer correctement la jonction tunnel car pour les AAF Co/Ru/Co et Co/Ru/ $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$, le moment magnétique résultant se comporte comme un bloc magnétiquement rigide dans des champs inverses allant jusqu'à -250 Oe.

Parmi toutes ces couches de détection, le système le plus doux est composé d'une couche unique de Fe. En effet, le champ coercitif de la couche de Fe dans un empilement Si/couche tampon/AAF/ AlO_x /Fe(6nm)/Cu/Cr peut être abaissé à 20 Oe environ. Cependant, l'utilisation du Fe comme couche douce dans les JTMs a des conséquences négatives sur le transport tunnel polarisé en spin et notamment sur l'amplitude de la magnétorésistance tunnel (TMR). Plusieurs études ont montré que lorsque le Fe est directement en contact avec l'oxyde, l'amplitude de la TMR diminue. Cette diminution est directement liée à une perte de moment magnétique et par conséquent de polarisation à l'interface Oxyde/Fe. Elle est due à l'oxydation du Fe en contact direct avec l'oxyde étant donnée sa forte réactivité chimique en présence d'oxygène. En fait, l'affinité chimique du Fe/O est comparable à celle du Al/O. Des données thermodynamiques sur les oxydes, présentées dans le tableau 4.1, nous permettent

une comparaison entre les affinités à l'oxygène des différentes espèces métalliques présentes dans la structure d'une jonction tunnel à base de l' Al_2O_3 . Dans une situation réelle, lorsque la stoechiométrie de l'oxyde d'aluminium n'est pas parfaite ou que l'aluminium est sur- ou sous-oxydé, la formation des liaisons chimiques Fe-O est très probable, conduisant à des oxydes de Fe à l'interface AlO_x/Fe .

	Energ. d'atom. 25°C (kJ/oxyg.)	Energ. d'atom. 25°C (kJ/mol.)	ΔG_f (kJ/mol)	ΔH_f (kJ/mol)	Charge Partielle $\text{O}^{\delta-}$	Charge Partielle $\text{M}^{\delta+}$
Al_2O_3	1018	1527	-1582	-1638	-0.31	+0.46
FeO	928	928		-272	-0.40	+0.40
Fe_2O_3	802	1203	-742	-824	-0.33	+0.50
Fe_3O_4	836	1114	-1015	-1072		
CoO	910	910	-214	-239	-0.40	+0.40
Co_3O_4	776	1034	-774	-800		
O_2	500	500				

	Energ. d'atom. 25°C (kJ/mol.)		Energ. D'ionisatio n 1^{ère} (kJ/mol)	Energ. D'ionisatio n 2^{ème} (kJ/mol)	Energ. D'ionisatio n 3^{ème} (kJ/mol)	Energ. D'ionisatio n 4^{ème} (kJ/mol)
Al	322		585	1822	2746	11560
Fe	417		765	1567	2960	
Co	425		761	2069	3235	

Tableau 4.1. Données thermodynamiques sur les oxydes. ΔG_f , ΔH_f : enthalpie libre et enthalpie de formation, δ^- charge partielle portée par l'oxygène, δ^+ charge partielle portée par le métal.

Afin d'éviter ces effets négatifs tout en bénéficiant du faible champ coercitif du Fe, nous avons rajouté une couche de Co(1nm) à l'interface avec l'oxyde. Ainsi le système magnétiquement doux est constitué par la bicouche Co(1nm)/Fe(6nm). La réactivité chimique plus faible du Co va prévenir l'oxydation du Fe. Il y a de fortes chances qu'à l'interface avec l'oxyde, on obtienne un alliage $\text{Co}_x\text{Fe}_{1-x}$ étant donnée l'épaisseur faible du Co et que le Fe et le Co sont totalement miscibles à la température ambiante. La stabilité plus grande de l'alliage $\text{Co}_x\text{Fe}_{1-x}$ assure une interface métal/oxyde bien définie. Des JTMs utilisant des bicouches Co(x nm)/Fe(6nm), avec des épaisseurs plus faibles ($x=0.5\text{nm}$) ou plus élevées ($x=2\text{nm}$) de la couche de Co, présentent un signal TMR réduit par rapport au système Co(1nm)/Fe(6nm). Plusieurs effets peuvent être à l'origine de ces résultats.

Pour une épaisseur de Co de 0.5nm, le Co ne forme pas une couche continue car il ne mouille pas la surface d'alumine. En effet, pour cette épaisseur, le Co forme des îlots permettant au Fe de rester en contact avec l'oxyde sur de larges surfaces. Ainsi, entre les îlots de Co, le Fe s'oxyde et diminue localement la polarisation de spin et donc le signal TMR. Pour une épaisseur de Co de 2nm, une couche de Co sans Fe est préservée à l'interface métal/oxyde, l'alliage entre le Co et Fe ne se trouve alors plus en contact avec la barrière. Tout comme nous l'avons évoqué dans le cas du Ru, nous pensons que l'intermélange du Co avec Al_2O_3 est plus grande que celui de l'alliage CoFe avec Al_2O_3 . On peut s'attendre à une perte de moment magnétique par l'effet du mélange du Co à l'interface et donc à une perte de polarisation. Pour ces raisons, nous avons également étudié les propriétés magnétiques de l'alliage Co_xFe_{1-x} , empilé sur la barrière d'alumine. Pour combiner la forte polarisation offerte par l'alliage équiatomique $Co_{50}Fe_{50}$, très stable chimiquement, avec le faible coercitif du Fe, nous avons choisi le système $Co_{50}Fe_{50}(1nm)/Fe(6nm)$. L'utilisation d'une couche unique d'alliage Co_xFe_{1-x} comme système doux dans une JTM n'a pas été retenue. En effet, ces couches sont très rigides à cause de leur coefficients de magnétostriction importants.

4.3.2. Couplage magnétique entre les deux électrodes d'une JTM

Au-delà des aspects concernant le magnétisme des interfaces métal ferromagnétique/oxyde et des rigidités magnétiques de chaque matériau magnétique, un autre paramètre important est le couplage magnétique entre les deux électrodes magnétiques de la JTM séparées par la barrière d'oxyde. En fonction de l'intensité de ce couplage, les propriétés magnétiques des électrodes peuvent être fortement modifiées. En effet, la rigidité magnétique apparente du système dur peut être diminuée et celle de la couche douce augmentée. Ce couplage entraîne également des modifications des mécanismes impliqués dans le renversement de l'aimantation des électrodes ainsi que dans la réponse d'une JTM sous champ magnétique. De nos jours, des études approfondies sont consacrées aux mécanismes impliqués dans le couplage entre les électrodes magnétiques d'une JTM [AngAPL00] [ThomPRL00].

Dans la littérature, différents mécanismes ont été proposés pour expliquer l'origine du couplage magnétique pouvant exister entre deux systèmes ferromagnétiques séparés par une barrière tunnel :

- a) Couplage ferromagnétique local par les discontinuités de la barrière tunnel. Les deux systèmes ferromagnétiques sont directement en contact. Ces discontinuités sont communément appelées « *pinholes* » ou trous d'épingle.
- b) Couplage de type Slonczewski par les électrons qui traversent la barrière par effet tunnel. Deux types de couplage ont été rapportés par Slonczewski [Slonczewski89].
- le couplage d'échange effectif interfacial de type Heisenberg, dont l'amplitude et le signe dépendent des paramètres de la barrière tunnel (notamment de la hauteur) et des décalages des bandes de spin « up » et de spin « down » des matériaux ferromagnétiques.
 - le couplage d'échange dissipatif qui est proportionnel à la tension de polarisation de la JTM.

Nous ne détaillons pas ces deux premières sources de couplage car, comme nous allons le voir dans la suite du manuscrit, elles ne sont pas à l'origine du couplage qui apparaît entre les électrodes magnétiques de nos jonctions.

c) Les couplages *magnétostatiques*

- Couplage *magnétostatique* lié à la topographie des interfaces et à l'ondulation des interfaces « bosselées à la manière d'une peau d'orange ». Ce couplage, de type *peau d'orange*, peut être ferromagnétique lorsque les rugosités des interfaces métal/ oxyde sont corrélées ou anti-ferromagnétique dans le cas contraire [Néel62][Demo94].

Dans un modèle idéal, comme celui représenté dans la figure 4.19, l'énergie de couplage entre les deux couches magnétiques, en supposant que les deux interfaces présentent des ondulations sinusoïdales d'amplitudes différentes, s'écrit [Néel62]:

$$E_c(\varphi_1, \varphi_2) = -\sqrt{2} \pi^2 \omega^2 M_s \cos(\varphi_1 - \varphi_2) \exp\left(-\frac{2\sqrt{2}\pi}{L} t\right) \quad (4.13)$$

où $\alpha = \varphi_1 - \varphi_2$ est l'angle entre les aimantations des deux couches ferromagnétiques 1 et 2, ω est l'amplitude des ondulations, L est la longueur d'onde des ondulations et t l'épaisseur de la couche intermédiaire.

- Couplage *magnétostatique* dû à la présence d'un champ démagnétisant planaire. Ce couplage est significatif uniquement après structuration des films à l'aide des techniques de la

microélectronique. Ce couplage est de type antiferromagnétique et devient de plus en plus important lorsque la taille latérale de la JTM est réduite à des dimensions micrométriques voir sub-micrométriques.

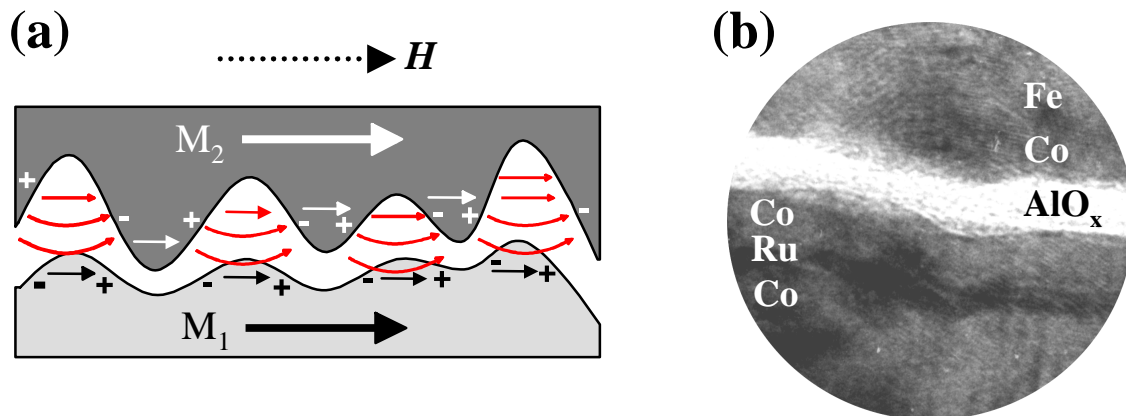


Figure 4.19. (a) Modèle utilisé pour expliquer le couplage de type peau d'orange ; (b) Image TEM qui illustre la corrélation des rugosités aux interfaces métal/oxyde pour un échantillon réel de type JTM.

- Couplage par les *champs de dispersion* des inhomogénéités magnétiques des couches ferromagnétiques. Des études récentes ont permis de mettre en évidence la présence d'un autre type de couplage dans les JTMs [ThomPRL00]. Une distribution inhomogène d'aimantation dans une des couches ferromagnétiques d'une JTM (c'est à dire l'existence de parois de domaines ou de vortex) crée des champs de dispersion locaux qui peuvent induire un couplage entre les couches. L'effet des champs de fuite, créés par une paroi dans un film ferromagnétique, sur le champ de nucléation d'un autre film ferromagnétique a déjà été rapporté par Fuller et al. [FullJAP62]. Pour des applications, les effets de ces interactions peuvent être dramatiques. Elles peuvent par exemple entraîner la désaimantation de la couche dure d'une JTM par des cycles répétés de renversement de la couche douce [GidSci98].

En conclusion, en supposant que la barrière tunnel est continue, les principaux types d'interaction entre couches magnétiques d'une JTM sont *magnétostatiques*. Les caractéristiques magnétiques de la couche douce ainsi que les interactions entre les électrodes magnétiques peuvent être analysées par des mesures de cycles mineurs d'aimantation en magnétométrie à gradient de champ. Dans ce cas, les champs magnétiques appliqués permettent de modifier l'état magnétique de la couche douce tout en conservant la couche dure dans un état magnétique donné. Dans le paragraphe suivant, nous présentons les propriétés magnétiques macroscopiques des couches de détection, analysées par des mesures

de magnétométrie à gradient de champ alternatif sur des films continus, ainsi que leur propriétés magnétiques microscopiques, analysées par des mesures de microscopie à force magnétique.

4.3.3. Magnétisme du sous-système magnétique doux, à l'échelle macroscopique et microscopique

Le renversement de l'aimantation de la couche de détection est étudié dans des champs magnétiques compris entre +/- 100 Oe, suffisamment faibles pour ne saturer que le système magnétique doux et préserver l'AAF dans une configuration d'aimantation rigide. De manière systématique, trois histoires magnétiques ont été utilisées pour parvenir à la compréhension des différents mécanismes de couplage.

Histoire magnétique 1, cycle de type 1

Dans un premier temps, l'aimantation de l'échantillon est saturée dans un champ positif à +13 kOe. Puis, une mesure du cycle M-H est réalisée pour des champs compris entre +/- 100 Oe (figure 4.20 (a), (b), (c), branche I). Après saturation en champ positif à +13 kOe, lorsque la mesure M-H commence à 100 Oe, l'AAF se trouve dans une configuration antiferromagnétique, son moment net étant orienté selon la direction du champ de saturation positif. Dans un cycle de type 1, l'AAF conserve son moment net rigide, orienté selon la direction initiale du champ appliqué.

Histoire magnétique 2, cycle de type 2

Dans un premier temps, l'aimantation de l'échantillon est saturée dans un champ positif à +13 kOe. Puis, une mesure d'un premier segment du cycle M-H est réalisée pour des champs compris entre +100 Oe et -100 Oe. Ensuite, l'aimantation de l'échantillon est saturée dans un champ négatif à -13 kOe. Puis, une mesure d'un second segment du cycle M-H est réalisée pour des champs compris entre -100 Oe et +100 Oe (figure 4.20, branche II). Dans un cycle de type 2, le premier segment du cycle M-H dans l'intervalle +100 Oe/-100 Oe est identique à celui du cycle de type 1 (figure 4.20). Cependant, après saturation de l'AAF dans un champ négatif de -13 kOe, le retournement de la couche douce dans le segment de champ -100 Oe /+100 Oe se fait avec le moment net de l'AAF orienté selon la direction du champ négatif appliqué. Les deux segments de cycle M-H correspondent alors au renversement du moment

de la couche de détection d'une configuration parallèle à une configuration antiparallèle des aimantation avec le moment net de l'AAF.

Histoire magnétique 3, cycle de type 3

Dans un premier temps, l'échantillon est désaimanté dans un champ oscillant d'amplitude décroissante à partir du champ positif de 13 kOe. Puis, un cycle mineur pour des champs compris entre +/- 100 Oe est mesuré. Dans ce cas, lors du cycle mineur, la couche magnétique dure de la JTM se trouve dans un état désaimanté, de moment magnétique net quasi nul. Ainsi, le cycle M-H mesuré ne contient que la contribution magnétique des couches magnétiques douces c'est à dire la couche de Fe de la couche tampon et la couche de détection.

Ces trois histoires magnétiques ont été utilisées pour étudier le magnétisme des systèmes magnétiques doux de Co(1nm)/Fe(6nm) et de Co₅₀Fe₅₀(1nm)/Fe(6nm) ainsi que les couplages pouvant exister avec les AAFs Co/Ru/Co ou Co/Ru/CoFe. Les principaux résultats de ces investigations sont présentés dans la figure 4.20.

Anisotropie magnétique de la couche de détection

Un premier aspect important illustré par la figure 4.20 est l'anisotropie magnétique du système Co(1nm)/Fe(6nm) alors que tous les autres sous-systèmes magnétiques de l'empilement multicouche (AAF, couche de Fe de la couche tampon) sont isotropes à l'échelle macroscopique. En effet, les mesures de cycles M-H (figure 4.20 (a)) montrent l'existence d'une direction difficile d'aimantation. Selon cette direction, l'aimantation se retourne graduellement par rotation de l'aimantation alors que lorsque le champ magnétique est dirigé selon l'axe facile, le renversement abrupt est assuré par nucléation et propagation de parois.

Nous supposons que cette anisotropie est induite pendant la croissance de la couche de détection Co(1nm)/Fe(6nm) sur l'empilement contenant l'AAF dans le champ résiduel du bâti de pulvérisation cathodique. En effet, il est connu que la croissance sous champ magnétique induit en général un axe de facile aimantation si le composé déposé n'est pas trop dur.

La couche de détection Co₅₀Fe₅₀(1nm)/Fe(6nm) est quant à elle complètement isotrope (figure 4.20 (b), (c)). La rigidité magnétique plus grande du Co₅₀Fe₅₀, par rapport à celle du Co, empêche l'induction d'une anisotropie pendant la croissance de la couche de détection

$\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}(1\text{nm})/\text{Fe}(6\text{nm})$. Dans ce cas, le champ résiduel durant la croissance est supposé être plus faible que le champ coercitif du $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$. Des résultats expérimentaux très récents montrent qu'il est possible d'induire une anisotropie dans la couche de détection de $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}(1\text{nm})/\text{Fe}(6\text{nm})$ lorsqu'elle est empilée sur une couche d'Al non oxydée, déposée sur l'AAF. Dans ce cas, le mélange à l'interface CoFe/Al est plus important que pour l'interface CoFe/ AlO_x . Le composé formé à l'interface CoFe/Al est magnétiquement plus doux et peut être orienté par le champ résiduel et induire une anisotropie dans toute la couche DL.

Couplage magnétique entre la couche de détection et l'AAF

Une analyse des cycles M-H présentés dans la figure 4.20 nous révèle l'existence d'un *couplage ferromagnétique* entre la couche de détection et l'AAF qui se traduit par le décalage des cycles magnétiques M-H par rapport à l'origine. L'intensité de ce couplage peut alors être estimée à partir du décalage des cycles M-H. Le couplage ferromagnétique observé est de nature *magnétostatique* et il provient de deux effets:

- la corrélation des rugosités d'interface de l'AAF et de la couche de détection avec la barrière d'oxyde détermine un couplage ferromagnétique de type *peau d'orange*. Cette corrélation est parfaitement illustrée par les images de microscopie électronique en transmission en section transverse (figure 4.19 (b)).
- les champs de dispersion créés par les inhomogénéités magnétiques (parois, domaines) localisées dans une des couches magnétiques de l'empilement multicouches. Ils peuvent influencer le champ magnétique local vu dans une autre couche de l'empilement et par conséquent son renversement magnétique. Une analyse plus détaillée de ce second effet sera effectuée plus loin dans ce paragraphe, lorsque nous allons analyser les propriétés micromagnétiques de la couche de détection, révélées à l'aide de la microscopie à force magnétique. Dans ce modèle de couplage, Thomas et al [ThomPRL00] calculent en fonction de l'épaisseur de la couche où la paroi est localisée, les champs de dispersion créés par une paroi de type Néel à 180° . Ils montrent que même dans des échantillons polycristallins, les champs de dispersion créés par ces parois peuvent atteindre des valeurs locales élevées de centaines d'Oersteds voir quelques kOe à des distances importantes (20-30nm). Ces champs de fuite provoquent des couplages magnétostatiques importants et peuvent altérer les propriétés magnétiques des autres couches magnétiques de la

multicouche. Des effets intéressants comme l'augmentation de coercivité de la couche de détection par le « désordre » magnétique dans la couche dure peuvent aussi être expliqués dans le modèle de Thomas et al.

Le couplage magnétostatique entre la couche de détection et l'AAF modifie le renversement de l'aimantation de la couche de détection ainsi que la rigidité de l'AAF. En effet, le champ coercitif de la couche de détection augmente et son renversement devient de moins en moins abrupt lorsque l'intensité du couplage magnétostatique entre la DL et l'AAF augmente.

Ces différents aspects sont illustrés dans les figures 4.20 (a), (b), (c). L'intensité du couplage magnétostatique dépend des moments magnétiques de l'AAF et la DL. En effet, à épaisseur d'oxyde constante, l'intensité est plus faible entre l'AAF Co(1.8nm)/Ru(0.7nm)/Co(3nm) et la couche de détection Co(1nm)/Fe(6nm) qu'entre un même AAF et une couche de détection de moment net plus grand Co₅₀Fe₅₀(1nm)/Fe(6nm) (figure 4.20 (a), (b)). A épaisseur d'oxyde constante et pour la même couche de détection Co₅₀Fe₅₀(1nm)/Fe(6nm), le champ coercitif de la couche de détection augmente et le renversement de son aimantation devient moins abrupt lorsque le couplage avec l'AAF s'intensifie par l'augmentation du moment de la couche de l'AAF en contact avec la barrière (figure 4.20 (b), (c)).

Dans le cycle d'hystérésis de la figure 4.20 (c), le renversement progressif de la couche de détection se fait alors par rotation, en passant par la formation de domaines séparés par des parois de Néel à 360°. Inversement, lorsque le couplage est faible, le renversement de l'aimantation peut être abrupt par nucléation et propagation de parois et le champ coercitif de la couche de détection est alors petit, de l'ordre de 10 Oe. C'est ce que l'on peut observer dans des JTMs contenant une couche de détection Co(1nm)/Fe(6nm) et un AAF Co/Ru/Co de moment magnétique net petit ($Q=4$) (figure 4.20 (a)).

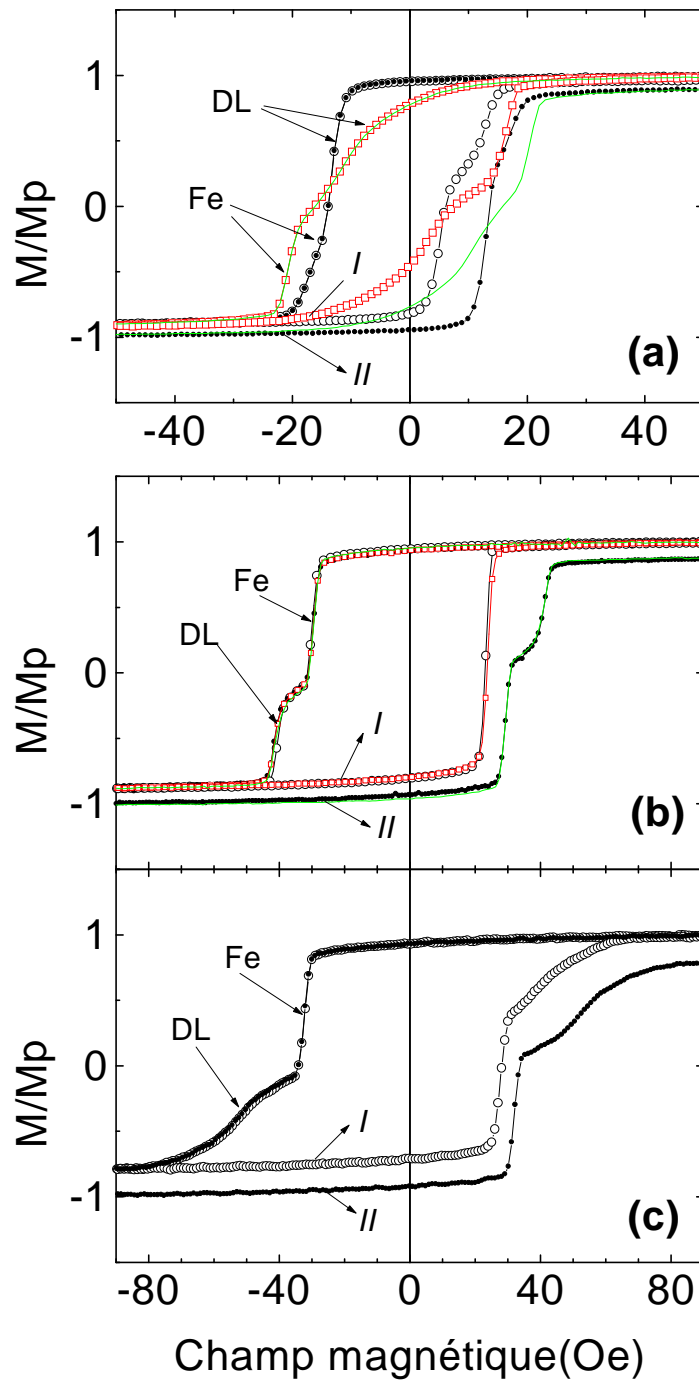


Figure 4.20. Cycles d'aimantation mineurs de *type 1* et de *type 2*. Les cycles sont mesurés selon deux directions perpendiculaires, d_1 et d_2 , sur des systèmes de type: Si(111)/Cr/Fe/Cu/AAF/ Al_2O_3 /DL/Cu/Cr où:

(a) AAF= Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm); DL= Co(1nm)/Fe(6nm)

(b) AAF= Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm); DL= $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ (1nm)/Fe(6nm)

(c) AAF= $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ (2nm)/Ru(0.8nm)/ $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ (3nm); DL= $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ (1nm)/Fe(6nm)

Légende: Mesure de *type 1* selon la direction d_1 (-- --), respectivement d_2 (--O--)

Mesure de *type 2* selon la direction d_1 (--●--), respectivement d_2 (----)

Les cycles sont représentées en unités réduites M/M_p .

Couplage magnétique entre la couche de Fe de la couche tampon et les autres couches magnétiques de la JTM

Des effets particuliers et originaux ont pu être mis en évidence dans nos JTMs à cause de la présence d'une couche de Fe(6nm) dans la couche tampon. En effet, on peut voir apparaître dans les cycles présentés figure 4.20 (a), (b), (c) que :

- la couche de Fe contenue dans la couche tampon est soumise à un couplage qui se manifeste par un décalage de son cycle d'aimantation par rapport au champ nul. Ce décalage est de même signe que celui de la couche de détection, dans tous les échantillons contenant la couche de détection.
- lorsque la couche de détection se renverse selon une axe difficile, le champ coercitif du Fe de la couche tampon est augmenté par rapport à celui qu'il a lorsque la DL se renverse selon l'axe facile (figure 4.20 (a)). Conventionnellement, on s'attend plutôt à une diminution du champ coercitif lorsque l'on passe d'une mesure de cycle selon un axe de facile aimantation à une mesure de cycle selon un axe de difficile aimantation.

En fait, cette couche de Fe qui possède une rigidité magnétique comparable à celle de la couche de détection semble être très sensible au magnétisme de la couche de détection et cela même pour des films multicouches qui n'ont pas été structurés par lithographie. La couche de Fe constitue un *détecteur* qui nous permet de mettre en évidence et d'analyser sans ambiguïté les effets du couplage magnétostatique créé par les champs de dispersion dus aux inhomogénéités magnétiques localisées dans l'AAF et la DL. En effet, le couplage direct par des interactions de type RKKY entre le Fe de la couche tampon et l'AAF est exclu à cause de l'épaisseur importante de la couche de Cu qui les sépare (30nm). Le couplage type *peau d'orange* est exclu également étant donnée sa décroissance exponentielle avec l'épaisseur de la couche séparatrice et la rugosité très faible des interfaces. Les seules interactions pouvant être invoquées pour expliquer ce couplage sont d'origine magnétostatique comme celles proposées dans le modèle de Thomas et al.

Couplage magnétostatique entre la couche de Fe de la couche tampon et une couche dure composée d'une couche unique

En utilisant la couche de Fe de la couche tampon comme détecteur de champ de fuite, nous avons étudié l'effet des champs de dispersion associés aux inhomogénéités magnétiques de

l'AAF sur le couplage magnétostatique. Afin d'éviter des complications dans l'analyse des phénomènes physiques, nous avons dans un premier temps étudié des échantillons du type Si(111)/Cr(1.6nm)/Fe(6nm)/Cu(30nm)/Co₅₀Fe₅₀(3nm)/Al₂O₃.

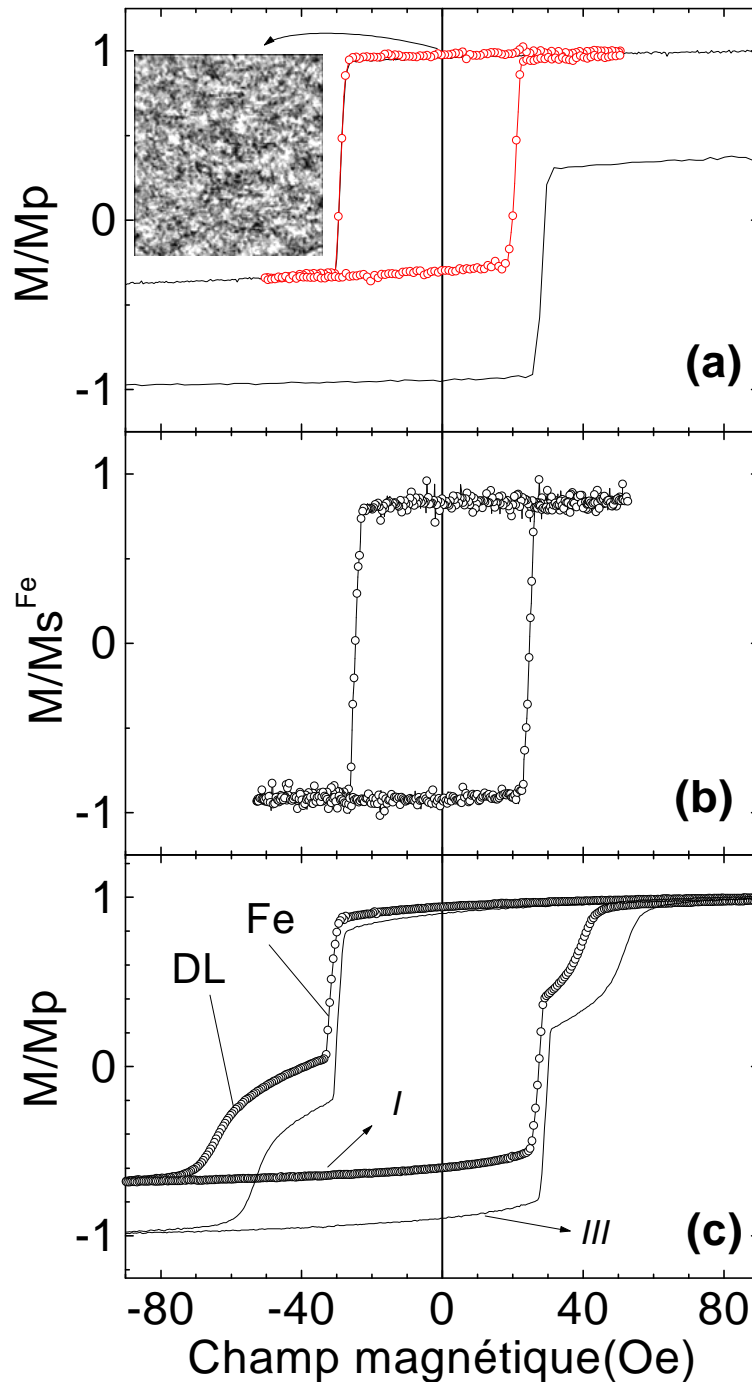


Figure 4.21. Cycles d'aimantation mineurs mesurés sur le système: Si/Cr/Fe/Cu/Co₅₀Fe₅₀(3nm)/Al₂O₃ dans une mesure de *type 1* (a) et (b) de *type 3*; (c) Cycles d'aimantation mineurs mesurés sur l'empilement JTM complet Si/Cr/Fe/Cu/Co₅₀Fe₅₀(3nm)/AlO_x/Co₅₀Fe₅₀(1nm)/Fe(6nm) dans une mesure de *type 1* (--O--) et de *type 3* (----). L'image MFM insérée dans la figure (a) montre le contraste magnétique

associé aux fluctuations de l'aimantation dans la couche magnétique dure dans l'état rémanent. La taille de l'image est $10 \times 10 \mu\text{m}^2$.

Les mesures effectuées sur ces empilements multicouches sans couche de détection montrent que le cycle mineur du Fe est bien décalé de quelques Oe (figure 4.21 (a)). De plus, nous avons montré que la couche de Fe de la couche tampon est *isotrope* du point de vue magnétique. En effectuant un cycle de type 2, on peut montrer que le cycle d'aimantation est décalé à la fois en champ positif et en champ négatif. Le décalage du cycle d'aimantation ne peut ainsi pas provenir d'un couplage d'échange avec une fine couche d'oxyde magnétique qui peut exister aux interfaces Fe/Cr ou Cr/Si. Par conséquent, ce décalage ne peut provenir que des champs de dispersion associés aux inhomogénéités magnétiques localisées dans la couche magnétique dure, notamment sous forme d'accumulations locales de charges et de la formation de dipôles (figure 4.22 (a)). La valeur élevée de la rémanence implique que tous les dipôles sont orientés dans le même sens, ce qui va déterminer un champ résultant non-nul qui est à l'origine du décalage du cycle d'hystérésis de la couche de Fe.

Pour tester cette hypothèse, une désaimantation de la couche dure suivie par une mesure d'un cycle M-H à champ faible (± 50 Oe) ont été réalisées. Dans ce cas, le cycle de la couche de Fe est parfaitement symétrique et le décalage est donc nul. Dans l'échantillon désaimanté, les orientations des aimantations des domaines magnétiques dans la couche dure ont une orientation aléatoire ce qui entraîne un moment moyen nul. Des fluctuations aléatoires de l'ordre magnétique vont déterminer des accumulations de charges ainsi que des dipôles dont l'orientation est aléatoire (figure 4.22 (b)). Ainsi, le champ dipolaire résultant est nul ce qui explique l'absence du décalage en champ du cycle M-H du Fe de la couche tampon.

Couplage magnétostatique entre la couche de Fe de la couche tampon et l'AAF

Les mêmes phénomènes apparaissent dans les multicouches contenant un système AAF (figure 4.22 (c)). Dans ce cas, les effets magnétostatiques sont issus des fluctuations de l'aimantation nette de l'AAF qui est communément considéré comme un monobloc AF de moment magnétique réduit $m_1 - m_2$. Cependant, l'intensité des champs de fuite issus des charges magnétiques créées sur les bords de la jonction lorsqu'un AAF est utilisé est plus faible à cause de son moment net réduit. Cet atout confère à l'AAF des qualités très utiles pour des utilisations dans des empilements complexes pour réduire les interactions magnétostatiques.

Les fluctuations de l'ordre magnétique dans l'AAF dans un état rémanent peuvent être visualisées dans le contraste magnétique des images MFM (figure 4.22 (d)). Ces images ont été enregistrées à une distance de 30nm de la surface de l'échantillon, distance qui sépare l'AAF de la couche de Fe dans les multicouches.

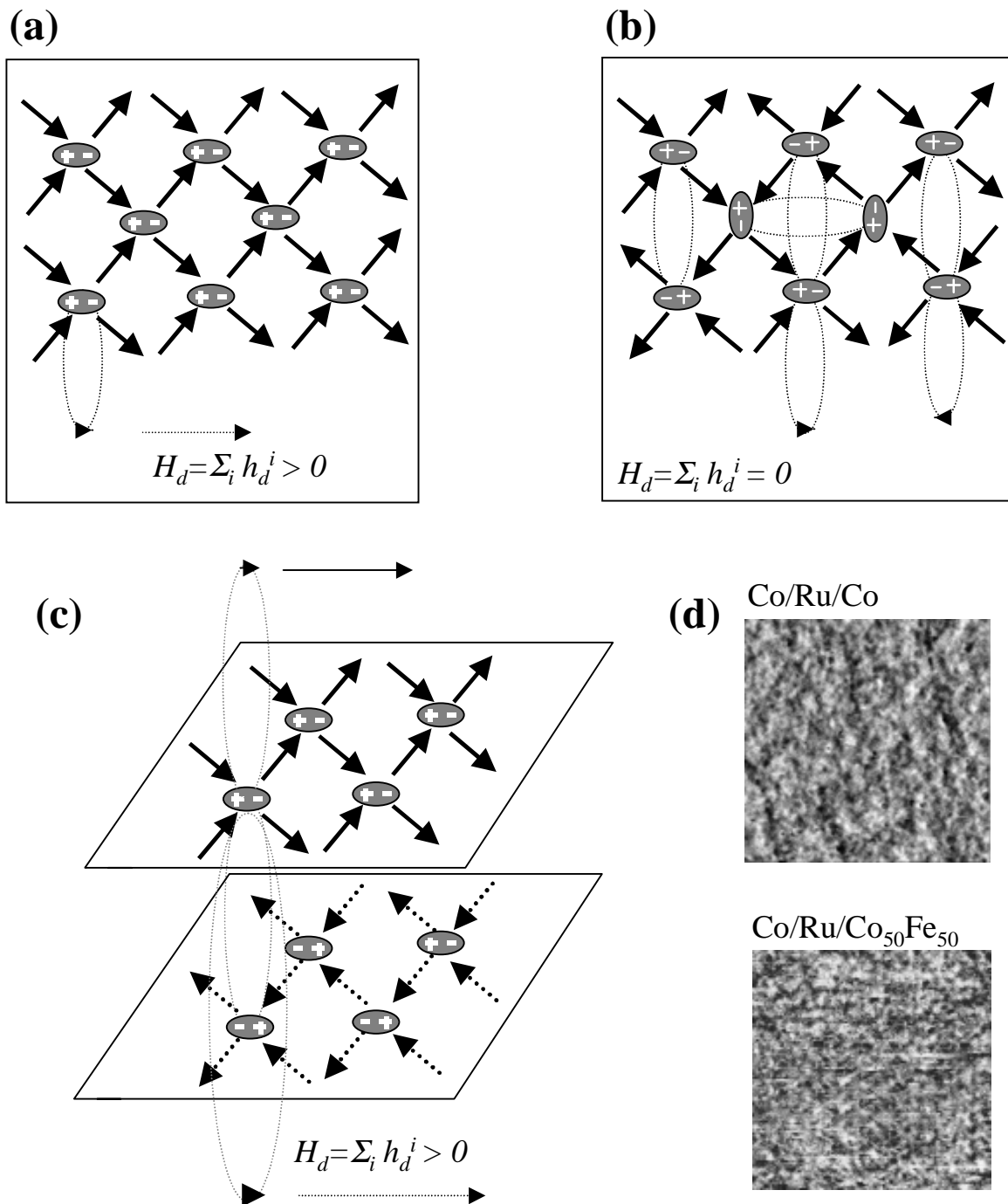


Figure 4.22. (a) Configuration schématique de l'aimantation d'une couche dure unique dans l'état rémanent. Des accumulations de charges correspondent aux faibles fluctuations de l'orientation angulaire de l'aimantation dans des régions adjacentes, définies par la longueur de corrélation latérale. Les dipôles associés à ces fluctuations déterminent un champ résultant non- nul ; (b) Configuration schématique de l'aimantation dans une couche dure unique dans

l'état désaimanté. Des dipôles orientés dans tous les sens déterminent un champ résultant nul ; **(c)** Configuration schématique des deux couches magnétiques d'un système AAF dans l'état rémanent. La configuration de l'aimantation est dupliquée antiferromagnétiquement dans les deux couches magnétiques de l'AAF ; **(d)** Images MFM de l'état rémanent des AAFs Co/Ru/Co et Co/Ru/CoFe. La taille de chaque image est de $10 \times 10 \mu\text{m}^2$.

Ainsi, la couche de Fe est soumise au champ local issu de ces fluctuations, dont le champ résultant détermine le décalage mesuré expérimentalement (figure 4.22 (c)). En analysant le modèle représenté dans la figure 4.22 (c), nous pouvons observer que le couplage entre le moment résultant de l'AAF et la couche de détection, issu du champ de dispersion créé par les accumulations locales de charge, est de type ferromagnétique. Il tend donc à stabiliser le même ordre magnétique que le couplage ferromagnétique peau d'orange plus classiquement invoqué dans les processus de couplage dans les JTMs. Ainsi, on peut globalement conclure que les interactions magnétostatiques dans les JTMs conduisent à un couplage net ferromagnétique.

Renversement de l'aimantation de la couche de détection Co(1nm)/Fe(6nm) selon l'axe difficile. Couplage magnétostatique dû aux champs de dispersion créés par les parois à 360° .

Le modèle que nous venons de présenter dans les deux paragraphes précédents peut être étendu à l'analyse du renversement de l'aimantation de la couche de détection Co(1nm)/Fe(6nm) selon l'axe facile ou difficile. Dans la figure 4.21 (c), nous montrons comment le décalage, mesuré dans les cycles M-H d'un échantillon contenant un empilement JTM complet Si/Cr/Fe/Cu /Co₅₀Fe₅₀(3nm) / Al₂O₃/ Co₅₀Fe₅₀(1nm) / Fe(6nm), disparaît lorsque la couche dure Co₅₀Fe₅₀(3nm) est désaimantée. Dans ce cas, les interactions magnétostatiques entre la couche dure et, soit la couche de détection de CoFe/Fe, soit la couche de Fe contenue dans la couche tampon, sont nulles.

Le renversement magnétique de la DL selon *l'axe difficile* se fait par un mécanisme de type rotation identique à celui déjà décrit en détails pour le renversement de l'aimantation nette de l'AAF ainsi que pour celui de l'aimantation de couches uniques polycristallines. Lors de ce renversement, des parois de type Néel à 360° sont créées et subsistent dans la couche de détection. Le centre de ces parois est constitué par les régions dont l'aimantation reste bloquée selon la direction initiale du champ de saturation positif.

Dans la figure 4.23, nous rassemblons un ensemble d'images MFM enregistrées pour des champs magnétiques représentatifs, après le renversement de l'aimantation de la DL selon l'axe difficile. Les contrastes MFM de parois peuvent être associés à des profils de parois à

360° (voir la figure 4.18). On peut voir dans ces images qu'après le renversement de la couche de détection, les parois créées sont stables et subsistent jusqu'à des champs forts. Elles peuvent alors influencer le magnétisme des autres couches magnétiques de l'empilement JTM.

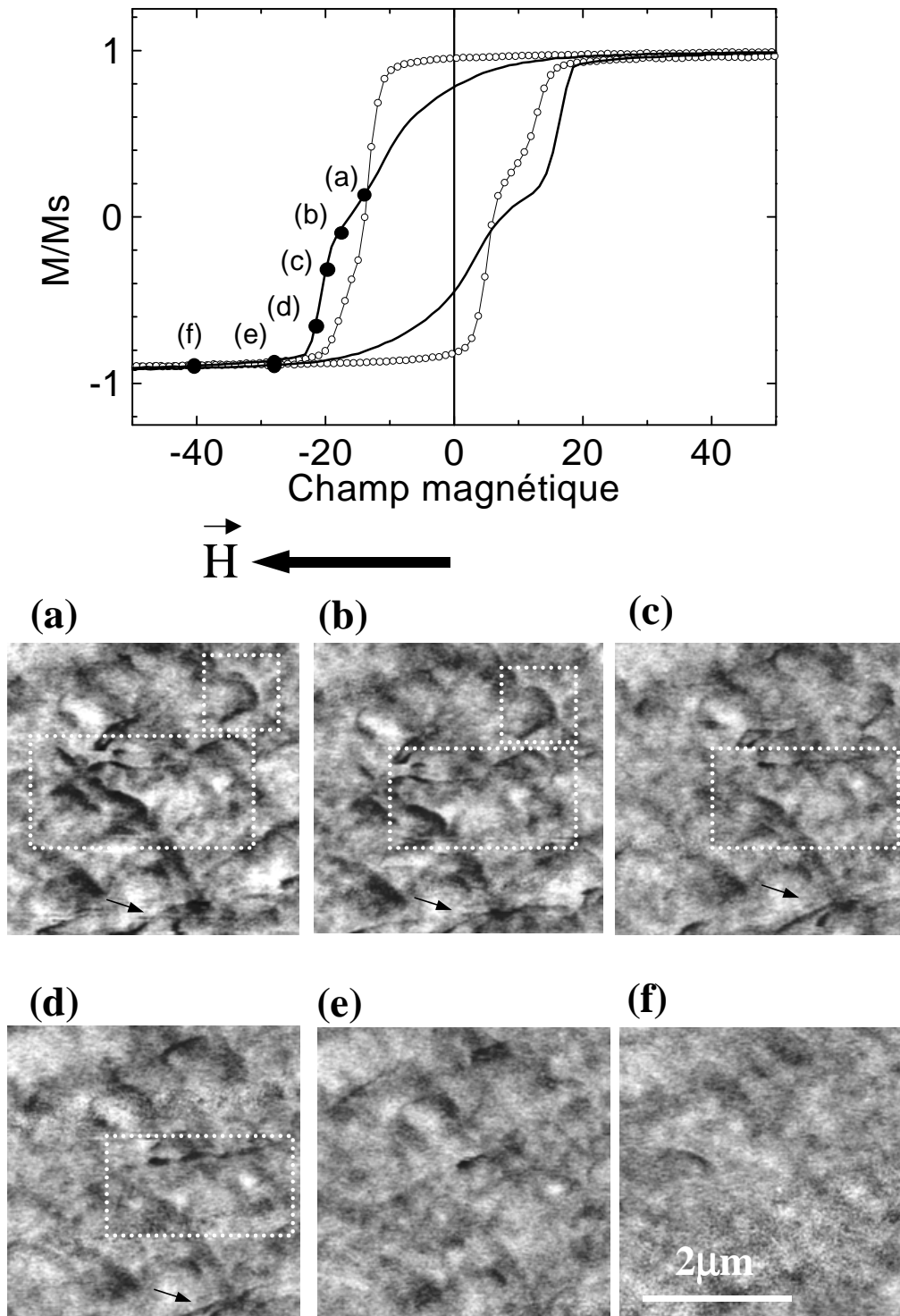


Figure 4.23. Cycles d'aimantation mineurs selon l'axe facile (-o-) et l'axe difficile (--), images MFM sous champ magnétique pour l'échantillon

Si/Cr/Fe/Cu/Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm)/AlOx/ Co(1nm)/Fe(6nm). Les images sont enregistrées pour des champs représentatifs, désignés par les états (a) - (f) après le renversement de l'aimantation de la couche de détection Co(1nm)/Fe(6nm) selon l'axe difficile. Les flèches noires et les rectangles/carrés en pointillés délimitent des régions particulièrement intéressantes, contenant des parois à 360°. L'aimantation de la pointe magnétique MFM est perpendiculaire à la surface de l'échantillon.

Un exemple d'influence peut être mis en évidence en étudiant les propriétés magnétiques de la couche de Fe de la couche tampon. Comment nous allons le montrer, cette couche de Fe détecte, à travers un écran magnétique formé par le système AAF, l'effet des champs de dispersion associés aux parois à 360° localisées dans la couche de détection.

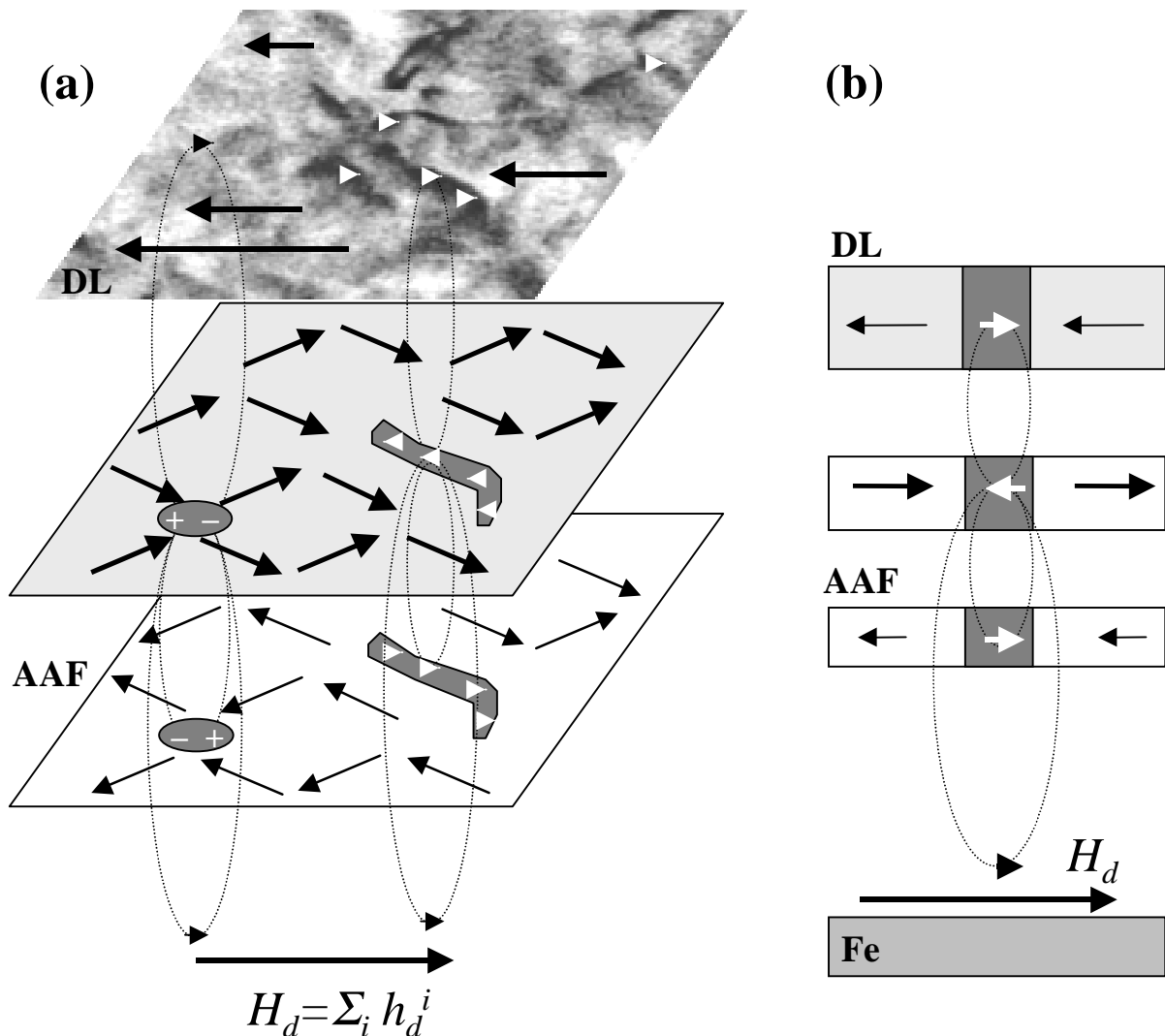


Figure 4.24. Modèle bidimensionnel (a) et modèle simplifié (b) utilisés pour expliquer les interactions magnétostatiques provenant des parois à 360°, localisées dans la couche de

détection. Les champs de dispersion associés aux parois localisées dans la DL peuvent renverser localement l'aimantation dans l'AAF.

En effet, comme nous le voyons dans la figure 4.23, la présence de parois à 360° dans la couche de détection peut expliquer l'augmentation de champ coercitif du Fe de la couche tampon. Cette augmentation est déjà observable dans la figure 4.20 (a), lorsque la DL renverse son aimantation selon l'axe difficile.

Dans la figure 4.24, nous proposons un modèle à double échange magnétostatique permettant d'expliquer l'augmentation de champ coercitif du Fe de la couche tampon par la présence d'un réseau de parois à 360° localisé dans la DL. Il repose sur le modèle du couplage ferromagnétique issu du champ de dispersion créé par des accumulations de charges locales présenté dans la figure 4.22.

Les champs de fuite des parois localisées dans la DL peuvent atteindre des valeurs importantes dans l'AAF [ThomPRL00], [McCartSci00] et ainsi renverser localement son aimantation, par exemple par duplication de la structure en domaines de la DL dans l'AAF. Comme pour des champs faibles, le couplage AF l'emporte sur l'énergie Zeeman, les parois sont antiferromagnétiquement dupliquées dans les deux couches de l'AAF.

Le Fe de la couche tampon est ainsi soumis à la superposition de deux champs de dispersion

- le premier provient du champ de fuite résultant non-nul des parois localisées dans l'AAF
- le second provient des dipôles orientés dont l'origine et les effets ont été décrits plus haut

Le champ de dispersion total est alors mesuré dans l'offset du cycle M-H et donc par l'augmentation du champ coercitif du Fe dans la figure 4.20.

Ces résultats sont extrêmement importants car ils mettent en évidence la présence d'interactions magnétostatiques déterminées par les champs de dispersion associés aux fluctuations de l'ordre magnétique dans les couches magnétiques d'une JTM. Une analyse claire est facilitée par l'architecture de nos jonctions tunnel, notamment par la présence du Fe dans la couche tampon à une distance suffisamment grande de l'AAF et la DL pour éviter les autres couplages possibles (RKKY, peau d'orange).

Pour finir, il faut mentionner que lorsque la taille latérale des films est réduite par structuration à l'aide des techniques de la lithographie, le couplage magnétostatique dipolaire

antiferromagnétique entre les couches magnétiques de l'empilement JTM devient important. En fonction de l'aspect de forme (rapport longueur/largeur) de la jonction lithographiée, les interactions dipolaires antiferromagnétiques entre la DL et l'AAF vont se superposer aux interactions magnétostatiques ferromagnétiques décrites pour les films continus. Il peut alors exister une situation pour laquelle les deux couplages se compensent, situation très favorable pour les applications technologiques des JTMs.

Duplication de la structure en domaines de la couche dure dans la couche douce

Nous avons suggéré que les parois localisées dans la couche douce, créées durant le renversement de son aimantation, peuvent induire des fluctuations dans l'ordre magnétique de l'AAF. Réciproquement, des fluctuations dans l'ordre magnétique qui peuvent exister dans l'AAF peuvent être dupliquées dans la couche de détection. Une analyse complète de ce phénomène très intéressant est présentée par Hehn et al. [HehnPRB00] en utilisant le transport tunnel polarisé en spin dans une JTM construite dans l'architecture douce- dure. Cet article de revue est associé à ce manuscrit dans l'annexe B.

Conclusion de paragraphe

Les résultats rassemblés dans ce paragraphe montrent qu'en termes de rigidité magnétique, la couche de détection Co(1nm)/Fe(6nm) présente les meilleures propriétés pour réaliser une couche de détection douce. De plus, lorsque ce système fait parti d'un empilement JTM, le couplage magnétostatique ferromagnétique plus faible entraîne de plus petites modifications du renversement intrinsèque de son aimantation (voir les figures 4.20 (c), 4.21 (c)). Cependant, ce système possède également la polarisation la plus faible en comparaison de celle du CoFe. En conséquence, l'amplitude de la magnétoresistance tunnel est plus faible. Ainsi, le prix à payer pour augmenter l'amplitude du signal TMR est une diminution de la qualité de la réponse magnétoresistive, notamment en termes de rigidité de l'AAF et de renversement de l'aimantation de la DL.

D'autre part, nous avons montré que le magnétisme des systèmes magnétiquement doux utilisés dans nos empilements JTM est loin d'être évident. Nous continuons à effectuer des études afin de trouver un meilleur compromis entre une faible rigidité magnétique, une forte polarisation des électrons, un renversement abrupt de l'aimantation et de faibles coefficients de magnétostriction. Dans cette direction, les perspectives de ce travail de thèse reposent sur la réalisation de DLs utilisant des alliages ternaires Ni- Fe- Co.

4.4. Conclusion du chapitre 4

Dans ce chapitre, nous avons présenté les propriétés magnétiques macroscopiques et microscopiques des sous-systèmes magnétiques constituant les jonctions tunnel étudiées tout au long de ce travail de thèse.

Dans la première partie de ce chapitre, nous avons analysé leur magnétisme à une échelle macroscopique. Le fonctionnement du système antiferromagnétique artificiel constituant l'électrode dure de la jonction a été analysé à l'aide d'un modèle théorique de type *Stoner-Wohlfarth*. Ce dernier nous a permis de mettre en évidence les *paramètres clefs* du fonctionnement de l'AAF lorsqu'il est soumis à un champ magnétique extérieur. Ces paramètres sont :

- les propriétés magnétiques des couches uniques qui forment l'AAF.
- le couplage AF entre ces couches.
- le facteur Q qui traduit l'épaisseur relative des différentes couches magnétiques de l'AAF.

L'analyse des cycles d'aimantation expérimentaux, mesurés sur les AAFs, montre un accord qualitatif avec les résultats du modèle type *Stoner-Wohlfarth*. Dans cette partie, nous avons également montré comment les propriétés magnétiques et structurales des multicouches de l'empilement sont dépendantes des propriétés fonctionnelles et de la structure de la couche tampon.

Dans la seconde partie de ce chapitre, la *structure fine* des cycles d'aimantation expérimentaux a été évoquée en détail à l'aide de l'étude à l'échelle microscopique du magnétisme des couches uniques et des AAF. Cette étude a été réalisée à l'aide de mesures de microscopie à force magnétique sous champ magnétique d'intensité ajustable. Cette analyse nous a permis d'illustrer les mécanismes de renversement de l'aimantation dans des systèmes polycristallins sous forme de couches uniques ou d'un ensemble de couches couplées antiferromagnétiquement. En effet, la formation et la stabilité de domaines magnétiques séparés par des parois de Néel à 360° a été minutieusement analysée par l'étude de l'évolution du contraste MFM sous champ magnétique.

La troisième et dernière partie du chapitre concerne les propriétés magnétiques du système magnétique doux de la jonction tunnel. Nous avons montré qu'elles étaient fortement influencées par le couplage magnétique existant entre ce système et l'AAF à travers la

barrière isolante. Après une revue des différents mécanismes possibles de couplage, nous sommes passés à l'analyse de ses propriétés magnétiques à l'échelle macroscopique et microscopique et notamment aux aspects concernant l'anisotropie et le couplage magnétostatique. Des mesures de microscopie à force magnétique ont permis de raffiner un modèle micromagnétique proposé pour expliquer le couplage magnétostatique ferromagnétique observée systématiquement dans nos empilements JTM entre la couche de détection et le système AAF.

Comme nous allons le montrer dans le chapitre suivant, tous ces aspects concernant le magnétisme des systèmes constituant les JTM sont reflétés dans l'amplitude et la forme du signal magnétoresistif des jonctions tunnel.

Références du chapitre 4

[AngAPL00]

A. Anguelouch, B. D. Schrag, G. Xiao, Y. Lu, P. L. Trouilloud, R.A. Wanner, W.J. Gallagher, S.S.P. Parkin, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 622, (2000)

[BergJMMM97]

H.A.M. van den Berg, W. Clemens, G. Gires G. Rupp, M. Vieth, J. Wecker, S. Zoll, *J. Magn. Magn. Mater.* **165**, 524, (1997)

[BergIEEE96]

H.A.M. van den Berg, W. Clemens, G. Gires G. Rupp, W. Schelter, M. Vieth *IEEE Trans. Magn.* **32**, 4264, (1996)

[BergIEEE93]

H.A.M. van den Berg, S. Schmeusser, *IEEE Trans. Magn.* **29**, 3099, (1993).

[Berg98]

H.A.M. van den Berg, *Magnetic thin films and multilayer systems ; physics, analysis and industrial applications*, ed. U. Hartmann, Heidelberg : Springer series in Material Science (1998)

[Berkov98]

D. V. Berkov, N. L. Gorn, *Phys. Rev. B* **57**, 14332, (1998)

[Bruno91]

P. Bruno, C. Chappert, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 1602, (1991)

[Bruno92]

P. Bruno, C. Chappert, *Phys. Rev B* **46**, 261, (1992)

[Cho99]

H.S. Cho, C. Hou, M. Sun, and H. Fujikawa, *J. Appl. Phys.* **85**, 5160, (1999).

[Demo94]

S. Demokritov et al., *Phys. Rev. B* , 720, (1994)

[DimopJAP00]

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

[DaCostaPRLs1]

V. da Costa, C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, soumise pour publication dans *Phys. Rev. Lett.*

[Fuller60]

H. W. Fuller, M. E. Hale, *J. Appl. Phys.* **31**, 238, (1960)

[FullJAP62]

H.W. Fuller, D.L. Sullivan, *J. Appl. Phys.* **33**, 1063, (1962)

[GidSci98]

S. Gider, B.-U. Runge, A.C. Marley, S.S.P. Parkin, *Science*. **281**, 797, (1998)

[Gill95]

M.F. Gillies, J.N. Chapman, and J.C.S. Kools, *J. Appl. Phys.* **78**, 5554, (1995).

[Harte97]

K. J. Harte, *J. Appl. Phys.* **39**, 1503, (1997)

[HehnPRB00]

M. Hehn, O. Lenoble, D. Lacour, C. Féry, M. Piécuch, C. Tiusan, K. Ounadjela, acceptée pour publication dans *Phys. Rev. B*, 1^{er} mai 2000.

[Herzer89]

H. Herzer, *IEEE. Trans. on Magn.* **25**, 3327, (1989)

[Laver68]

K. D. Laver, *Thin Solid Films*, 2, (1968), 149-172, Elsevier, Laussane-Printed in the Neterlands

[Heyd91]

L.J. Heydermann, J.N. Chapmann, and S.S.P. Parkin, *J. Magn. Magn. Mater.* **96**, 125, (1991).

[Hubert95]

A. Hubert, W. Rave, and S.L. Tomlinson, *Phys. Rep.* **258**, 173, (1995).

[McCartSci99]

M. McCartney, R.Dunin-.Borkowski, M.R. Scheinfein, D.J.Smith, S.Gider, S.S.P. Parkin, *Science*, **286**, 1337, (1999)

[Néel62]

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

[Panissod98]

P. Panissod, in *Frontiers in Magnetism of Reduced Dimension Systems*, Vol. **49** of *NATO Advaced Study Institute, Series 3:High Technology*, edited by V. G. Bar'yakhtar, P. E. Wigen, and N. A. Lesnik Kluwer, Dordrecht, (1998).

[Parkin90]

S.S.P. Parkin, N. More, K.P. Roche, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2304, (1990)

[PersatJMMM97]

N.Persat, H.AM. van den Berg, A. Dinia, *J. Magn. Magn. Mater.* **165**, 446, (1997)

[PersatJAP97]

N.Persat, H.A.M. van den Berg, K.Cherifi-Khodjaoui, A. Dinia, *J. Appl. Phys.* **81**(8), 4748, (1997)

[Persat98]

N. Persat, thèse de l'Université Paris 7, (1998)

[Pott70]

R.I. Potter, *J. Appl. Phys.* **41**, 1648, (1970)

[Rugar90]

D. Rugar, H.M. Mamin, P. Guethner, S.E. Lambert, J.E. Starn, I. McFadyen, and T. Yogi, *J. Appl. Phys.* **68**, 1169, (1990)

[Saenz98]

J.J. Saenz, N. Garcia, J.C. Slonczewski, *Appl. Phys. Lett.* **53**, 1449, (1998)

[Slonczewski89]

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

[Spain68]

R.J. Spain, I. B. Puchalska, *J. Appl. Phys.* **35**, 824, (1968)

[ThomPRL00]

L. Thomas, M. G. Samant, S.S.P. Parkin, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 1816, (2000)

[TiusanPRB00]

C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, H.A.M. van den Berg, V. da Costa, Y. Henry, *Phys. Rev. B* **61**, 580-593, (2000)

[TiusanJAP99]

C. Tiusan, M. Hehn, K. Ounadjela, Y. Henry, J. Hommet, C. Meny, H.A.M. van den Berg, L. Baer, R. Kinder, *J. of Appl. Phys.* **85**, 5276, (1999)

[TiusanJAP00]

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

[TiusanPRBs1]

C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn,
soumise pour publication dans *Phys. Rev. B*.

Verd[APL97]

R.M.J. van de Verdoonk, J.Nowak, R. Meservey, J.S. Moodera, and W.J.M. de Jonge, *Appl. Phys. Lett* **71**, 2839 , (1997).

[ZollJMMM96]

S. Zoll, H.A.M. van den Berg, J. P. Jay, H. J. Elmers, C. Meny, P. Panissod, D. Stoeffler, A. Dinia, K. Ounadjela, *J. Magn. Magn. Mater.* **156**, 231, (1996)

[ZollPRB98]

S. Zoll, A. Dinia, H. A. M. van den Berg, J. P. Jay, C. Mény, G. Pan, A. Michel, V. P. Bohnes, P. Panissod, *Phys. Rev. B* **57**, 4842, (1998).

[ZollEPL97]

S. Zoll, A. Dinia, D. Stoeffler, M. Gester, H.A.M. Van den Berg, K. Ounadjela, *Europhys. Lett.* **39** (3), 323, 1997

Chapitre 5

Transport polarisé en spin dans les jonctions tunnel magnétiques

Dans les chapitres précédents, nous avons présenté les propriétés structurales, topographiques et magnétiques des empilements multicouches utilisés pour élaborer les jonctions tunnel magnétiques. Dans ce chapitre, nous présentons les propriétés de transport polarisé en spin de jonctions de taille micrométrique, réalisées à partir de ces multicouches à l'aide de techniques de lithographie optique et de gravure ionique sèche ou réactive.

5.1. Transport polarisé en spin dans les jonctions tunnel basées sur le système antiferromagnétique artificiel

Les jonctions tunnel magnétiques étudiées au cours de cette thèse utilisent un AAF comme système magnétique dur. Les propriétés magnétiques de ce système ont été minutieusement analysées dans le chapitre précédent de ce manuscrit. À l'aide du transport polarisé en spin, nous allons montrer que le développement de parois à 360° dans les couches épaisses ou fines de l'AAF a un impact non négligeable sur le signal TMR. De plus, des raffinements dans la compréhension du renversement de l'aimantation de l'AAF vont pouvoir être apportés pour la première fois grâce à la sensibilité du courant tunnel à la distribution des moments magnétiques dans les couches à l'interface avec la barrière.

Effet de la rugosité de la couche tampon sur les propriétés de transport tunnel

Dans la figure 5.1, nous avons reporté les courbes typiques d'aimantation M-H et de magnétorésistance tunnel TMR-H pour deux jonctions ayant la même architecture d'AAF (Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm)) mais élaborées sur des couches tampons de qualité différente. Ces courbes sont mesurées dans la fenêtre de champ située dans le plateau AF de l'AAF où l'AAF se comporte comme un bloc de moment magnétique réduit m_1 - m_2 . De

manière générale les cycles M-H seront représentés en unités réduites M/M_s , où M_s représente l'aimantation à saturation.

Dans la partie positive du plateau (figure 5.1, état (1)), les aimantations de la couche de détection et de la couche épaisse de l'AAF en contact avec la barrière sont alignées selon la direction du champ magnétique positif. En effet, une configuration parallèle des aimantations des deux couches magnétiques en contact avec la barrière tunnel détermine une grande probabilité de passage tunnel et donc une faible résistance électrique de la JTM. En renversant le champ magnétique dans la direction négative, l'aimantation de la couche de détection se renverse (figure 5.1, état (2)). Ainsi, les aimantations en contact avec la barrière tunnel passent dans une configuration antiparallèle. Par conséquent, la résistance électrique de la JTM augmente.

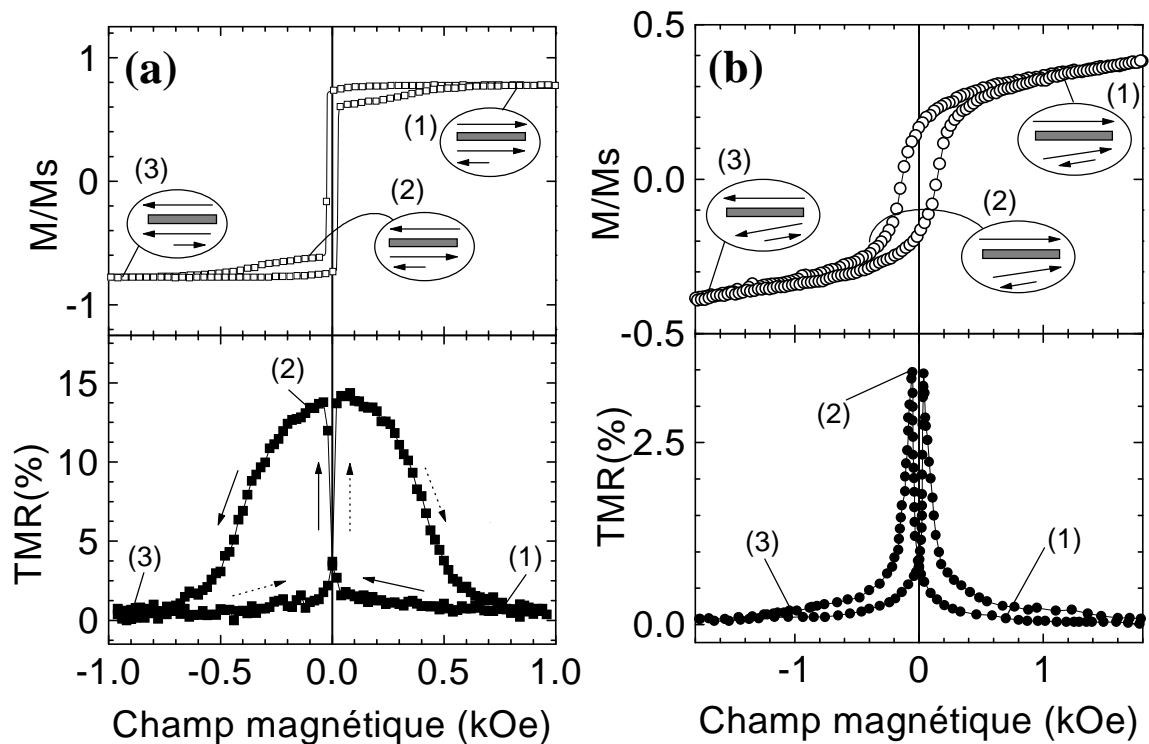


Figure 5.1. Cycles mineurs d'aimantation M-H et cycles mineurs de magnétorésistance tunnel TMR-H pour des jonctions tunnel magnétiques utilisant l'AAF Co/Ru/Co. La structure multicouche est Si(111)/couche tampon/Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm)/Al₂O₃(1.5nm)/Co(1nm)/Fe(6nm)/Cu/Cr. (a) À gauche, l'AAF est déposé sur une couche tampon optimisée Cr(1.6nm)/Fe(6nm)/Cu(30nm). (b) À droite, l'AAF est déposé sur une couche tampon non optimisée de Cr(1.6nm)/Cu(30nm). Les dessins insérés représentent, pour un dessin donné du haut vers le bas, les orientations des aimantations de la couche de détection, de la couche épaisse et de la couche fine de l'AAF.

Cette configuration antiparallèle est préservée tant que le moment magnétique net de l'AAF reste rigide et orienté dans la direction du champ magnétique positif. Pour des valeurs de champs magnétiques négatifs suffisamment élevées, le moment net de l'AAF commence à se retourner par rotation de l'aimantation, mécanisme largement évoqué dans le chapitre précédent. Ce renversement se traduit par une décroissance progressive de la résistance de la JTM. Lorsque le moment net de l'AAF est complètement renversé (figure 5.1, état (3)), l'aimantation de la couche épaisse de l'AAF devient à nouveau parallèle à celle de la couche de détection, déterminant une résistance faible de la JTM.

La figure 5.1 montre que la rigidité magnétique de l'AAF ainsi que l'allure du renversement de son aimantation se reflètent directement dans les cycles de TMR-H. Ainsi, l'amélioration des propriétés magnétiques des sous-systèmes AAF est nécessaire avant d'envisager leur utilisation dans des JTMs.

La JTM analysée dans la figure 5.1. (a) utilise un AAF empilé sur une couche tampon optimisée de Cr/Fe/Cu. Ses propriétés magnétiques, notamment la rigidité et le renversement de son moment magnétique résultant, sont nettement meilleures que celles du même AAF empilé sur une couche tampon Cr/Cu (figure 5.1 (b)). En effet, la rigidité magnétique importante de l'AAF sur couche tampon Cr/Fe/Cu permet de bien définir les configurations magnétiques parallèle et antiparallèle des aimantations de la JTM, ce qui se traduit par une courbe de TMR-H présentant une décroissance lente de la TMR après le retournement de la couche de détection.

La JTM analysée dans la figure 5.1. (b) utilise un AAF empilé sur une couche tampon non optimisée de Cr /Cu. La faible rigidité magnétique et le renversement continu par rotation du moment magnétique net m_1 - m_2 , même en champ positif, empêche la formation d'une configuration antiparallèle de la JTM qui n'est jamais atteinte dans ce système. La couche de détection se renverse alors durant la rotation du moment net de l'AAF ce qui est à l'origine d'une courbe de TMR très piquée.

Comme nous l'avons déjà montré dans l'étude des propriétés magnétiques des dépôts multicouches, c'est essentiellement la rugosité d'interface qui est à l'origine de cette différence de comportement. Non seulement elle modifie le comportement magnétique des AAFs, mais elle modifie également la topographie de la barrière isolante et donc les propriétés de transport tunnel. C'est la superposition de ces effets qui permet de rendre compte des différences de comportement de ces deux échantillons. Une couche tampon de

rugosité pic à pic inférieure à 1nm est donc la clef de l'obtention de jonctions de bonne qualité.

Propriétés de transport tunnel de JTMs déposées sur couche tampon optimisée

Parmi l'ensemble des systèmes réalisés expérimentalement, nous avons choisi de présenter des résultats représentatifs obtenus sur des jonctions du type Si(111)/Cr/Fe/Cu/AAF/Al₂O₃/DL/Cu/Cr pour lesquelles l'AAF est composé soit de Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm), soit de Co(2nm)/Ru(0.8nm)/Co₅₀Fe₅₀(3nm) et la couche de détection soit de Co(1nm)/Fe(6nm), soit de Co₅₀Fe₅₀(1nm)/Fe(6nm). Les propriétés magnétiques de ces AAFs ont déjà été présentées dans les chapitres précédents, à l'échelle macroscopique et microscopique, ce qui facilitera l'interprétation des cycles de TMR.

Dans chaque figure 5.2, 5.3, 5.4 et 5.5, nous avons rassemblé l'ensemble des caractéristiques typiques d'une jonction tunnel magnétique. Pour passer d'une figure à l'autre, nous avons fait varier l'épaisseur de la barrière isolante et la nature des électrodes magnétiques en contact avec la barrière tunnel. Dans chacune des figures sont rassemblées les caractéristiques suivantes :

(a) variation de la densité de courant avec la tension appliquée. A partir de chaque caractéristique (densité de courant – tension), nous pouvons estimer les paramètres effectifs de la barrière, largeur L , hauteur U et asymétrie ΔU , en utilisant la théorie de Brinkman [BrinkJAP71]. Les mesures de ce type sont effectuées dans la géométrie 4 points, décrite dans le chapitre 2 de ce manuscrit.

(b) dépendance de la résistance et de la magnéto-résistance avec le champ magnétique (courbe R-H et respectivement TMR-H à température ambiante), dans une fenêtre de champs située dans le plateau AF de l'AAF ($H = \pm 1$ kOe). A l'aide de ce type de cycle, nous pouvons analyser le magnétisme de l'AAF et notamment les caractéristiques du renversement de son moment magnétique net.

(c) cycle R-H mineur dans un intervalle de champs pour lequel l'AAF reste rigide. La variation de résistance de la JTM est uniquement due au renversement de l'aimantation de la DL par un champ magnétique externe. A partir de ce type de cycle, nous pouvons déduire le magnétisme de la couche de détection par l'analyse directe des caractéristiques du cycle mineur. Ce type de mesure permet de tester la possibilité d'utiliser la JTM comme un élément d'une mémoire magnétique non volatile.

(d) variation de la résistance tunnel lorsque la jonction est soumise à un champ magnétique tournant dans le plan de l'empilement. L'intensité du champ, égale à 80 Oe, est fixée afin de ne tourner que la couche de détection et préserver un AAF rigide. Dans ce type de mesure, nous pouvons visualiser l'influence du couplage magnétique entre la couche de détection et l'AAF. Etant donnée que l'aimantation de la DL est renversée par rotation, cette configuration de champ magnétique permet de prévenir la formation de domaines magnétiques dans la DL qui peuvent fortement modifier le couplage magnétique entre l'AAF et la couche de détection. Ce type de mesure permet de tester la possibilité d'utiliser la JTM comme capteur de position angulaire.

Les figures 5.2, 5.3 et 5.4. présentent les propriétés de transport de JTMs utilisant des AAFs Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm), des couches de détection Co(1nm)/Fe(6nm) et des barrières d'AlOx d'épaisseurs différentes. La figure 5.5. présente les propriétés de transport d'une JTM qui utilise l'alliage Co₅₀Fe₅₀ à l'interface métal magnétique/oxyde. Le taux de polarisation du Co₅₀Fe₅₀, supérieur à celui du Co ou du Fe séparés, permet d'augmenter l'amplitude de la TMR.

Les principales données extraites des propriétés de transport illustrées dans les figures 5.2 à 5.5 sont reportées dans le tableau 5.1. On peut noter que :

- les largeurs de barrière sont toujours en bon accord avec l'épaisseur d'Al déposée avant oxydation et que les hauteurs de barrière se rapprochent de celles communément reportées dans les publications internationales [Moodera95].
- l'amplitude de la TMR augmente de 15% à 27% en diminuant l'épaisseur de la barrière de 14 à 9 Å (figures 5.2 (b), 5.3 (b), 5.4 (b)). Cette augmentation est en accord avec les prévisions du modèle des électrons libres présenté dans le chapitre 1 de ce manuscrit, qui montre une tendance à l'augmentation de la TMR lorsque l'épaisseur de la barrière diminue. D'un point de vue expérimental, cette augmentation peut aussi être due à la réduction du nombre de défauts localisés dans la barrière sur lesquels l'électron peut inverser son spin lorsque l'épaisseur effective de la barrière diminue.
- en diminuant l'épaisseur de la barrière, la résistance surfacique diminue de 150MΩ μm² pour les barrières les plus épaisses à 20 kΩ μm² pour les barrières les plus fines.
- le taux de polarisation de l'interface Co₅₀Fe₅₀/Al₂O₃, supérieur à celui des interfaces Co/Al₂O₃ ou du Fe/Al₂O₃, permet d'augmenter l'amplitude de la TMR.

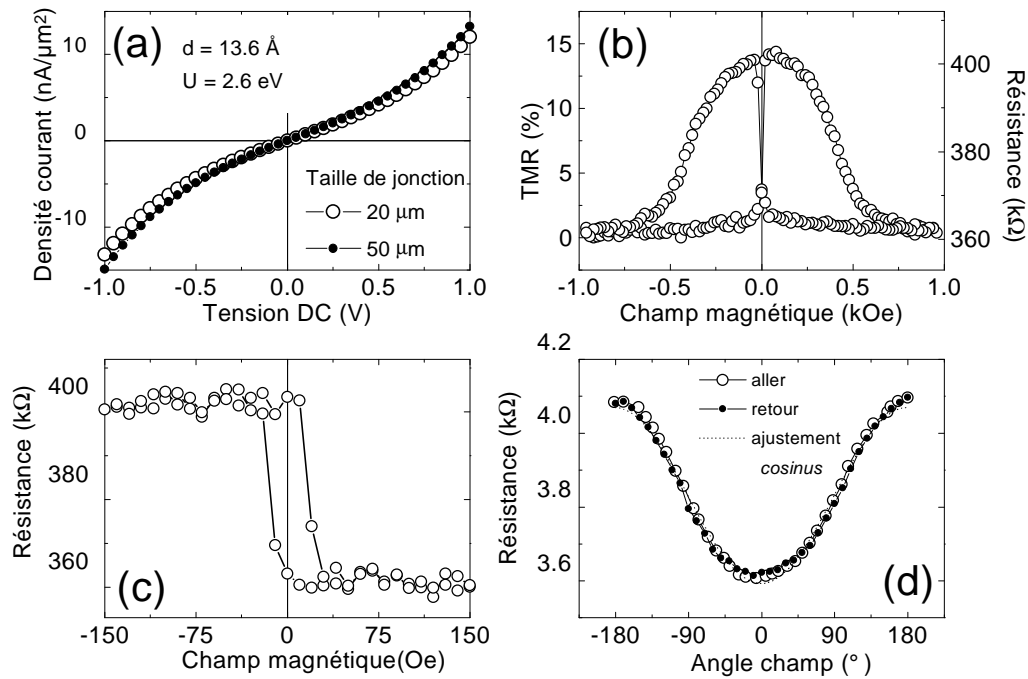


Figure 5.2. Propriétés de transport tunnel polarisé en spin mesurées sur la JTM: Si/Cr/Fe/Cu/Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm)/Al(2.4nm, ox.60s)/Co(1nm)/Fe(6nm)/Cu/Cr (a) variation de la densité de courant tunnel avec la tension appliquée ; (b) cycle de magnétorésistance tunnel ; (c) cycle mineur de magnétorésistance tunnel ; (d) variation de la résistance tunnel dans un champ magnétique tournant $H = 80 \text{ Oe}$. Les cycles de magnétorésistance tunnel sont mesurés sur des jonctions de $20 \times 20 \mu\text{m}^2$, polarisées à 10mV.

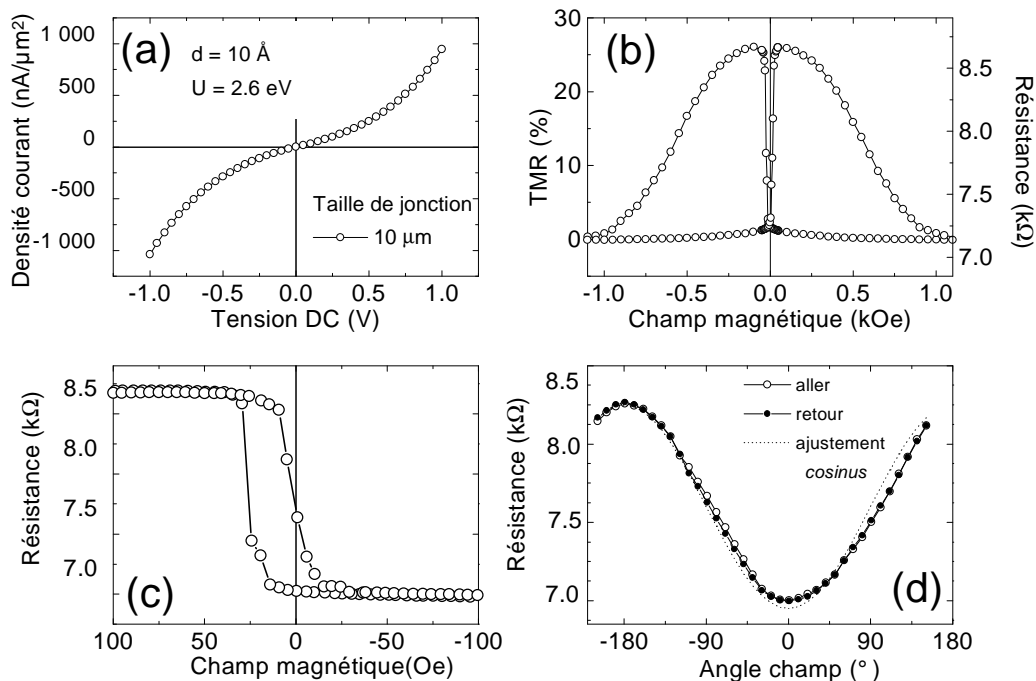


Figure 5.3. Propriétés de transport tunnel polarisé en spin mesurées sur la JTM: Si/Cr/Fe/Cu/Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm)/Al(1.4nm, ox.60s)/Co(1nm)/Fe(6nm)/Cu/Cr (a) variation de la densité de courant tunnel avec la tension appliquée ; (b) cycle de magnétorésistance tunnel ; (c) cycle mineur de magnétorésistance tunnel ; (d) variation de la résistance tunnel dans un champ magnétique tournant $H = 80 \text{ Oe}$. Les cycles de magnétorésistance tunnel sont mesurés sur des jonctions de $10 \times 10 \mu\text{m}^2$, polarisées à 10mV.

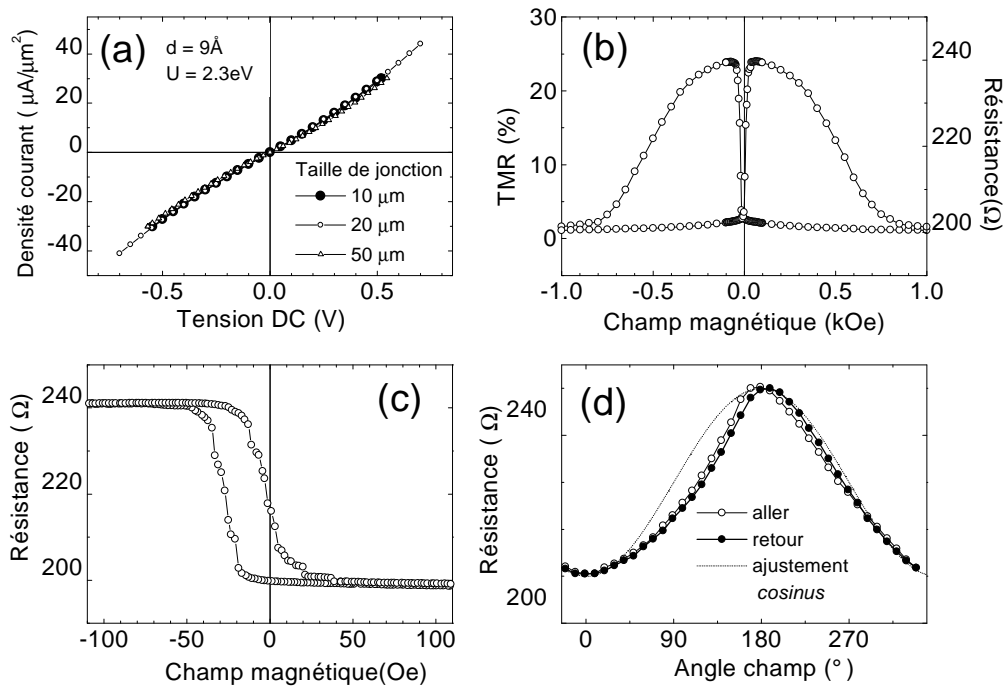


Figure 5.4. Propriétés de transport tunnel polarisé en spin mesurées sur la JTM: Si/Cr/Fe/Cu/Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm)/Al(1nm, ox.60s)/Co(1nm)/Fe(6nm)/Cu/Cr (a) variation de la densité de courant tunnel avec la tension appliquée ; (b) cycle de magnétorésistance tunnel ; (c) cycle mineur de magnétorésistance tunnel ; (d) variation de la résistance tunnel dans un champ magnétique tournant $H = 80\text{ Oe}$. Les cycles de magnétorésistance tunnel sont mesurés sur des jonctions de $10 \times 10\ \mu\text{m}^2$, polarisées à 10mV .

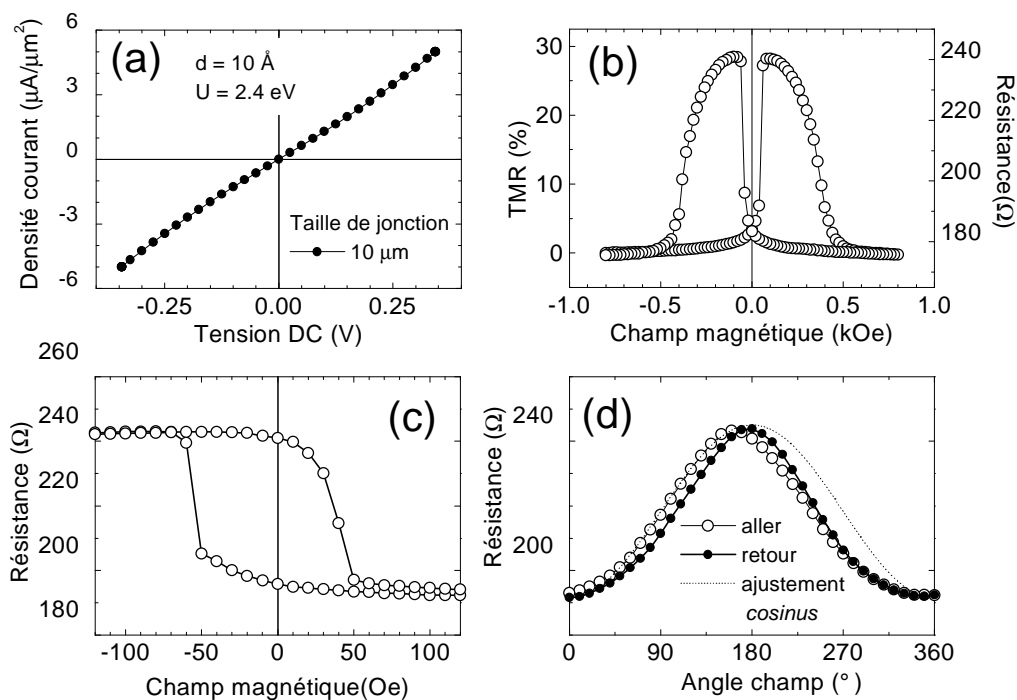


Figure 5.5. Propriétés de transport tunnel polarisé en spin mesurées sur la JTM: Si/Cr/Fe/Cu/Co(2nm)/Ru(0.8nm)/Co₅₀Fe₅₀(3nm)/Al(1.2nm, ox.60s)/Co₅₀Fe₅₀(1nm)/Fe(6nm)/Cu/Cr (a) variation de la densité de courant tunnel avec la tension appliquée ; (b) cycle de magnétorésistance tunnel ; (c) cycle mineur de magnétorésistance tunnel ; (d) variation de la résistance tunnel dans un champ magnétique tournant $H = 80\text{ Oe}$. Les cycles de magnétorésistance tunnel sont mesurés sur des jonctions de $10 \times 10\ \mu\text{m}^2$, polarisées à 10mV .

Fig.	AAF	DL	Barrière d'Al ₂ O ₃			Résistance R* μm^2	Amplitude TMR (%)	Type mesure		Observation
			Dépôt / oxydation	Fit modèle Brinkman	R-H			R- α		
	e _{Al} (nm)	T _{oyd} (s)	L (Å)	U (eV)						
5.2	Co (1.8nm)/Ru (0.8nm)/Co(3nm)	Co(1nm)/ Fe(6nm)	2.4	60	13.6	2.6	150-160 M $\Omega \mu\text{m}^2$	15-16	<p><u>Cycle R-α</u>:</p> <ul style="list-style-type: none"> - bon ajustement avec une fonction cosinus - Faible hystérésis aller/retour 	
5.3			1.4	45	10	2.6	700-850 k $\Omega \mu\text{m}^2$	27	<p><u>Cycle R-α</u>:</p> <ul style="list-style-type: none"> - bon ajustement avec une fonction cosinus - faible hystérésis aller/retour 	
5.4			1.0	45	9	2.3	20-24 k $\Omega \mu\text{m}^2$	27	<p><u>Cycle R-H</u>:</p> <ul style="list-style-type: none"> - des effets de piégeage de parois lors du renversement de la DL. <p><u>Cycle R-α</u>:</p> <ul style="list-style-type: none"> - différence importante par rapport à l'ajustement avec une fonction cosinus autour de la configuration d'aimantation parallèle - hystérésis important aller/retour 	le couplage ferromagnétique (peau d'orange) entre la DL et l'AAF augmente car l'épaisseur de la barrière diminue
5.5	Co(2nm)/Ru (0.8nm)/Co ₅₀ Fe ₅₀ (3nm)	Co ₅₀ Fe ₅₀ (1nm)/Fe (6nm)	1.2	45	9	2.4	17-24 k $\Omega \mu\text{m}^2$	30	<p><u>Cycle R-H</u>:</p> <ul style="list-style-type: none"> - champ coercitif important de la DL - décalage en champ du cycle mineur <p><u>Cycle R-α</u>:</p> <ul style="list-style-type: none"> - décalage important par rapport à l'ajustement avec une fonction cosinus autour de la configuration d'aimantation parallèle - hystérésis aller/retour augmenté 	le couplage ferromagnétique entre la DL et l'AAF (peau d'orange) augmente car les moments magnétiques de l'AAF et DL augmentent par l'utilisation du Co ₅₀ Fe ₅₀

Tableau 5.1. Propriétés de transport des JTMs en fonction des paramètres des barrières tunnel et de la configuration des systèmes AAF et DL

Les effets des différents paramètres des jonctions tunnel sur les propriétés de transport qui sont évoquées ci-dessus sont bien connus. En effet, les recherches menées ces cinq dernières années ont essentiellement porté sur l'optimisation des conditions de croissance des barrières isolantes et de l'amplitude maximale de la magnéto-résistance tunnel. Cependant, ce qui est beaucoup moins connu et de plus en plus étudié est l'interaction qui existe entre les différentes couches magnétiques d'une jonction tunnel ainsi que les implications de ces interactions sur la forme et l'amplitude du signal TMR.

Couplage entre les couches magnétiques d'une jonction tunnel magnétique

Etant données les dimensions latérales réduites d'une jonction tunnel magnétique, induites par le procédé de structuration des dépôts multicouches pour les mesures de transport perpendiculaire au plan des couches, le *couplage magnétostatique* entre deux couches provient de la superposition de :

- *un couplage dipolaire ferromagnétique*. L'origine de ce couplage a été minutieusement analysée dans le chapitre précédent dans le cas de films continus. Il provient de la superposition du couplage de type peau d'orange et du couplage induit par les champs de dispersions associés aux structures en domaines contenues dans les couches magnétiques.
- *un couplage dipolaire antiferromagnétique* . L'origine de ce couplage réside dans la fermeture des champs de dispersions créés par l'accumulation de charges magnétiques sur les bords des couches magnétiques lorsque leur taille latérale est réduite. Suivant la forme et notamment le rapport longueur/largeur de l'élément gravé, ce couplage peut atteindre des valeurs très élevées.

Néanmoins, les jonctions étudiées dans le cadre de ce travail de thèse possèdent toutes une géométrie carrée avec des dimensions latérales supérieures à 10 μ m. Dans ce cas, seul un *couplage global ferromagnétique* a pu être mis en évidence. Cependant, des mesures très récentes sur des jonctions avec un rapport longueur/largeur différent et avec des formes différentes (rectangle, ellipse) présentent une réduction du couplage ferromagnétique voir même l'apparition d'un couplage net antiferromagnétique. Ces résultats montrent le fait que la contribution dipolaire antiferromagnétique est fortement liée à la géométrie et à la taille de la jonction tunnel.

Couplage entre la couche de détection et l'AAF

Les effets du couplage magnétostatique ferromagnétique, entre la DL et l'AAF dans les empilements multicouches, peuvent être visualisés dans les figures 5.2 (d) -5.5 (d). Dans ces courbes, il s'agit d'analyser :

- *l'hystérésis* existant entre une mesure de résistance en champ tournant aller (l'angle varie entre 0 et 360°) et en champ tournant retour (l'angle varie entre 360° et 0°). Cet hystérésis est une conséquence directe du couplage entre la DL et l'AAF. En effet, la rotation de l'aimantation de la couche de détection perturbe l'aimantation de l'AAF. Plus le couplage est grand, plus la perturbation de l'ordre magnétique de l'AAF induite par la rotation de la DL est grande. L'hystérésis n'en sera alors que plus marqué.
- la déviation de la courbe $R-\alpha$ par rapport à une loi en cosinus de l'angle entre le champ appliqué et l'aimantation fixe de l'AAF. L'effet du couplage ferromagnétique se traduit par un élargissement du cycle $R-\alpha$ autour de la configuration d'aimantations parallèles (rayon de courbure plus petit) alors qu'autour de la configuration d'aimantations antiparallèles, le cycle devient plus étroit (rayon de courbure plus important).

Tout comme dans les mesures présentées dans les paragraphes précédents, les effets du couplage magnétostatique ferromagnétique dépendent de la distance entre la DL et l'AAF ainsi que des valeurs des moments magnétiques en contact avec la barrière.

- L'effet du couplage est relativement faible dans des JTMs avec des barrières tunnel épaisses (figure 5.2 , 5.3). En effet, dans ce cas, les cycles $R-\alpha$ peuvent être ajustés de manière satisfaisante par une fonction de type cosinus (figure 5.2 (d), 5.3 (d)) et les cycles aller/retour se superposent. Lorsque l'épaisseur de la barrière diminue, les couplages magnétostatiques ferromagnétiques entre l'AAF et la DL augmentent. Cette augmentation se traduit par une déviation par rapport à la loi de type cosinus et l'apparition d'un hystérésis de rotation (figure 5.2 (d), 5.3 (d)). Ainsi, autour du minimum de résistance, le couple exercé par le champ appliqué est contrebalancé par celui provenant du champ dipolaire qui est à l'origine du couplage ferromagnétique entre les électrodes magnétiques de la jonction. L'aimantation de la DL conserve alors une orientation proche de celle de l'AAF et la résistance ne suit plus une loi en cosinus. Elle conserve une valeur plus faible que celle qu'elle devrait avoir.

- Pour une épaisseur de barrière donnée, l'effet du couplage magnétostatique ferromagnétique devient encore plus important lorsque le moment magnétique net des systèmes magnétiques en contact avec la barrière isolante augmente. En effet, comme nous pouvons le voir dans la figure 5.5, l'effet est plus important dans les jonctions contenant un AAF $\text{Co}(2\text{nm})/\text{Ru}(0.8\text{nm})/\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}(3\text{nm})$ ($Q=2$) et une DL $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}(1\text{nm})/\text{Fe}(6\text{nm})$ que dans celles contenant un AAF $\text{Co}(1.8\text{nm})/\text{Ru}(0.8\text{nm})/\text{Co}(3\text{nm})$ ($Q=4$) et une DL $\text{Co}(1\text{nm})/\text{Fe}(6\text{nm})$.
- Ce couplage peut également induire du piégeage de parois dans la couche de détection. Ce piégeage se traduit par l'apparition de petits sauts, de type « Barkhausen », dans le renversement de la DL comme nous pouvons le voir dans la figure 5.4 (c). Ce piégeage est d'autant plus marqué que l'épaisseur de l'isolant est faible.

En résumé, l'intensité du couplage dipolaire est directement proportionnelle aux moments magnétiques des couches couplées et dépend de l'épaisseur de la barrière isolante. Pour la réalisation de dispositifs microélectroniques de petites tailles, il est nécessaire de réduire la résistance de jonction par unité de surface à des valeurs proches de $10 \text{ k}\Omega \cdot \mu\text{m}^2$. Pour cela, avec une barrière d' Al_2O_3 , la seule possibilité est de réduire l'épaisseur de la barrière ce qui augmente le couplage dipolaire. Ce dernier peut cependant être réduit et même supprimé en utilisant un AAF dont le moment magnétique net est réduit comme cela a été fait dans le cadre de ce travail de thèse. La suppression totale peut être obtenue en jouant sur le facteur Q de l'AAF. Cependant, si celui-ci devient trop important, il est nécessaire d'induire un axe d'anisotropie pour bloquer la rotation du moment résultant. Conventionnellement, cette anisotropie est induite par le blocage d'une des couches de l'AAF par un matériau antiferromagnétique de type FeMn , PtMn , IrMn etc.....

Autre origine possible du couplage dipolaire entre la couche de détection et l'AAF

Dans les paragraphes et chapitres précédents, nous avons déjà évoqué les origines possibles du couplage ferromagnétique entre les électrodes magnétiques dans des JTMs. A l'aide des mesures de résistance tunnel dans un champ tournant, nous avons testé les causes liées aux phénomènes de transport électronique à travers la barrière. Pour cela, les courbes $R-\alpha$ ont été mesurées pour différentes valeurs de la tension de polarisation (figure 5.6). Les résultats montrent que le couplage n'est pas influencé par la tension appliquée. Par conséquent, le couplage n'est pas de type Slonczewski car ce dernier varie avec la tension appliquée sous

l'effet de la déformation de la barrière isolante. Ainsi, le couplage ferromagnétique qui se manifeste dans nos empilements multicouche a une origine magnétostatique pure.

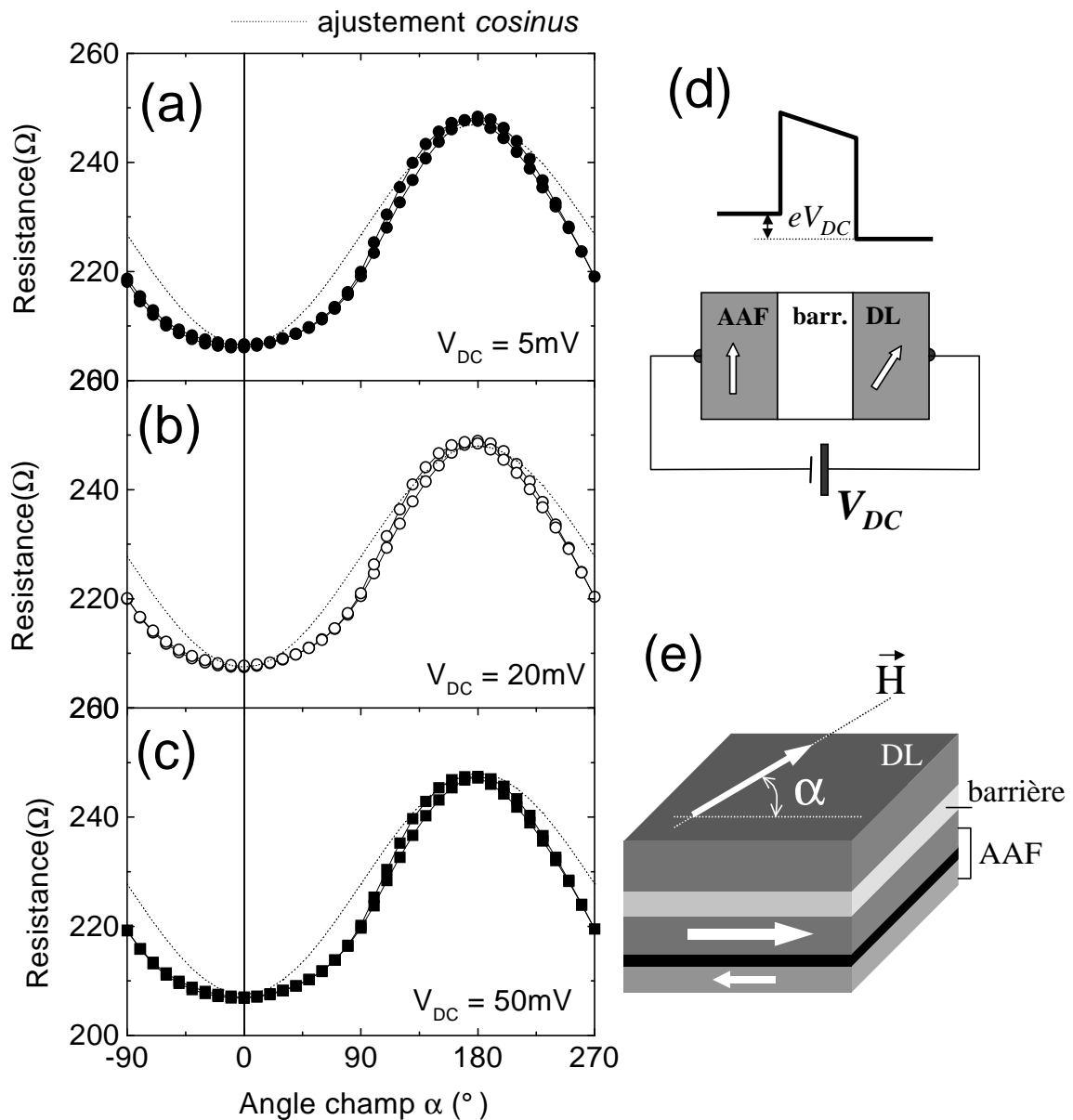


Figure 5.6. Cycles R - α de magnétorésistance tunnel mesurés dans un champ magnétique rotatif d'intensité suffisamment faible pour préserver l'AAF magnétiquement rigide et suffisamment fort pour tourner l'aimantation dans la DL. Les mesures ont été effectuées pour des tensions de polarisation de la JTM égales à (a) 5 mV, (b) 20 mV et (c) 50 mV ; (d) Profil de potentiel d'une barrière soumise à une tension de polarisation DC; (e) Disposition angulaire des aimantations des couches magnétiques actives de la JTM pendant la mesure en champ rotatif.

5.2. Corrélation entre le micromagnétisme et la magnétorésistance tunnel dans les JTMs

Comme nous l'avons déjà évoqué dans le paragraphe précédent, l'amplitude et la forme du signal TMR dépendent du type d'AAF utilisé dans la jonction tunnel. D'une part, l'utilisation d'un AAF Co/Ru/Co₅₀Fe₅₀, où la couche de Co₅₀Fe₅₀ est en contact avec la barrière tunnel, permet d'augmenter l'amplitude du signal TMR de 22 à 30%. D'autre part, les rigidités magnétiques différentes des AAFs Co/Ru/Co₅₀Fe₅₀ et Co/Ru/Co ainsi que la stabilité différente des parois créées durant le renversement de leur moment magnétique net modifient de manière drastique la forme des cycles TMR. L'existence de fluctuations d'aimantation ou de parois de domaines au sein de l'AAF entraînent alors l'apparition de canaux de conduction tunnel parallèles qui réduisent l'amplitude de la magnéto-résistance mesurée.

5.2.1. Forme des cycles TMR et structures en domaines

Les processus de renversement de l'aimantation ainsi que l'amplitude du signal magnétorésistif sont contrôlés par l'évolution de la structure en domaines dans les deux couches couplées de l'AAF sous champ magnétique. Une description complète du comportement magnétique des AAFs nécessite alors la corrélation entre :

- l'analyse MFM qui donne les distributions locales des moments magnétiques qui ont été présentées dans le chapitre 4 de ce manuscrit.
- les cycles de magnéto-résistance tunnel.

Les cycles d'aimantation corrélés aux courbes de magnétorésistance tunnel TMR-H mesurés pour des champs compris entre +/- 1kOe sur des AAFs Co/Ru/Co et Co/Ru/CoFe sont rassemblés figure 5.7. Les champs coercitifs des deux AAFs sont d'environ 400 Oe mais le renversement est beaucoup plus «lent» dans le cas de l'AAF Co/Ru/Co. La différence provient de leurs moments magnétiques nets différents et de leurs longueurs de corrélation différentes. Dans le système Co/Ru/Co, le moment net est petit et les parois créées dans ce système lors du renversement magnétique de son moment net sont plus stables que dans le système Co/Ru/CoFe, de moment net plus grand. Par conséquent, le retournement de l'aimantation de l'AAF Co/Ru/Co est moins abrupt que celui du Co/Ru/CoFe.

Les images MFM insérées dans les figures 5.7 (a) et (b) corroborent cette interprétation. Elles ont été enregistrées sur ces deux AAFs pour le même champ magnétique inverse égal à - 600 Oe.

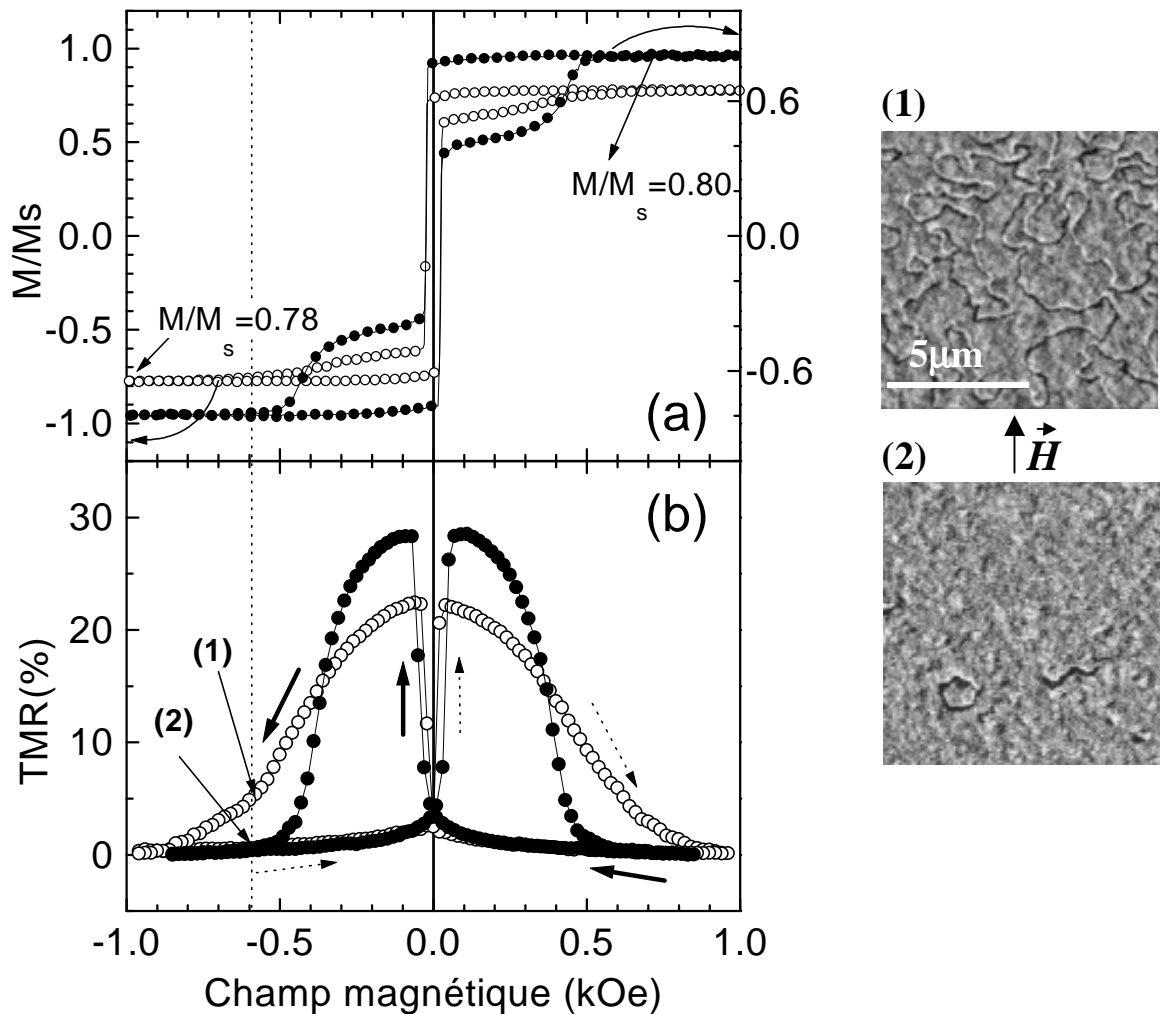


Figure 5.7. (a) Cycles d'aimantation mesurés sur des jonctions utilisant un AAF Co/Ru/Co (---o---) et un AAF Co/Ru/CoFe (---●---) ; (b) Courbes de magnéto-résistance tunnel mesurées sur des JTM qui utilisent les AAFs Co/Ru/Co (---o---) et Co/Ru/CoFe (---●---). Les images MFM montrent la stabilité des parois de Néel à 360°, différente dans les deux types d'AAF utilisés dans les JTM. La taille des images MFM est $10 \times 10 \mu\text{m}^2$, et l'aimantation de la pointe magnétique est perpendiculaire à la surface de l'échantillon.

Lorsque le renversement de l'AAF est quasi complet comme nous pouvons le voir sur les courbes M-H, la densité résiduelle de parois à 360° est importante dans l'AAF de moment magnétique net plus faible, Co/Ru/Co, alors que dans l'AAF de moment magnétique net plus grand, Co/Ru/CoFe, elle est quasiment nulle. L'existence de parois résiduelles modifie l'amplitude du signal TMR de la JTM. Afin de quantifier l'influence des fluctuations de l'aimantation dans les électrodes magnétiques d'une JTM sur l'amplitude et la forme de la

TMR, nous proposons un modèle de transport tunnel dépendant du spin pour une JTM dont les électrodes possèdent une structure en domaines.

5.2.2. Modèle électrique pour la JTM dans un état multi-domaine

Tant que le champ appliqué est inférieur à 250 Oe, le système AAF se comporte comme un bloc magnétiquement rigide. En dehors de cette fenêtre de champs, l'aimantation de l'AAF est perturbée à un niveau local. Ces perturbations se traduisent par le fait que le plateau de résistance maximale n'est pas très étendu.

Dans la figure 5.8, nous proposons un modèle permettant d'expliquer l'influence de la structure magnétique locale des électrodes d'une JTM sur le signal magnétorésistif. Il repose sur deux propriétés fondamentales de l'effet tunnel élastique dépendant du spin :

- Premièrement, le courant tunnel décroît exponentiellement avec la distance parcourue par les électrons dans la barrière. Ainsi, les canaux de conduction préférentiels sont les trajets électroniques les plus courts pour traverser l'isolant. Le courant tunnel polarisé en spin dépend alors de l'orientation locale relative des moments magnétiques des régions centrées l'une sur l'autre, situées de part et d'autre de la barrière.
- Deuxièmement, le signal TMR dépend seulement de la configuration des aimantations des couches magnétiques directement interfacées avec la barrière tunnel.

La conséquence directe de ce modèle est que les domaines magnétiques et les parois qui séparent les domaines constituent des canaux de conduction tunnel de résistance électrique différente, déterminée par les fluctuations latérales de l'angle entre les moments magnétiques des couches magnétiques directement en contact avec la barrière. Ainsi, lorsque la couche de détection se trouve dans une configuration monodomaine après le renversement de son aimantation, le signal TMR n'est sensible qu'à la structure magnétique dans la couche de l'AAF qui est en contact direct avec la barrière.

Regardons ce qui se passe lorsque la couche épaisse de l'AAF est en contact avec la barrière tunnel et lorsqu'un champ négatif est appliqué à la structure (champ orienté de droite vers la gauche). Nous savons que des domaines magnétiques, séparés par des parois de Néel à 360° ,

sont créés dans l'AAF lors du renversement de son moment net pour un champ magnétique négatif (figure 5.8 (a), (b)).

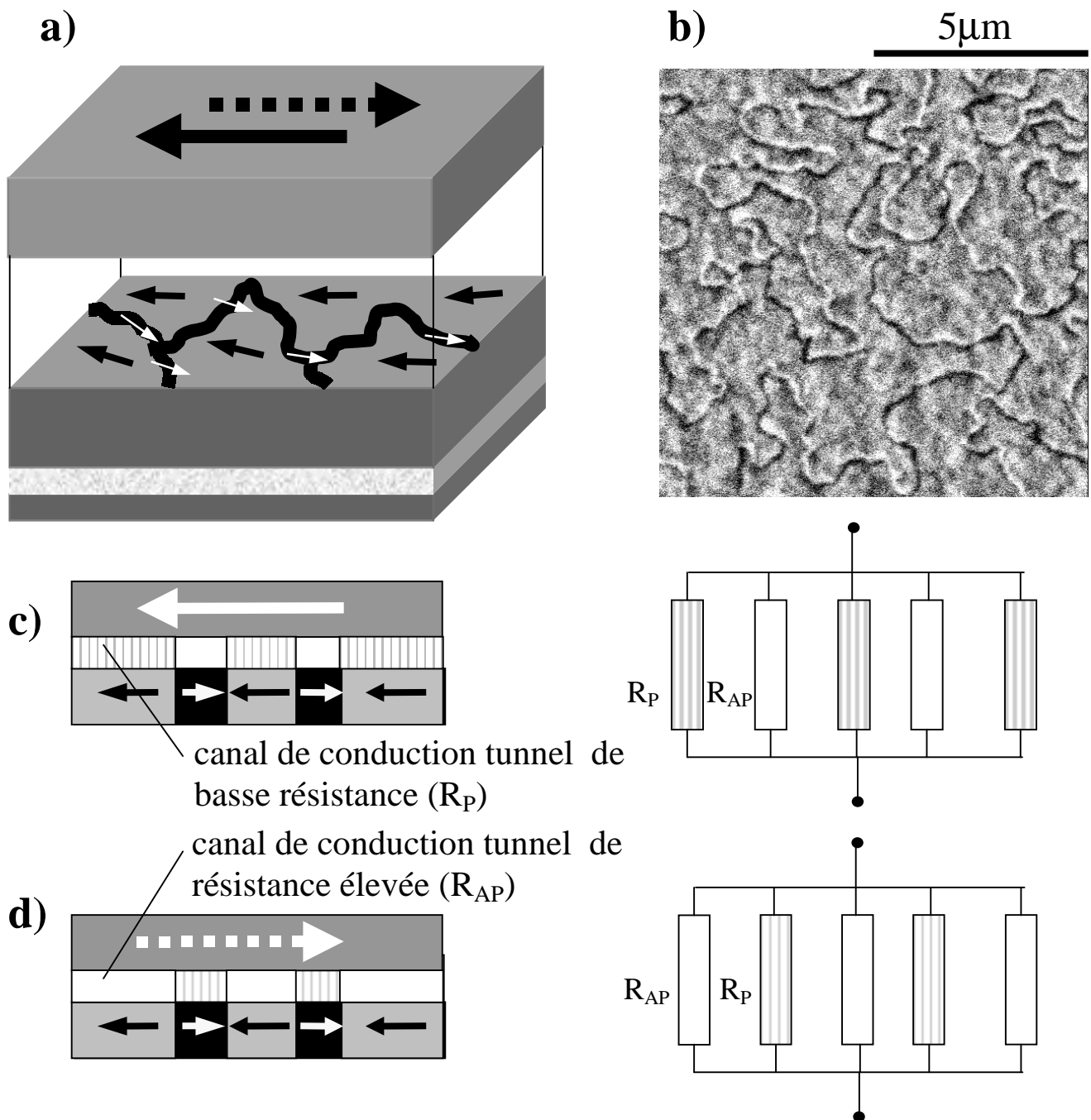


Figure 5.8. (a) Schéma tridimensionnel des structures en domaines dans la DL (couche du haut) et dans l'AAF (couche du bas) durant le renversement de l'AAF ; (b) Image MFM, mesurée sur un AAF, qui démontre la présence de parois à 360° créées dans la couche épaisse de l'AAF pendant le renversement de son aimantation ; (c), (d) Lorsque les électrodes présentent un état magnétique multidomaines, la JTM est modélisée par un réseau de résistances connectées en parallèle. La valeur des résistances est fonction de l'orientation relative de l'aimantation de la DL avec celle de la couche de l'AAF en contact avec la barrière tunnel. Domaines et parois ne contribuent pas de la même manière à la résistance.

Après le renversement de l'aimantation de la couche de détection (figure 5.8 (a) flèche noire continue du haut, 5.8 (c)), les parois localisées dans la couche épaisse de l'AAF déterminent des canaux de conduction de résistance élevée due à l'orientation antiparallèle de l'aimantation du centre de paroi par rapport à celle de la couche de détection. Par contre, les domaines magnétiques déterminent des canaux de conduction de résistance faible à cause de l'orientation parallèle de l'aimantation des domaines par rapport à la couche de détection (figure 5.8 (c)).

Ainsi, la résistance tunnel R d'un canal de conduction de position \vec{r} , pour lequel le moment magnétique local de l'AAF fait un angle θ par rapport à celui de la couche de détection, peut être estimée à l'aide de l'équation:

$$R(\vec{r}) = \frac{1}{2} [R_P + R_{AP} + (R_P - R_{AP}) \cos \theta(\vec{r})] \quad (5.1)$$

où R_P et R_{AP} sont les résistances du même canal de conduction de spin dans une configuration parallèle ($\theta=0$) et antiparallèle ($\theta = \pi$) respectivement. La résistance totale d'une jonction tunnel magnétique dans un état multidomaine peut alors être décrite par un réseau de résistances connectées en parallèle. Chaque résistance est déterminée par l'angle que fait l'aimantation soit d'un domaine, soit d'une paroi de domaines avec celle de la couche de détection.

La résistance totale peut alors s'écrire

$$\frac{1}{R} = \sum_{\vec{r}} \frac{2}{R_P + R_{AP} + (R_P - R_{AP}) \cos \theta(\vec{r})} \quad (5.2)$$

Une situation encore plus intéressante peut être rencontrée lorsque, à partir de la situation présentée ci dessus, l'aimantation de la couche de détection est renversée dans la direction positive alors que des parois à 360° subsistent dans la couche épaisse de l'AAF (figure 5.8 (a) flèche noire pointillée du haut, 5.8 (d)).

Dans ce cas, les domaines ont une aimantation opposée à celle de la DL et constituent des canaux de conduction de résistance élevée alors que les parois constituent des canaux de conduction de résistance faible (figure 5.8 (d)). Ces derniers canaux se comportent alors comme des "courts-circuits" et si les parois sont stables, la résistance totale de la JTM ne va pas pouvoir atteindre sa valeur maximale obtenue lorsque les deux couches sont saturées.

A l'aide de ce modèle, il est possible d'estimer la variation de résistance tunnel $\Delta R_{\text{paroi}}/R$ induite par les parois de Néel à 360° résiduelles formées durant le renversement de l'AAF. Plus des détails sur cet type d'analyse sont présentés dans l'Appendice C de ce manuscrit. En effet, la densité de parois sous champ magnétique inverse peut être estimée à partir des images MFM alors que la résistance d'un canal de conduction tunnel constitué par une paroi peut être calculée à partir du profil d'une paroi à 360° . Des calculs, effectués dans le cas des JTMs utilisant des AAFs Co/Ru/Co et Co/Ru/CoFe (Appendice C) donnent des valeurs raisonnables pour la contribution des parois sur la magnétoresistance résiduelle, dont la surface totale est estimée à partir des images MFM, par rapport à la valeur estimée à partir des courbes TMR-H (figure 5.7). Des faibles différences entre les valeurs calculées à partir des images MFM et les valeurs mesurées sur les cycles TMR-H peut être attribuées aux effets tels que :

- les fluctuations locales de l'orientation de l'aimantation à l'intérieur des domaines. Ces fluctuations apparaissent dans le contraste des images MFM comme une *rugosité magnétique* à l'intérieur des domaines.
- la conductance d'un canal dépend de la transmission tunnel locale de la barrière tunnel. En effet, si un domaine ou une paroi est localisé(e) dans une région de transmission tunnel élevée, sa contribution à la conductance tunnel globale est plus importante.

Ce modèle de conduction dans les JTMs, dont les électrodes sont dans un état magnétique multi-domaines, a été utilisé pour expliquer les résultats de mesure obtenus dans quelques configurations expérimentales qui sont présentées dans la suite de ce chapitre.

5.2.3. Illustration de l'effet de la structure en domaines sur le signal TMR

Dans les figures 5.9 et 5.10, nous présentons trois histoires magnétiques différentes afin d'illustrer les effets liés à la présence de canaux de conduction de résistances différentes, déterminés par la structure en domaines de l'AAF. Dans les figures sont rassemblées la courbe d'aimantation de la multicouche dans la gamme de champ +/- 1kOe et les courbes de magnétoresistance tunnel correspondantes à chaque histoire magnétique. Des schémas, représentant la configuration magnétique de l'AAF et de la DL dans la JTM, sont associés à ces mesures. Chaque schéma représente une configuration pour un champ appliqué et donne la direction du champ magnétique (flèche pointillée) et celle de la DL (flèche de droite). Les trois flèches du milieu, en haut, représentent la distribution d'aimantation dans la couche

épaisse de l'AAF ; les trois flèches du milieu, en bas, représentent la distribution d'aimantation dans la couche fine de l'AAF ; les rectangles gris indiquent la position des parois à 360° .

Couche épaisse de l'AAF en contact avec la barrière tunnel

Considérons la configuration où la couche épaisse de l'AAF est en contact avec la barrière tunnel. Les courbes d'aimantation et de magnéto-résistance tunnel sont alors mesurées sur une jonction $\text{Co}(1.8\text{nm})/\text{Ru}(0.8\text{nm})/\text{Co}(3.0\text{nm})/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}(1\text{nm})/\text{Fe}(6\text{nm})$ et sont présentées dans les figures 5.9 (a) et 5.9 (b). Dans ce cas, c'est le comportement magnétique de la couche épaisse de l'AAF qui détermine la forme et l'amplitude de la TMR dans la fenêtre de champs où la DL se trouve dans un état magnétique monodomaine. Avant d'effectuer la mesure de magnéto-résistance tunnel, l'échantillon est saturé dans un champ magnétique positif. Ainsi, toutes les couches magnétiques de l'empilement de la JTM sont supposées être colinéaires et dans un état monodomaine [état (a), figure 5.9 (a), 5.9 (b), 5.9 (d)]. Dans l'état (a), c'est à dire dans le plateau AF de l'AAF, les couches magnétiques de l'AAF sont fortement couplées antiferromagnétiquement.

La diminution du champ magnétique appliqué positif conduit à l'apparition de régions uniformément aimantées dont les moments magnétiques sont alignés à l'intérieur d'un angle contenant la direction du champ saturant positif [figure 5.9 (d), état (b)].

Ces domaines sont séparés par des régions où les moments magnétiques ne tournent pas qui vont définir la localisation des parois à 360° lors du renversement magnétique de l'AAF. Cette configuration d'aimantation est dupliquée antiferromagnétiquement dans la couche fine de l'AAF, par le couplage AF d'échange. La rotation de ces domaines est la source de la faible augmentation de résistance observée dans la branche (a-b) de la courbe TMR-H [figure 5.9 (b)].

Après le renversement abrupt de la couche de détection, correspondant à une augmentation abrupte de la résistance tunnel [figures 5.9 (b) et 5.9 (d), état (c)], la résistance décroît progressivement lorsque le champ magnétique inverse augmente. Les moments magnétiques des domaines uniformément aimantés tournent graduellement dans le sens des aiguilles d'une montre et dans le sens contraire [figure 5.9 (d), état (d)]. A chaque instant, la configuration magnétique de la couche épaisse de l'AAF est dupliquée dans la couche fine par l'effet du couplage AF.

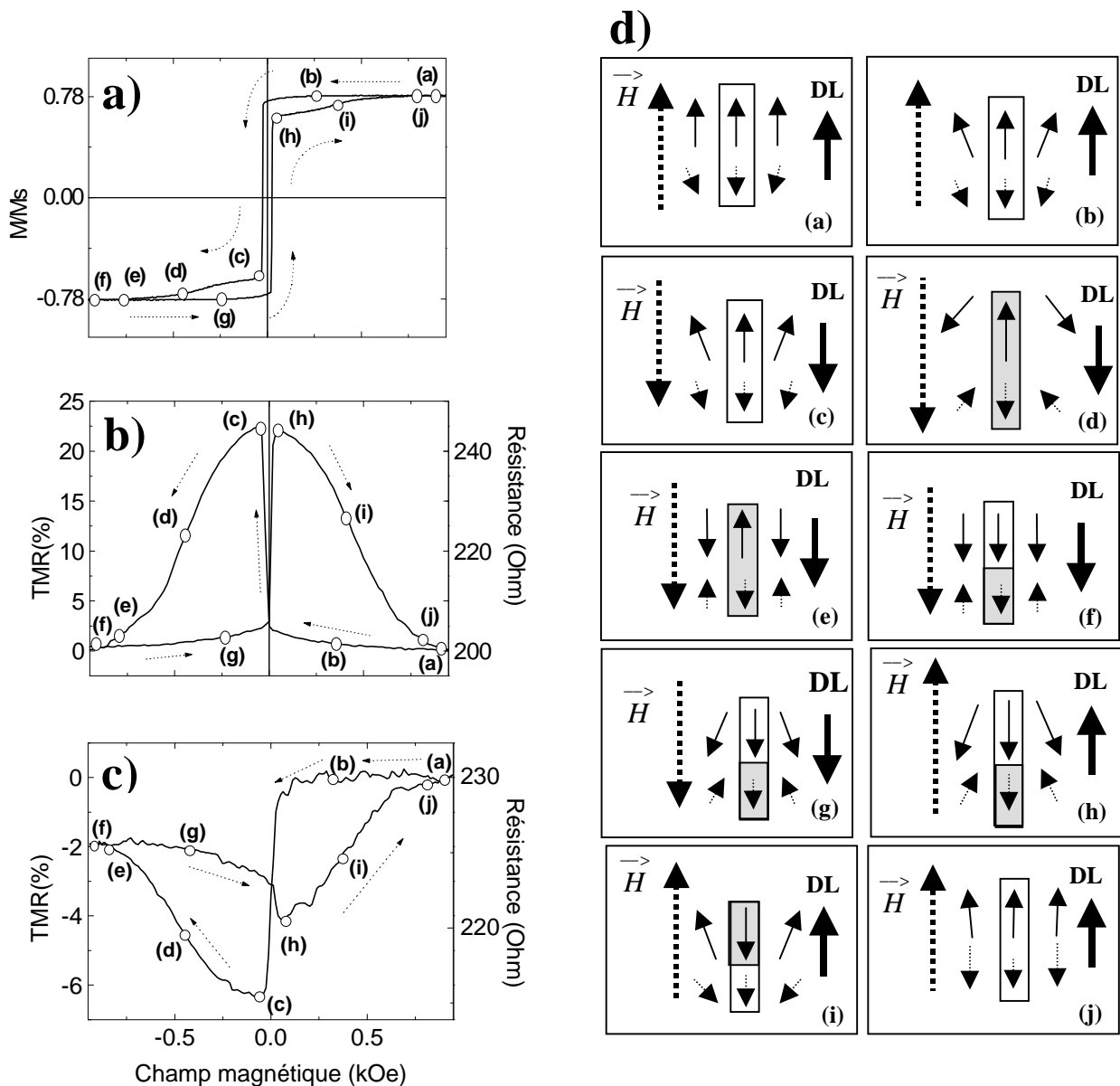


Figure 5.9. Influence des parois à 360° sur la forme et l'amplitude de la courbe TMR pour une JTM Co/Ru/Co/Al₂O₃/Co/Fe.

- (a) Cycle mineur d'aimantation pour la JTM Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm)/Al₂O₃/Co(1nm)/Fe(6nm) après saturation de l'AAF dans un champ de 13kOe.
- (b) Courbe TMR mineur pour l'empilement Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm)/Al₂O₃/Co(1nm)/Fe(6nm) après saturation de l'AAF dans un champ de 13kOe. La couche épaisse de l'AAF est en contact avec la barrière. La symétrie du cycle montre que les parois créées dans la couche épaisse peuvent être annihilées dans la fenêtre en champ de +/-1kOe.
- (c) Courbe TMR mineur pour l'empilement Co(3nm)/Ru(0.8nm)/Co(1.8nm)/Al₂O₃/Co(1nm)/Fe(6nm) après saturation de l'AAF dans un champ de 13kOe. La couche fine de l'AAF est en contact avec la barrière. L'asymétrie du cycle reflète la grande stabilité des parois à 360° dans la couche fine de l'AAF dans la fenêtre en champ de +/-1kOe.
- (d) Schémas représentant la configuration magnétique moyenne des couches magnétiques actives de la JTM (couche de détection, AAF) pour les champs significatifs représentés sur les cycles TMR-H. Flèche pointillée : direction du champ appliqué ; Flèche de droite (DL) : direction de l'aimantation de la couche de détection ; Les trois flèches du milieu, en haut : distribution d'aimantation dans la couche épaisse de l'AAF ; Les trois flèches du milieu, en bas : distribution d'aimantation dans la couche fine de l'AAF. Les rectangles gris indiquent la position des parois à 360° .

Les parois à 360° créées dans la couche épaisse de l'AAF sont instables car l'aimantation du centre de paroi pointe dans la direction opposée de celle du champ magnétique appliqué [figure 5.9 (d), état (e)]. Par conséquent, dans la couche épaisse, les parois sont annihilées peu après le renversement complet de l'aimantation des domaines adjacents [figure 5.9 (d), état (f)].

Cependant, les parois à 360° dans la couche fine de l'AAF restent très stables car elles possèdent une aimantation de centre de paroi orientée dans la direction du champ négatif [figure 5.9, état (e)]. Des champs magnétiques largement supérieurs à 1kOe doivent alors être appliqués pour faire disparaître ces parois. Après l'annihilation des parois dans la couche épaisse de l'AAF dans le champ négatif $-H_{\max} = -1\text{kOe}$, son comportement sur la branche retour ($-H_{\max}$, H_{\max}) est similaire à celui observé sur la branche aller ($+H_{\max}$, $-H_{\max}$). Ainsi, la courbe TMR-H est symétrique.

Couche fine de l'AAF en contact avec la barrière tunnel

La stabilité des parois à 360° dans la couche fine de l'AAF pour des champs magnétiques appliqués de $-H_{\max} = -1\text{kOe}$ est mise en évidence expérimentalement par des mesures de transport tunnel polarisé en spin dans le système $\text{Co}(3\text{nm})/\text{Ru}(0.8\text{nm})/\text{Co}(1.8\text{nm})/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}(1\text{nm})/\text{Fe}(6\text{nm})$ [Figure 5.9 (c)]. Tandis que la courbe d'aimantation est identique à celle mesurée lorsque la couche épaisse de l'AAF est en contact avec la barrière tunnel [figure 5.9 (a)], la courbe TMR-H présente une large asymétrie lorsque la couche magnétique fine de l'AAF est en contact avec la barrière [figure 5.9 (c)].

Dans ce cas, c'est le comportement magnétique de la couche fine de l'AAF qui détermine la forme et l'amplitude de la TMR dans la fenêtre de champs où la DL se trouve dans un état magnétique monodomaine. Avant d'effectuer la mesure de magnétorésistance tunnel, l'échantillon est saturé dans un champ magnétique positif. Ainsi, toutes les couches magnétiques de l'empilement de la JTM sont supposées être colinéaires et dans un état monodomaine [état (a), figure 5.9 (c), 5.9 (d)].

En contraste avec la situation précédente, la résistance de la JTM est ici maximale dans l'état initial à $H = +1\text{kOe}$ car les aimantations de DL et de la couche fine de l'AAF se trouvent dans une configuration antiparallèle [figure 5.9 (d), état (a)]. Ensuite, de faibles fluctuations de l'aimantation, dupliquées par le couplage AF dans les deux couches de l'AAF, sont à l'origine

de la légère diminution de résistance dans la branche (a-b) de la courbe TMR-H lorsque le champ magnétique positif diminue [figure 5.9 (d)]. Lorsque le champ est inversé dans la direction négative, une chute abrupte de résistance peut être observée, induite par la transition dans un régime d'alignement parallèle des aimantations de la DL et la couche fine de l'AAF [figures 5.9 (c) et 5.9. (d), état (c)]. En augmentant encore le champ magnétique inverse, la résistance tunnel de la JTM augmente à nouveau progressivement à cause de la rotation continue des aimantations dans les couches magnétiques de l'AAF lors du renversement magnétique de son moment magnétique net [figure 5.9 (d), état (d)].

En augmentant le champ magnétique négatif, on obtient une courbe identique à celle présentée figure 5.9.

L'existence et la stabilité des parois à 360° dans la couche fine de l'AAF, jusqu'à des champs inverses très élevés, sont démontrées par la courbe TMR-H. En effet, pour un champ appliqué de -1 kOe, l'état de haute résistance obtenu après saturation positive et dans le champ initial du cycle mineur égal à $+1$ kOe n'est pas retrouvé [figure 5.9 (c), 5.9 (d), état (a)]. Il doit alors exister dans le système des canaux de faible résistance qui n'existaient pas juste après la saturation positive. Ce sont les parois qui déterminent ces canaux comme le montrent les figures 5.9 (d) (état (f)) et 5.8 (d). En effet, l'aimantation du centre de paroi est orientée dans la direction du champ magnétique inverse, parallèle avec la couche de détection. En réduisant l'amplitude du champ magnétique négatif de $-H_{\max} = -1$ kOe vers zéro, une légère relaxation des aimantations dans les domaines peut expliquer une décroissance faible de la résistance de la JTM (figure 5.9 (d, état (g))). Lorsque le champ appliqué est nul, le réseau de résistances en parallèle décrivant la JTM dans l'état multidomaines, est constitué de résistances élevées formées par les domaines dont aimantation est quasi antiparallèle à celle de la DL et de résistances faibles correspondant aux parois [figure 5.8 (d)].

Ainsi, la résistance obtenue en champ nul dépend explicitement de la densité de parois résiduelles obtenue pour le champ maximum négatif appliqué [figure 5.9 (d), état (g)]. Dans les figures 5.9 (c) et 5.9 (d, état (h)), les deux réseaux de résistances sont quasi - équivalents, c'est pourquoi le renversement de l'aimantation de la DL ne produit qu'une faible variation de résistance de la JTM. Ensuite, en champ positif, l'augmentation progressive de la résistance est reliée à la rotation des aimantations dans les domaines lors du renversement de l'AAF et à l'annihilation des parois dans la couche fine qui sont instables dans le champ appliqué positif [figure 5.9 (d), état (j)].

Cycles mineurs, couche épaisse de l'AAF en contact avec la barrière

Les processus de renversement de l'aimantation et d'annihilation des parois de Néel à 360° dans la couche épaisse de l'AAF peuvent être analysés à l'aide des cycles mineurs R-H et TMR-H reportés dans les figures 5.10 et 5.11. Ces derniers ont été mesurés sur des JTM pour lesquelles la couche épaisse de l'AAF est en contact avec la barrière tunnel. La préparation magnétique de la JTM ainsi que la branche du cycle TMR obtenue à partir du champ positif de +1 kOe jusqu'au champ nul sont identiques à celles de la figure 5.9 (b) [figure 5.10, branche (a-b)]. En augmentant le champ magnétique négatif, on obtient une courbe identique à celle présentée dans la figure 5.9.

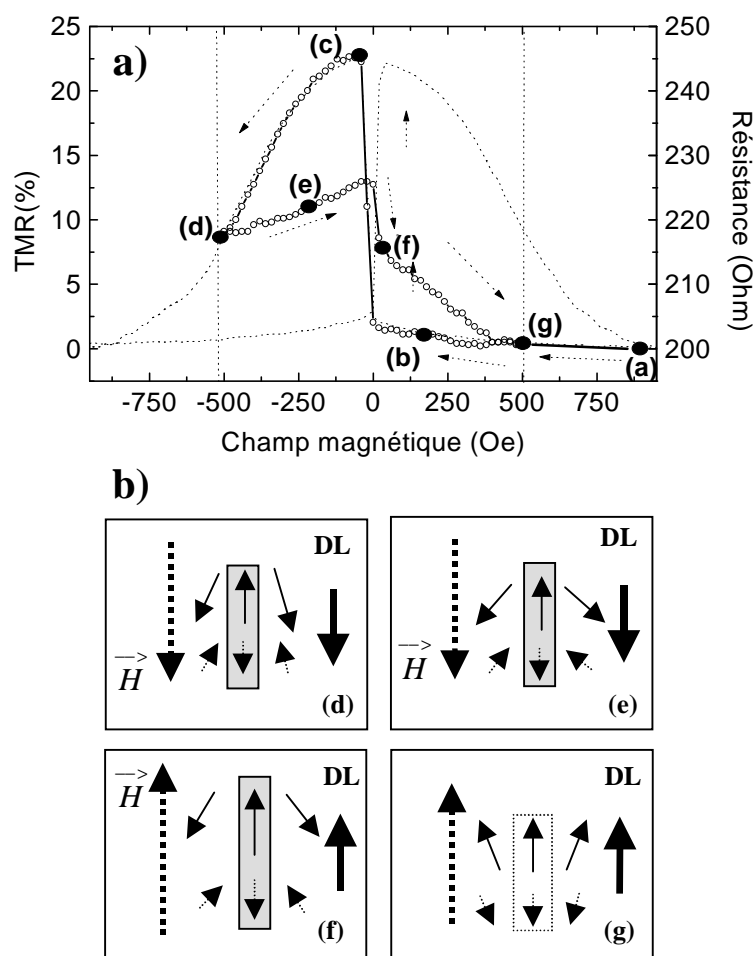


Figure 5.10. (a) Cycle TMR mineur mesuré après saturation de l'AAF à 13 kOe sur la JTM Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm)/Al₂O₃/Co(1nm)/Fe(6nm) dans une fenêtre de champ pour laquelle les parois à 360° restent stables dans la couche épaisse de l'AAF. Les parois constituent alors des canaux de conduction électronique différents de ceux formés par les domaines ; (b) Schémas représentant la configuration micromagnétique des couches magnétiques actives de la JTM (couche de détection, AAF) pour les champs significatifs représentés sur le cycle TMR. Flèche pointillée : direction du champ appliqué ; Flèche de droite (DL) : direction de l'aimantation de la couche de détection ; Les trois flèches du milieu, en haut : distribution d'aimantation dans la couche épaisse de l'AAF ; Les trois flèches du milieu, en bas : distribution d'aimantation dans la couche fine de l'AAF. Les rectangles gris indiquent la position des parois à 360° .

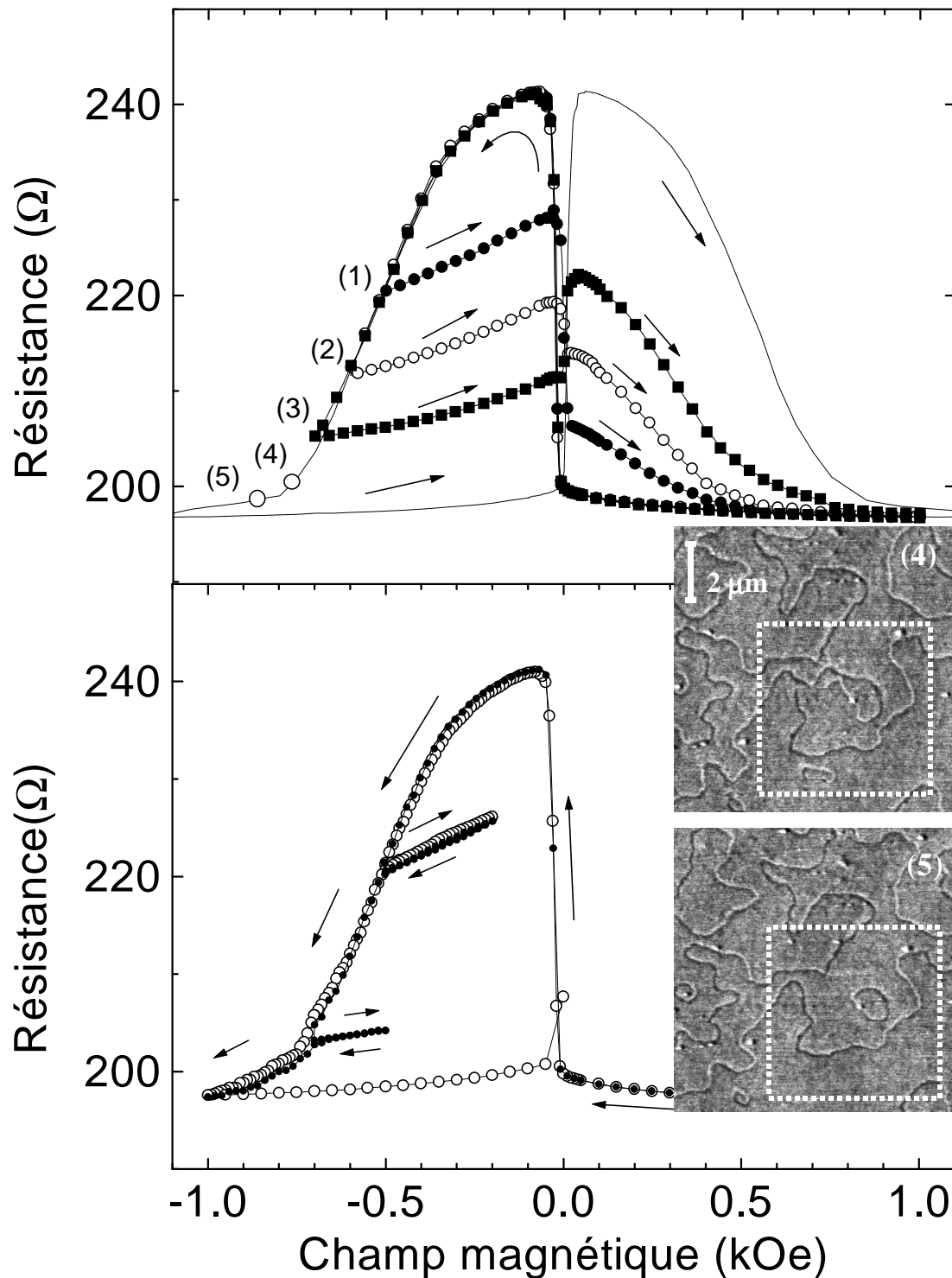


Figure 5.11. (a) Cycles TMR mineurs mesurés dans le plateau AF de l'AAF pour une JTM qui utilise un AAF avec la couche épaisse en contact avec la barrière tunnel (AAF-N). Les cycles asymétriques sont mesurés pour des champs compris entre + 1 kOe et différents champs négatifs permettant d'atteindre les états (1)-(3) lors du renversement de l'aimantation de l'AAF ; (b) Cycles TMR mineurs qui montrent la réversibilité du renversement de l'aimantation de l'AAF par rotation. Les images MFM montrent l'évolution de la structure en domaines entre les deux états (4) et (5) dans le régime d'annihilation des parois pour des champs où l'aimantation dans les domaines est déjà complètement inversée. Une paroi à 360° de géométrie circulaire est stabilisée à partir d'une paroi de topologie plus compliquée afin de minimiser l'énergie emmagasinée dans les parois. La taille des images MFM est de $10 \times 10 \mu\text{m}^2$, et l'aimantation de la pointe magnétique est perpendiculaire à la surface de l'échantillon.

Cependant, lorsque le champ magnétique est inversé à partir de l'état (d), une variation irréversible fortement asymétrique de la résistance de la JTM est mesurée sur le trajet retour jusqu'à +1 kOe. En effet, lorsque le champ magnétique négatif se rapproche de zéro à partir de l'état (d), la résistance de la JTM augmente légèrement à cause de la relaxation de l'aimantation dans les domaines sous l'effet des anisotropies locales effectives [figure 5.10(d), état (e)]. Sur ce trajet, les parois à 360° sont très stables. Lorsque le champ magnétique devient positif, le renversement abrupt de la DL entraîne l'apparition d'une variation abrupte de la résistance de la JTM.

L'amplitude et notamment le signe de la variation de résistance observée lorsque la couche de détection se renverse sont d'une importance particulière comme nous pouvons le voir dans les figures 5.10 (état (f)) et 5.11 (a). En effet, une diminution abrupte de la résistance de la JTM indique que le renversement de la DL active plus de canaux de faible résistance associés au réseau de parois. Cette diminution est visible dans la figure 5.10 (a) ainsi que dans la figure 5.11 lorsque le champ négatif est stoppé dans les états (1) et (2). La conduction est dominée par les canaux associés aux parois tant que leur densité reste grande. La transition entre canaux dominants s'opère lorsque l'on passe de l'état (2), à partir duquel le renversement de la DL entraîne un faible saut de résistance, à l'état (3) pour lequel une augmentation de résistance peut être observée. Le signe et l'amplitude du saut de résistance mesuré lorsque la DL se renverse nous donne une information directe sur la configuration micromagnétique de la couche de l'AAF en contact avec la barrière tunnel pour le champ négatif maximum appliqué. En effet, lorsque l'aimantation de la couche de détection s'inverse, la compétition entre les contributions résistives de signes opposés des canaux de conduction associés aux domaines ou aux parois détermine le signe et l'amplitude du saut de résistance total.

Cycles mineurs, couche fine de l'AAF en contact avec la barrière

Des résultats similaires sont observés lorsque des cycles mineurs sont mesurés sur des JTMs dont la couche fine de l'AAF est en contact avec la barrière tunnel (figure 5.12). Cette fois ci, à l'aide des cycles mineurs, nous avons accès à la densité de parois résiduelles dans la couche fine de l'AAF. La encore, le renversement de l'aimantation de la DL induit des sauts de signe et d'amplitude différents suivant l'état magnétique dans lequel se trouve la couche fine de l'AAF. Ce dernier dépend du champ maximum négatif appliqué pour atteindre les états (1), (2), (3), (4) de la figure 5.12.

Processus de rotation de l'aimantation étudié à l'aide des cycles mineurs

Dans la figure 5.11 (b), nous avons utilisé la sensibilité de la mesure TMR-H pour analyser l'évolution des phases magnétiques dans la couche épaisse de l'AAF lorsque la DL est dans un état monodomaine. Nous montrons que le processus de renversement de l'aimantation par rotation du moment net de l'AAF est un processus « réversible ». En effet, des branches de cycles ont été mesurées en s'arrêtant dans un certain champ négatif pendant le renversement de l'AAF, en augmentant son intensité et en le re-diminuant pour poursuivre le renversement. Nous montrons que les trajets aller et retour sur ces branches sont complètement réversibles ce qui justifie la nature élastique du processus de renversement magnétique dans la fenêtre de champs magnétiques pour laquelle les parois sont stables.

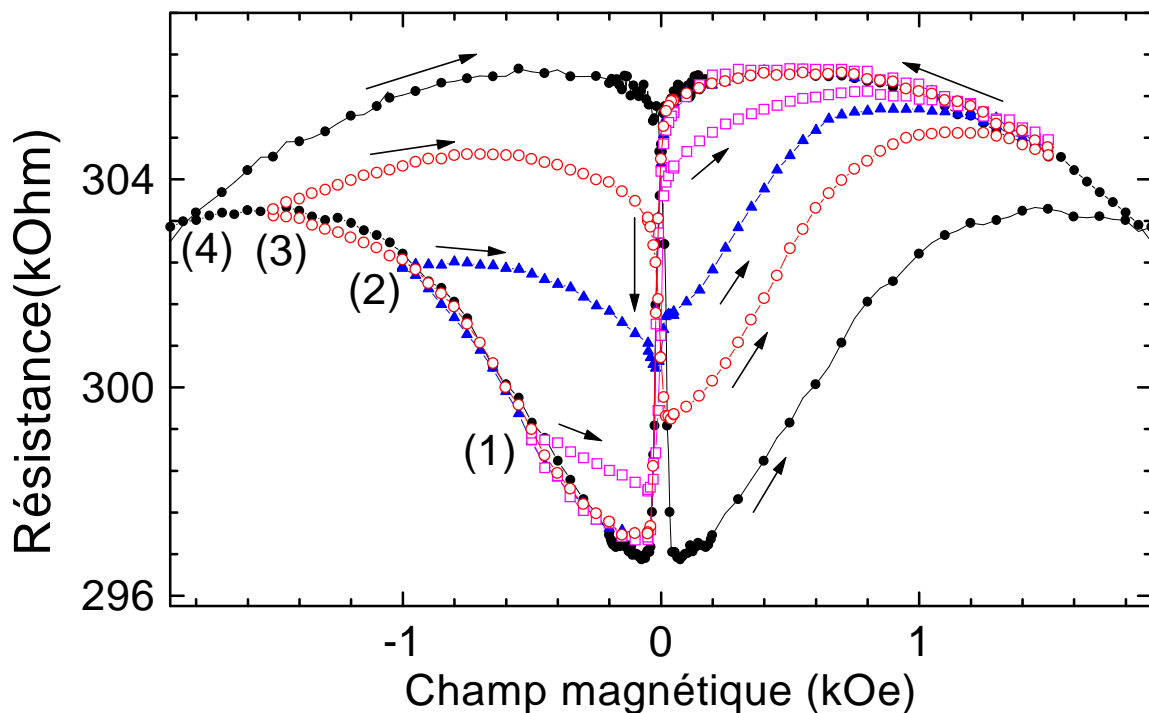


Figure 5.12. Cycles TMR mineurs mesurés dans le plateau AF de l'AAF pour une JTM qui utilise un AAF avec la couche fine en contact avec la barrière tunnel (AAF-R). Les cycles asymétriques sont mesurés pour des champs compris entre + 1 kOe et différents champs négatifs permettant d'atteindre les états (1)-(3) lors du renversement de l'aimantation de l'AAF

Lorsque les champs appliqués approchent de +/- 1 kOe, le « bruit » observé dans le signal magnétorésistif mesuré augmente (figure 5.11 (b)). Les études d'imagerie magnétique effectuées par MFM nous ont permis de corrélérer ce « bruit » aux processus d'annihilation des parois dans la couche en contact avec la barrière tunnel ou à l'évolution de la géométrie des

parois en augmentant le champ magnétique appliqué. Les images MFM insérées dans la figure 5.11 présentent l'évolution de la géométrie d'une paroi à 360° entre les états (4) et (5) indiqués dans la figure 5.11 (a). Une paroi circulaire à 360° est stabilisée en augmentant le champ négatif à partir d'une géométrie plus compliquée et irrégulière. Ces mesures montrent la sensibilité extrême de la JTM comme une sonde pour étudier des aspects concernant le micromagnétisme de ses électrodes.

5.3. Utilisation du transport tunnel dans une JTM comme une sonde pour étudier le micromagnétisme de ses électrodes

A partir des résultats présentés dans ce chapitre, nous pouvons conclure qu'une jonction tunnel magnétique peut constituer un outil efficace pour étudier le micromagnétisme de ses électrodes, notamment l'évolution des phases de domaines magnétiques en fonction du champ appliqué.

La technique d'analyse est analogue à celle utilisée en optique dans un système *polariseur-analyseur*. La couche magnétique, dont le comportement sous champ magnétique est à analyser, est utilisée comme couche magnétique rigide dans une JTM et constitue le système polariseur de spin. Cette couche est séparée par une barrière isolante d'une seconde couche ayant un faible champ coercitif et un renversement d'aimantation abrupt. Lorsque la couche douce se trouve dans un état magnétique monodomaine, elle se comporte comme un détecteur de spin pour les électrons injectés à travers la barrière tunnel à partir de la couche dure à analyser. Ainsi, toutes les variations du signal magnétorésistif avec le champ magnétique appliqué sont associées aux fluctuations de l'aimantation localisées dans la couche magnétique dure en contact direct avec la barrière tunnel. Cette dernière propriété nous permet d'étudier de manière sélective l'évolution des phases magnétiques dans chacune des couches magnétiques d'un empilement complexe, en choisissant la couche en contact avec la barrière tunnel. Cette possibilité fait en général défaut dans les techniques d'imagerie car elles donnent un signal moyenné sur l'épaisseur de l'échantillon. De plus, à l'aide de cette technique, nous ne sommes pas limités par l'intensité maximale du champ que l'on peut appliquer durant la mesure comme c'est le cas pour les mesures MFM.

En utilisant cette technique, nous avons étudié l'évolution des phases de domaines magnétiques dans un AAF sur un cycle d'aimantation complet, entre la saturation de l'aimantation en champ positif et en champ négatif.

Les analyses conventionnelles des cycles d'aimantation et de magnétorésistance géante, de type vanne de spin, ne nous permettent pas de discriminer directement l'évolution individuelle des phases magnétiques de chacune des couches de l'AAF (figure 5.13 (a) et (b)). Nous sommes alors amenés à faire des simulations afin d'extraire une information sur l'évolution de l'aimantation dans chacune des couches magnétiques de l'AAF. En effet, en utilisant les paramètres extraits des cycles expérimentaux (intensité du couplage, anisotropie, épaisseurs) et en minimisant la fonctionnelle d'énergie totale d'un AAF dans un modèle monodomaine

$$E = K_1 t_1 \sin^2 \theta_1 + K_2 t_2 \sin^2 \theta_2 - J_{AF} \cos(\theta_1 - \theta_2) - J_{BQ} \cos^2(\theta_1 - \theta_2) - H[M_1 t_1 \cos \theta_1 + M_2 t_2 \cos \theta_2]$$

nous pouvons simuler les cycles M-H et GMR-H et calculer l'évolution des angles des aimantations dans chaque couche de l'AAF. Néanmoins, l'information extraite à partir de cette simulation est incomplète car les aspects concernant l'évolution de la structure en domaines ne sont pas pris en compte dans le modèle théorique.

A l'inverse, le transport tunnel polarisé en spin dans les JTMs nous offre des informations directes concernant l'évolution des phases magnétiques dans les différentes couches magnétiques d'un AAF. Dans la figure 5.14, nous présentons le cycle d'aimantation complet corrélé aux cycles de magnétorésistance tunnel complets mesurés sur des JTMs avec soit la couche épaisse (AAF-N), soit la couche fine (AAF-R) de l'AAF en contact avec la barrière tunnel. Les schémas associés à ces mesures et simulations donnent la configuration des aimantations dans la couche tampon et dans l'AAF pour les champs représentés sur les cycles d'aimantations (a) et (c). Les flèches sont associées, du bas vers en haut, au Fe de la couche tampon, à l'aimantation de la couche fine de l'AAF et à celle de la couche épaisse de l'AAF.

Analyse des cycles TMR de la saturation positive au champ de plateau

Dans le système AAF, en réduisant le champ magnétique de la saturation positive vers le plateau AF, l'aimantation dans la couche de moment magnétique le plus faible se retourne pour stabiliser une configuration antiparallèle des aimantations de l'AAF sous l'influence du couplage AF. Au fur et à mesure que le champ positif est réduit, de plus en plus de domaines sont formés dans la couche fine et des parois de Néel sont créées à leurs jonctions. La présence de cette structure en domaines est reflétée dans le cycle TMR-H de la figure 5.14 (b) pour des champs appliqués entre 4 et 2 kOe, ce qui correspond à l'hystérésis magnétique observée près de la saturation. Dans la courbure de la branche aller du cycle TMR-H entre 4 et 2 kOe, on observe que les parois de type Néel à 360° créées dans la couche fine de l'AAF déterminent des canaux de conduction de résistance faible. En effet, leur centre est orienté selon la direction initiale du champ, parallèle à la DL avant son renversement.

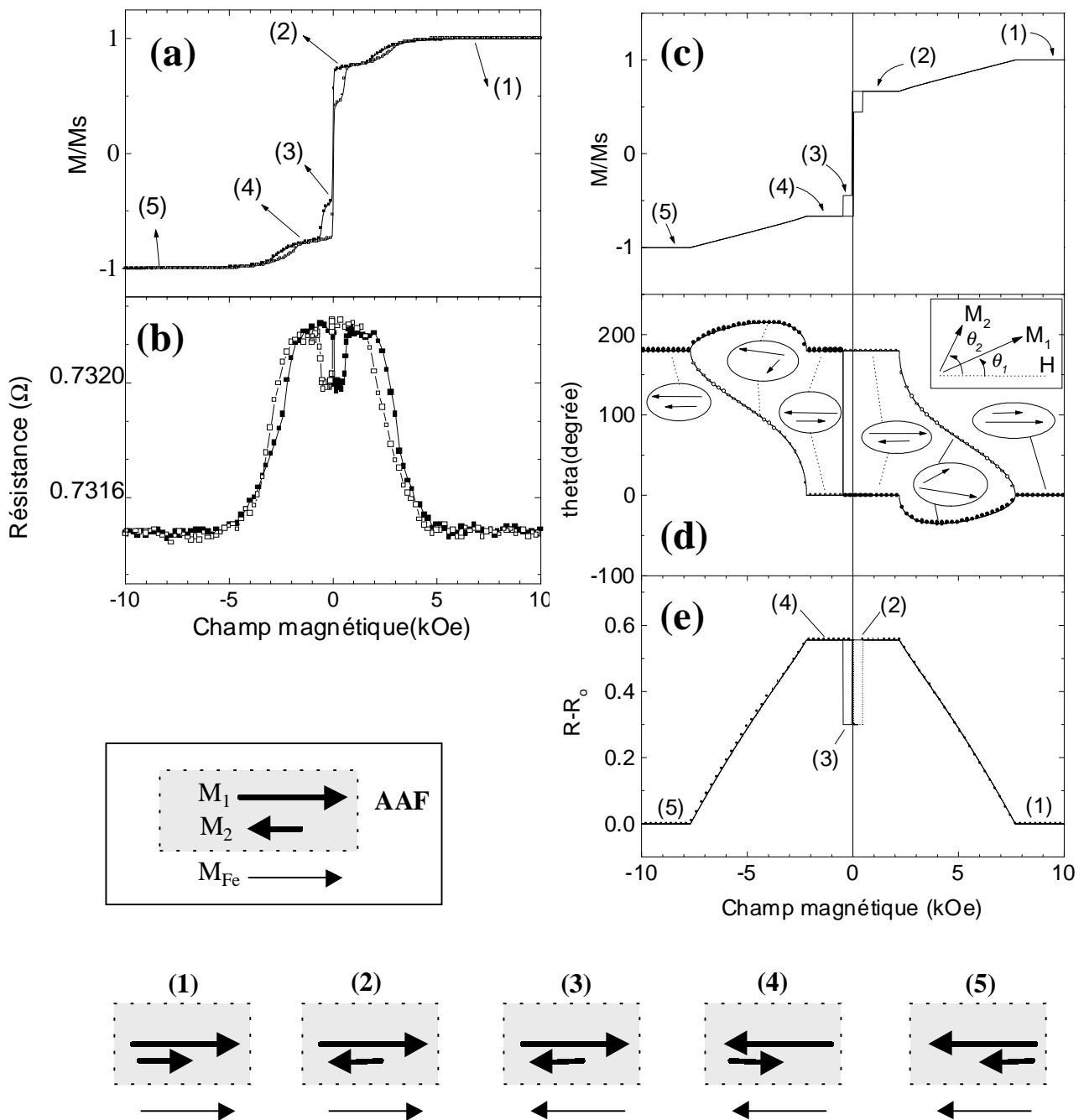


Figure 5.13. (a) Cycle d'aimantation complet pour l'AAF Co/Ru/Co empilé sur une couche tampon optimisée de Cr/Fe/Cu ; (b) Cycle de magnétorésistance géante complet mesuré avec le courant appliqué dans le plan des couches sur une multicouche composée d'un AAF comme couche magnétique dure et de la couche de Fe de la couche tampon comme couche douce ; (c) Simulation du cycle d'aimantation complet d'un système AAF en minimisant son énergie totale définie dans un modèle monodomaine ; (d) Calcul de la variation de l'angle entre l'aimantation de chacune des couches magnétiques de l'AAF et le champ magnétique appliqué. La flèche longue, respectivement courte, indique la direction de l'aimantation de la couche épaisse, respectivement fine ; (e) simulation du cycle GMR pour une vanne de spin constituée par le système AAF et la couche de Fe de la couche tampon. Calcul réalisé à partir du cycle d'aimantation (c). Les schémas associés à ces mesures et simulations donnent la configuration des aimantations dans la couche tampon et l'AAF pour les champs représentés sur les cycles d'aimantations (a) et (c). Les flèches sont associées, du bas vers en haut, au Fe de la couche tampon, à l'aimantation de la couche fine de l'AAF et à celle de la couche épaisse de l'AAF.

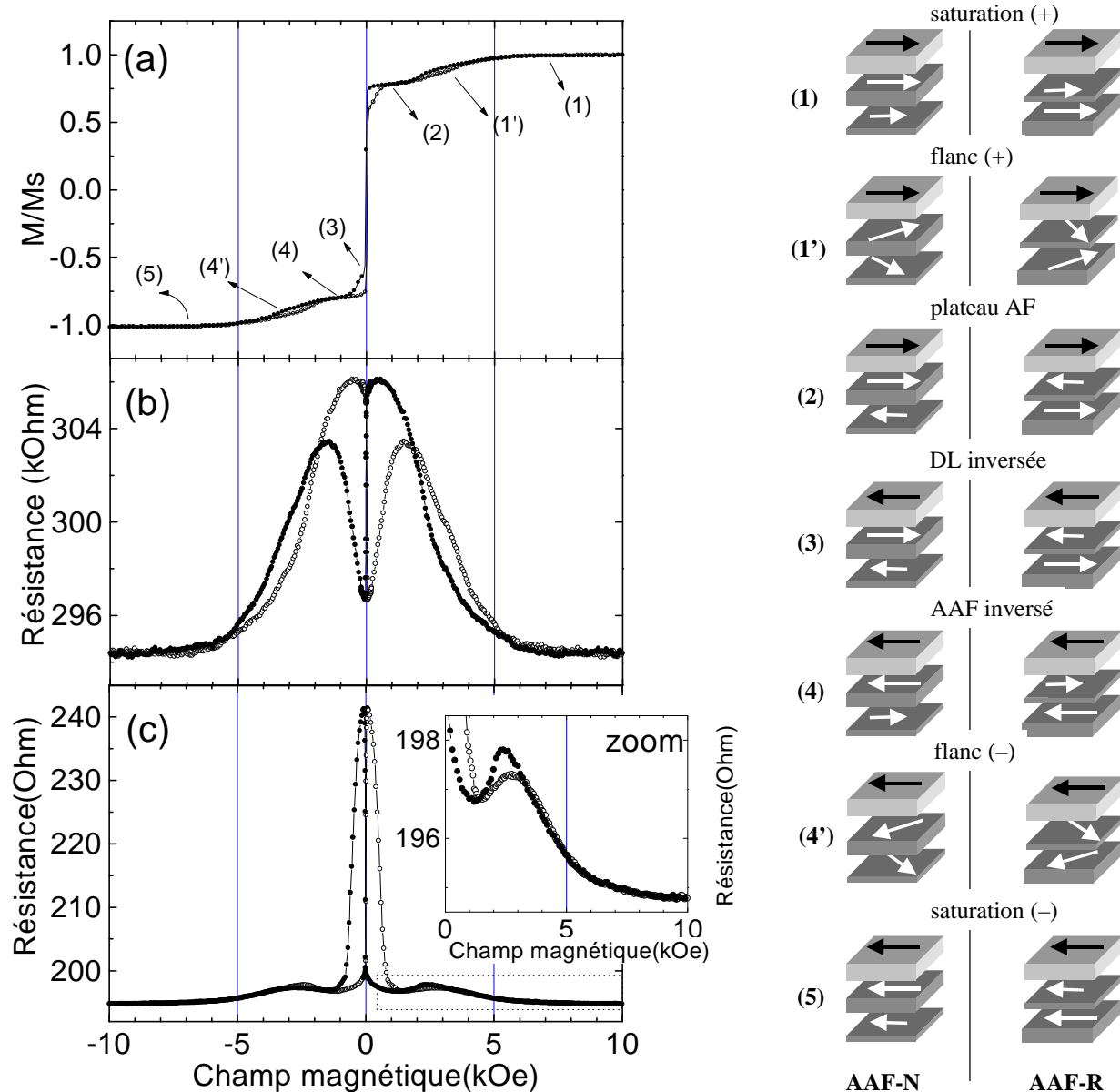


Figure 5.14. (a) Cycle d'aimantation complet mesuré sur une jonction utilisant un AAF Co(1.8nm)/Ru(0.8nm)/Co(3nm); Cycles de magnéto-résistance tunnel mesurés sur des jonctions tunnel utilisant le même AAF Co/Ru/Co, dans le cas (b) la couche fine de l'AAF est en contact avec la barrière, dans le cas (c) la couche épaisse de l'AAF est en contact avec la barrière tunnel. Le zoom associé à la figure (c) permet de mieux mettre en évidence les caractéristiques magnétiques de la couche épaisse de l'AAF reflétées dans la résistance de la JTM. Les schémas représentent les orientations relatives des aimantations dans le cas où la couche épaisse de l'AAF (colonne de gauche) et dans le cas où la couche fine de l'AAF (colonne de droite) est en contact avec la barrière tunnel. Dans les schémas, la flèche du haut représente l'orientation de l'aimantation de la couche de détection.

Ainsi, la résistance de la JTM sur la branche aller est plus faible que la résistance mesurée sur la branche retour du cycle lorsque les parois sont créées pendant le renversement de l'aimantation nette de l'AAF, avec m_1 et m_2 antiparallèles (voir le paragraphe précédent).

A bas champ, vers le plateau AF, lorsque l'énergie de couplage AF devient plus importante que l'énergie Zeeman du système, les parois créées et existantes dans la couche fine peuvent être dupliquées dans la couche épaisse [TiusanPRBs1]. Cet effet est mis en évidence dans le zoom de la figure 5.14 (c) par la présence d'un hystérésis dans le cycle TMR-H d'une jonction tunnel qui utilise un AAF avec la couche épaisse en contact avec la barrière. L'aimantation du centre des parois à 360° localisées dans la couche épaisse a alors une orientation antiparallèle à celle de la couche de détection. Ces parois constituent alors des canaux de conduction tunnel de résistance élevée, visualisés dans la figure 5.14 (c) par des états de plus haute résistance. Tant que les angles des aimantations de domaines adjacents restent petits, la configuration magnétique avec une haute densité de parois reste énergétiquement favorable. Cependant, en réduisant le champ magnétique appliqué, l'énergie stockée dans les parois qui est une fonction croissante de l'angle entre les domaines, augmente. L'existence des parois devient alors défavorable. Elles vont s'annihiler progressivement dans les deux couches de l'AAF. Dans le plateau AF, nous retrouvons une configuration dans laquelle les deux couches magnétiques de l'AAF sont dans une configuration antiparallèle.

L'analyse de la figure 5.14 (c) montre qu'après l'annihilation des parois dans la couche fine et dans la couche épaisse de l'AAF, la JTM ne retrouve plus la résistance qu'elle possède à la saturation positive. L'alignement parfait des aimantations de l'AAF et de la DL, réalisé à saturation, n'est plus jamais observé tout au long du cycle. En réduisant le champ appliqué vers zéro, de larges régions uniformément aimantées apparaissent dont les moments magnétiques résultants font un angle bissecté par la direction initiale du champ. Dans chacune de ces régions dont la largeur est déterminée par la longueur de cohérence magnétique des moments magnétiques, l'aimantation des grains individuels forme une configuration de type ride magnétique constituée de petites fluctuations angulaires autour de la direction du moment résultant de la région.

En conclusion, les résultats présentés dans les cycles TMR-H de la figure 5.14 montrent que, dans le plateau AF, l'AAF n'est pas un système magnétique complètement homogène. Une conséquence directe de cette inhomogénéité est que ni l'état parallèle, ni l'état antiparallèle

des aimantations de la JTM ne sont parfaitement définis. Ainsi, le prix à payer pour tous les avantages offerts par l'utilisation d'un système AAF dans les JTMs est une perte d'amplitude de la TMR.

Cet effet est encore plus visible lorsque le cycle complet de TMR est mesuré avec la couche fine de l'AAF en contact avec la barrière. Dans ce cas, l'état de résistance élevée antiparallèle de la DL et de la couche fine de l'AAF n'est jamais atteint. En effet, nous ne retrouvons jamais une configuration d'aimantation monodomaine antiparallèle parfaite sous champ appliqué. Des parois résiduelles, créées lors du renversement de la couche fine dans la gamme de champs compris entre 4 et 2 kOe, peuvent rester piégé sur des défauts structuraux ou magnétiques. Les fluctuations angulaires de l'aimantation dans les domaines déterminent alors un état magnétique loin de l'état antiparallèle avec la DL. Ces inhomogénéités expliquent la faible amplitude de la TMR mesurée dans les JTMs ayant la couche fine de l'AAF en contact avec la barrière. En effet, elles ne présentent que 6 à 10% de TMR alors que des JTMs possédant la même épaisseur de barrière tunnel et un AAF avec la couche épaisse en contact avec la barrière présentent des TMR de l'ordre de 30%.

5.4. Conclusion

Dans une jonction tunnel magnétique, le transport polarisé en spin dépend fortement de la distribution d'aimantation dans les couches magnétiques qui sont en contact avec la barrière tunnel. En effet, la résistance électrique de la jonction dépend de l'orientation relative *locale* des aimantations des deux couches magnétiques adjacentes à la barrière tunnel.

Le renversement de l'aimantation du système antiferromagnétique artificiel qui constitue la couche magnétique dure de la JTM est directement reflété dans l'amplitude et la forme du signal magnétorésistif de la JTM. Les fluctuations locales dans l'ordre magnétique des électrodes se traduisent par des canaux de conduction de résistance tunnel variable, déterminée par l'orientation locale relative de l'aimantation dans les deux couches magnétiques séparées par la barrière tunnel. Dans un état multidomaine, la JTM peut être modélisée par un réseau de résistances électriques connectées en parallèle dont la valeur change avec l'évolution de la structure micromagnétique des électrodes.

Les résultats extraits de l'analyse des cycles TMR-H peuvent être parfaitement corrélés avec les mesures de microscopie à force magnétique afin de peindre un tableau complet de l'évolution des phases magnétiques d'un AAF sous champ magnétique. En effet, un des plus importants résultats de notre étude est le fait que la jonction tunnel magnétique représente une sonde de grande sensibilité pour mesurer de faibles fluctuations de l'ordre magnétique associé aux domaines, parois et fluctuations d'aimantation dans les électrodes magnétiques.

5.5. Propriétés de transport à l'échelle nanoscopique par cartographie des courants tunnel

Les mesures de transport effectuées sur des jonctions tunnel de taille micronique, structurées par lithographie optique, nous offrent une information «globale» sur le transport tunnel intégrée sur toute la surface de la jonction. De plus, le transport tunnel dans une telle jonction est fortement influencé par le magnétisme de ses électrodes comme nous venons de le montrer dans le paragraphe 5.1.

Ainsi, la valeur de la résistance d'une jonction tunnel de taille donnée reflète à la fois :

- les propriétés effectives de la barrière tunnel (largeur, hauteur) intégrées sur toute la surface de la jonction.
- les fluctuations relatives de l'ordre magnétique dans les électrodes, intégrées sur la surface de la jonction. Ces dernières peuvent cependant être contrôlées lorsque les électrodes sont dans un état monodomaine pour des champs appliqués proches de la saturation magnétique.

Les propriétés de transport électronique locales «intrinsèques» de la barrière tunnel ne peuvent alors pas être résolues par les mesures de transport classiques, effectuées sur les jonctions structurées. Pour cela, nous avons développé une technique non-conventionnelle de microscopie en champ proche. Cette technique de mesure a été décrite dans le chapitre 2, paragraphe 2.3.2. Elle repose sur l'utilisation d'un microscope AFM modifié opérant en mode contact avec une pointe conductrice [Morita89], [Houze96], [daCostaJAP98]. Elle permet une mesure simultanée de la topographie réelle de la surface et du courant tunnel en fonction de la position de la pointe à la surface de l'échantillon.

Pour effectuer la mesure sur une barrière donnée, le dépôt de l'empilement multicouche est stoppé juste après le dépôt de la couche isolante. En opérant en mode contact, la pointe conductrice sonde la surface supérieure de l'oxyde et est utilisée comme électrode supérieure de la jonction tunnel. Une tension continue est appliquée entre l'électrode inférieure de la JTM et la pointe conductrice pour faire circuler un courant tunnel à travers la barrière (dessin de la figure 5.15). Dans la figure 5.15, nous présentons également une image de microscopie électronique en transmission d'une section transverse de l'empilement de la JTM. Sur cette image, nous avons positionné, à l'échelle, la forme de la pointe conductrice utilisée pour cartographier la barrière d'oxyde. L'adjonction du dessin de la forme de la pointe nous permet de voir que la mesure est une mesure locale du courant tunnel même s'il est intégré sur

une surface de l'ordre de 5nm x 5nm. Cette surface minimale de contact provient de la forme de l'apex de la pointe.

Les techniques conventionnelles, utilisées pour étudier les surfaces et les interfaces dans les systèmes multicouches comme TEM, AFM et XPS nous offrent une information globale sur l'organisation atomique, la structure, la topographie des surfaces/interfaces et sur la composition chimique des couches. Néanmoins, ces techniques nous fournissent une information incomplète sur la qualité de la barrière tunnel à l'échelle atomique, car elles intègrent sur un certain volume et/ou surface de l'échantillon analysé.

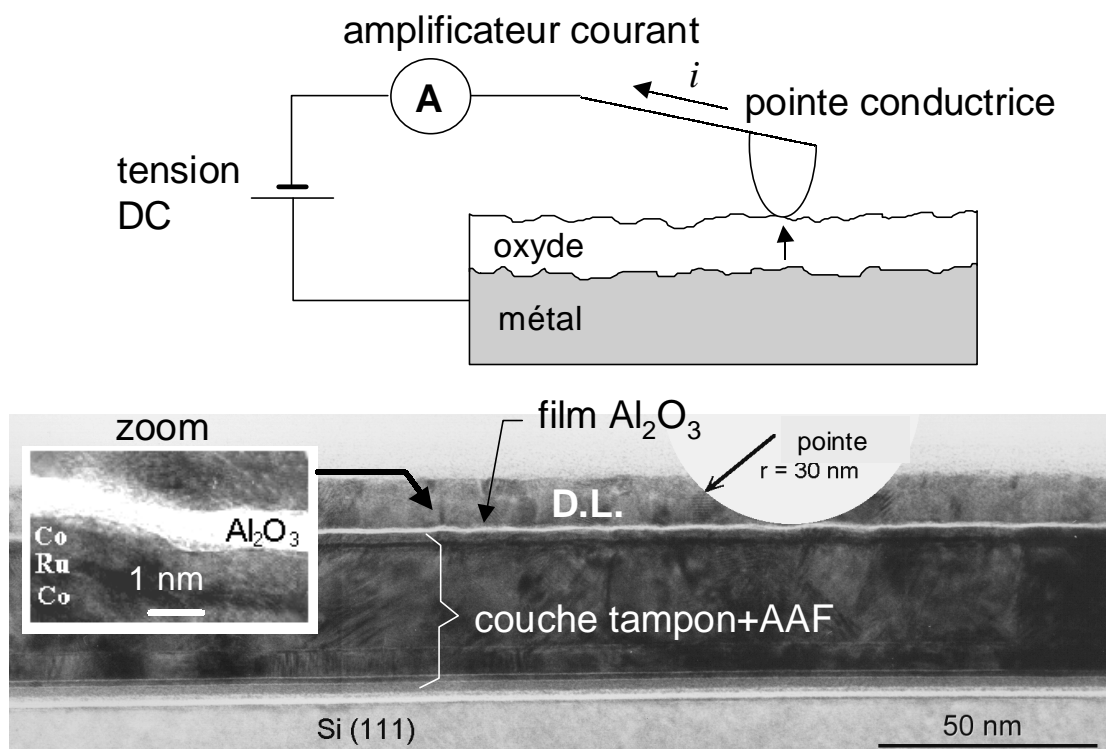


Figure 5.15. Image TEM d'une section transverse de l'empilement multicouches d'une JTM : Si(111)/Cr/Fe/Cu/Co/Ru/Co/Al₂O₃/Co/Fe/Cu/Cr. La taille de l'image est de 257nm par 80nm (taille latérale comparable avec celle de la figure 5.16). Dans le zoom, nous présentons une image qui montre la corrélation entre les interfaces supérieure et inférieure métal/oxyde. Sur l'image nous avons schématisé à l'échelle, la pointe conductrice, afin de comparer la surface de contact avec la taille latérale de la surface cartographiée. Sur la partie supérieure de la figure nous avons représenté le schéma de principe du dispositif expérimental.

Toutefois, dans les JTMs, nous avons un paramètre pertinent qui caractérise la qualité de la barrière isolante : le courant tunnel. En effet, le courant tunnel varie de manière exponentielle avec l'épaisseur et la hauteur de la barrière tunnel. Ainsi, l'analyse de la distribution spatiale du courant tunnel à travers la barrière isolante (la cartographie tunnel), nous fournit directement l'information sur la qualité locale de la barrière.

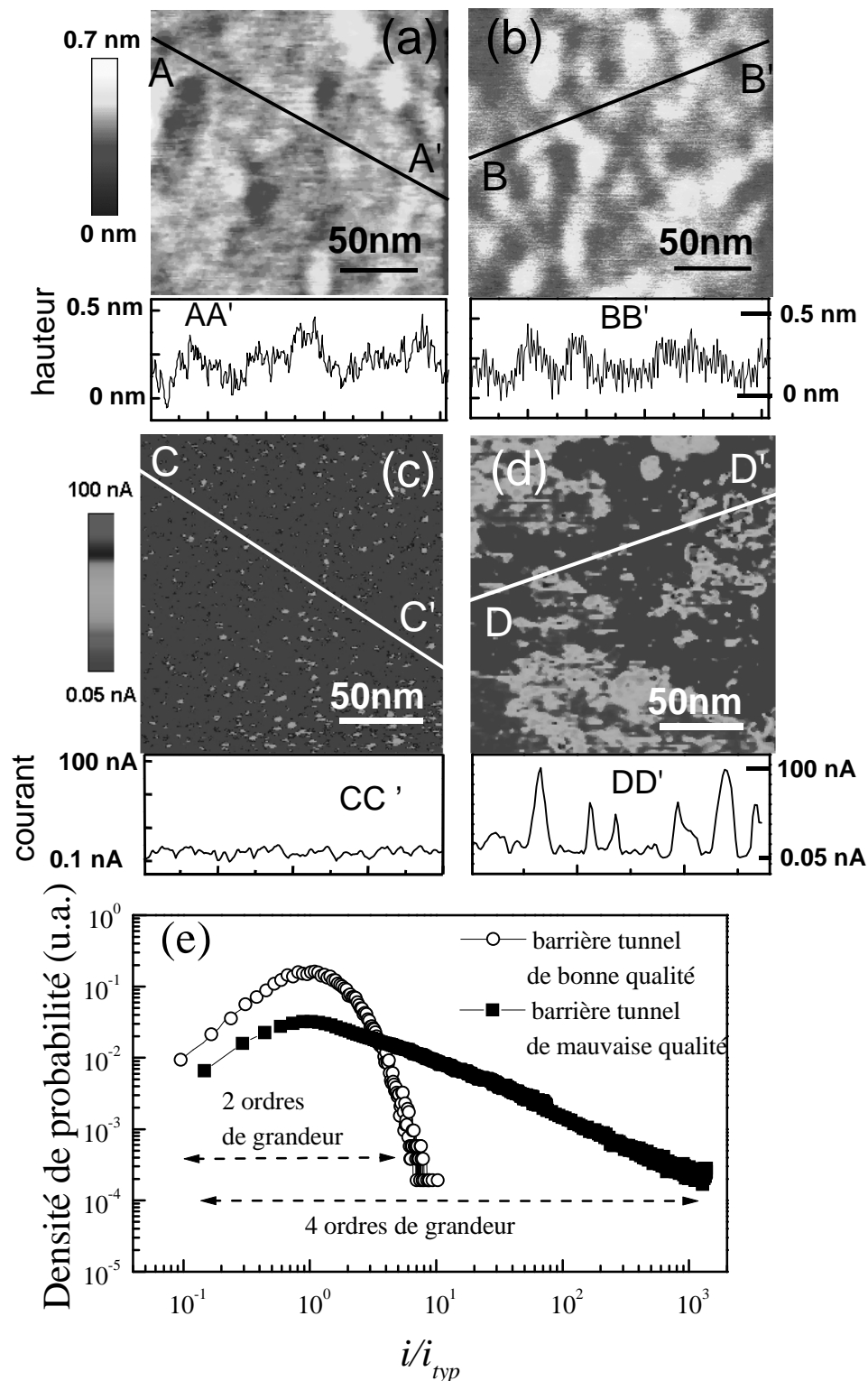


Figure 5.16. Images (a) (b) de la topographie AFM et (c) (d) des cartes de courants tunnel, mesurées sur des surfaces d' Al_2O_3 de $200 \times 200 \text{ nm}^2$. Les images (a) (c) respectivement (b) (d) sont mesurées sur deux barrières isolantes de qualité différente. Nous avons également reporté les profils des hauteurs et courants mesurés le long des lignes représentées dans les images (sections linéaires); (e) distributions de courant tunnel dans la barrière de bonne et de mauvaise qualité.

La technique d'analyse de la qualité d'une barrière d'oxyde par la cartographie de courants tunnel est une technique extrêmement sensible. Des échantillons, présentant des propriétés structurales identiques d'après toutes les techniques d'analyse conventionnelles, montrent des différences significatives lorsqu'ils sont analysés par cette technique [daCostaPRLs1].

Nous avons utilisé la technique de cartographie tunnel pour caractériser la qualité des couches d'oxyde utilisées comme barrières tunnel dans les JTMs. En effet, des mesures systématiques des cartes tunnel ont été effectuées lors des étapes d'optimisation des différents paramètres utilisés pour la fabrication des couches d'oxyde d'épaisseur et de nature chimique donnée.

Ces mesures nous ont permis d'analyser la continuité de la couche d'oxyde ainsi que la qualité locale de l'isolant :

- la présence ou l'absence de trous d'épingles (pinholes) qui sont des défauts électriques ou des sites de haute conductance tunnel.
- la corrélation des interfaces supérieure/inférieure des interfaces métal/oxyde.

En effet, en effectuant des cartes de courants tunnel, nous avons analysé la distribution des courants qui est liée aux fluctuations des paramètres locaux de la barrière.

A titre d'exemple, nous présentons dans la figure 5.16 des résultats de la mesure de cartographie tunnel sur deux échantillons distincts. Les figures 5.16 (a) et 5.16 (b) présentent les images topographiques de la surface supérieure des deux barrières d' Al_2O_3 sur les deux échantillons. Chaque échantillon contient une séquence multicouche type JTM :

$\text{Si}(111)/(\text{couche tampon})/\text{AAF}/\text{Al}_2\text{O}_3$. La différence entre ces deux échantillons réside dans la qualité de la barrière isolante, différences provenant des conditions d'élaboration de la couche d'oxyde.

Les images topographiques présentent des surfaces extrêmement plates pour chaque échantillon. Néanmoins, les cartes de courants tunnel sont très différentes.

Les figures 5.16(c) et 5.16(d) représentent les cartes de courants tunnel, enregistrées simultanément avec les images topographiques des figures 5.16.(a) et 5.16(b) respectivement.

Le fond bleu dans les figures identifie les régions où la valeur du courant mesuré se situe autour de 100pA, les régions vertes identifient les courants mesurés entre 1 et 10nA, tandis que les sites rouges représentent des pics de courant de 100nA . L'amplitude faible du courant mesuré dans le fond bleu est due à la petite surface de contact entre la pointe et la surface de l'oxyde. La surface de contact est estimée au maximum à 100\AA^2 .

La variation spatiale du courant tunnel du premier échantillon est faible, en comparaison avec la variation mesurée sur le second pour lequel la présence de sites de haute transmission tunnel peut être visualisée. Les courbes I-V mesurées sur ces sites présentent toujours un caractère non-linéaire de « type tunnel ». Il nous semble que ces sites de haute conductance ne constituent pas des « pinholes », c'est à dire des ponts métalliques traversant la barrière tunnel, car des mesures similaires réalisées sur des surfaces métalliques non oxydées présentent une variation linéaire du courant avec la tension.

La qualité de la barrière peut être quantifiée en faisant une analyse statistique de la carte de courants tunnel. Cette analyse consiste à reporter sur un graphe le nombre de sites qui permettent de faire circuler un courant donné dans la jonction (figure 5.16e) pour une surface et une tension données. Selon la loi suivie par la distribution statistique des courants tunnel, [BardouEPL97] et [daCostaEPJB00] ont montré qu'il était possible d'accéder à des caractéristiques intrinsèques de la barrière qui dépendent de sa qualité.

Une distribution large de courants tunnel, avec une longue queue, caractérise des variations spatiales significatives des propriétés de l'oxyde qui correspondent à des fluctuations d'épaisseur de l'ordre de l'angström. D'autre part, une distribution étroite indique des fluctuations inférieures au dixième d'angström des paramètres de barrière, et représente une signature de grande homogénéité des paramètres physiques de la barrière tunnel.

Dans la figure 5.16 (e), nous reportons la distribution statistique des courants dans les deux échantillons, analysés en parallèle.

Pour le premier échantillon, la distribution de courant décroît rapidement pour des courants élevés. Le courant réduit i/i_{typ} , où i_{typ} est la valeur du courant pour laquelle la distribution du courant est maximale, varie de 0.1 à 10 et ainsi les variations du courant tunnel s'étendent sur 2 ordres de grandeur seulement. Cela nous indique que la topographie de l'interface enterrée métal/oxyde est corrélée avec celle de l'interface métal/oxyde supérieure à l'échelle de l'angström.

Pour le second échantillon, les variations du courant tunnel s'étendent sur 4 ordres de grandeurs ($i/i_{typ}=0.1$ à 1000). La courbe de distribution de courant est large, avec une décroissance lente pour des intensités de courant élevées. Cela nous indique des fluctuations spatiales des paramètres de la barrière isolante et donc une qualité réduite par rapport à la barrière du premier échantillon.

Conclusion

La technique de cartographie de courants tunnel représente un outil unique, extrêmement sensible pour analyser les propriétés topologiques et structurales des oxydes en ce qui concerne le transport tunnel. En effectuant des mesures rapides de cartes électriques de courants tunnel sur des barrières continues, nous sommes capable de caractériser la qualité de la couche d'oxyde qui va être utilisée comme barrière tunnel dans une JTM bien avant la structuration par lithographie. En utilisant cette technique, nous pouvons mettre en évidence des *défauts électriques* qui ne peuvent pas être résolus par les autres techniques standard d'analyse des surfaces et des interfaces. Ainsi, cette méthode d'analyse sensible et rapide est un outil précieux dans les travaux d'optimisation de la qualité de la barrière tunnel.

5.6. Conclusion du chapitre 5

Dans ce chapitre, nous avons présenté les propriétés de transport polarisé en spin dans les jonctions tunnel magnétiques basées sur l'utilisation d'un système AAF pour former la couche rigide. Par rapport à l'analyse des cycles d'aimantation présentée au chapitre 4, une plus grande sensibilité du transport tunnel polarisé en spin au magnétisme des électrodes nous a permis de mettre en évidence les implications des inhomogénéités de l'aimantation sur les propriétés magnétiques et notamment sur l'apparition des hystérésis. Les propriétés de transport tunnel dans les JTMs reflètent directement le magnétisme des couches en contact avec la barrière permettant ainsi d'avoir accès à la distribution locale d'aimantation de chaque couche de l'AAF et de décrire sans ambiguïté l'évolution en champ des deux couches de l'AAF.

Dans une première partie, nous avons présenté les propriétés de transport à l'échelle macroscopique dans des jonctions tunnel basées sur le système AAF. Nous avons notamment présenté des courbes courant -tension $I(V)$ et l'évolution sous champ de la résistance tunnel. L'analyse de ces résultats montre comment, en ajustant les paramètres de la barrière tunnel ainsi qu'en optimisant le système AAF, nous avons pu fabriquer des JTMs qui présentent des propriétés magnétorésistives de haute performance (TMR $\sim 30\%$ à la température ambiante, résistance ajustable), compatibles avec les applications envisagées dans des capteurs, transistors ou mémoires magnétiques non-volatiles.

La seconde partie du chapitre 5 est consacrée à la corrélation entre le micromagnétisme et la magnéto-résistance tunnel. En effet, nous avons montré que la forme des cycles TMR-H reflète l'évolution sous champ de la structure en domaines dans les électrodes magnétiques d'une JTM. Afin d'analyser plus quantitativement l'effet de la structure en domaines sur le signal TMR, nous avons proposé un modèle électrique d'une JTM dans un état multi- domaine.

Le transport tunnel polarisé en spin dans la JTM a été utilisé pour étudier le micromagnétisme de ses électrodes. Dans une fenêtre en champ où la couche de détection est dans une configuration mono- domaine, l'analyse des cycles de magnéto-résistance reflète l'évolution sous champ des phases des domaines magnétiques dans le système magnétique dure (i.e. AAF). Dans l'empilement JTM, en mettant soit la couche épaisse soit la couche fine de l'AAF en contact avec la barrière tunnel, nous avons analysé de manière indépendante le magnétisme de chacune ces couches. Ainsi, nous avons pu discriminer l'évolution sous champ des phases magnétiques dans les deux couches de l'AAF (structure en domaines, parois et stabilité différentielle des parois de domaines). Toutes les autres méthodes ne nous permettent d'obtenir qu'une information intégrée dans le volume (analyse du contraste MFM, cycles d'aimantation M-H ou de magnéto-résistance géante GMR-H).

La troisième et dernière partie du chapitre 5 est consacrée aux propriétés de transport tunnel, à l'échelle nanoscopique, par cartographie des courants tunnel. Les mesures ont été effectuées à l'aide d'une technique non- conventionnelle de microscopie en champ proche qui utilise un microscope AFM opérant en mode contact doté d'une pointe conductrice. Elle permet de mesurer simultanément la topographie réelle de la surface et le courant tunnel en fonction de la position de la pointe à la surface de l'échantillon. Cette technique constitue un outil sensible pour analyser les propriétés topographiques et structurales des oxydes pour le transport tunnel. En effectuant des mesures rapides des cartes de courants sur des échantillons non-lithographiés, nous avons pu caractériser directement les propriétés de la couche d'oxyde afin d'optimiser sa qualité .

Références du chapitre 5

[BardouEPL97]

F. Bardou, *Europhys. Lett.* **39**, 239, (1997)

[DaCostaPRLs1]

V.da Costa, C. Tiusan, T. Dimopoulos, K.Ounadjela, soumis pour publication dans le *Phys. Rev. Lett.*, février, 2000

[daCostaJAP98]

V.da Costa, F. Bardou, C. Beal, Y. Henry, J.P. Bucher, K. Ounadjela, *J.Appl. Phys.* **83**, 6703, (1998)

[daCostaEPJB00]

V.da Costa, Y. Henry, F. Bardou, M. Romeo, K. Ounadjela, *Euro. Phys. J. B.* **13**, 297, (2000)

[BrinkJAP71]

W. F. Brinkman, R. C. Dynes, J. M. Rowel, *J. Appl. Phys.* **41**, 1915, (1971)

[TiusanPRBs1]

C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, soumise pour publication dans *Phys. Rev. B*

Chapitre 6

Perspectives

Ce travail de thèse s'insère dans la dynamique de recherche initiée il y a 5 ans par la mise en évidence de l'effet tunnel dépendant du spin à température ambiante dans des laboratoires de recherches universitaires [Moodera95], [Myazaki95]. Les implications industrielles de cette découverte sont apparues très rapidement par le potentiel des applications provenant de cette nouvelle technologie : mémoires magnétiques non volatiles peu consommatrice de courant, capteurs magnétiques plus sensibles.....

A partir d'un empilement multicouches de propriétés adaptées pour la réalisation de dispositifs industrialisables, nous avons contribué à clarifier la physique des jonctions tunnel magnétiques dont la couche magnétique dure est composée d'un système antiferromagnétique artificiel.

Notre objectif était double.

D'une part, il s'agissait d'affiner notre compréhension du magnétisme et du transport polarisé en spin dans les jonctions tunnel magnétiques utilisant un AAF comme couche dure.

D'autre part, nous avons envisagé des applications des jonctions tunnel magnétiques dans la micro- électronique, notamment pour la réalisation de nouveaux dispositifs électroniques comme le transistor de spin et les mémoires magnétiques non- volatiles.

Parmi les perspectives issues de ce travail de thèse, nous présentons brièvement deux directions principales de recherche en interaction directe l'une avec l'autre.

La première concerne le domaine des circuits électroniques intégrés ayant comme objectif la réalisation d'un dispositif microélectronique ou nanoélectronique de type transistor à jonctions tunnel. Elle concerne également le domaine des mémoires magnétiques non volatiles ou des capteurs intégrant un tel dispositif.

La nécessité de miniaturiser de tels dispositifs électroniques ainsi que l'augmentation de leur densité d'intégration nous conduit à la seconde perspective. Elle concerne l'étude des propriétés micromagnétiques statiques et dynamiques d'objets magnétiques complexes constitués d'empilements de JTMs de taille micronique et nanométrique.

6.1. Transistor magnétique à jonctions tunnel - Mémoires magnétiques non-volatiles.

Limitée dans un premier temps par les techniques de la micro-électronique, la réduction de la taille latérale des composants électroniques devrait se heurter dans les années à venir à une limite beaucoup plus fondamentale, incontournable, au-delà de laquelle le fonctionnement des composants traditionnels devient obsolète. Cette limite, fixée par la mécanique quantique, est atteinte lorsque le libre parcours moyen des électrons est égal ou supérieur aux longueurs caractéristiques du dispositif.

Afin de réaliser des dispositifs électroniques dont le fonctionnement n'est pas perturbé pour des tailles latérales sub-microniques, les recherches se sont orientées vers des composants hybrides pour lesquels des métaux ont été intégrés dans les zones actives du composant. D'une part, dans ces structures, les électrons ne se déplacent plus dans le plan de l'hétéro-structure mais perpendiculairement à ce plan et ainsi les effets quantiques ont pu être contournés. D'autre part, le libre parcours moyen des électrons dans les matériaux métalliques est environ dix fois plus petit que dans les semi-conducteurs. Les effets quantiques sont alors repoussés à des tailles de structure de l'ordre du nanomètre.

Le transistor à jonctions tunnel

Une nouvelle génération de transistors, issue de ces concepts, est basée sur l'utilisation d'un empilement de deux jonctions tunnel magnétiques, la première est utilisée comme jonction *base - émetteur* et la seconde comme jonction *base - collecteur* du transistor [Brev99]. Ainsi, le transistor est un dispositif électronique à trois bornes de connexion électrique, formé d'un empilement de deux jonctions tunnel magnéto-résistives. L'empilement présente une électrode médiane commune aux deux jonctions (Figure 6.1 (a), (b), (c)), électrode qui constitue la *base* du transistor (B).

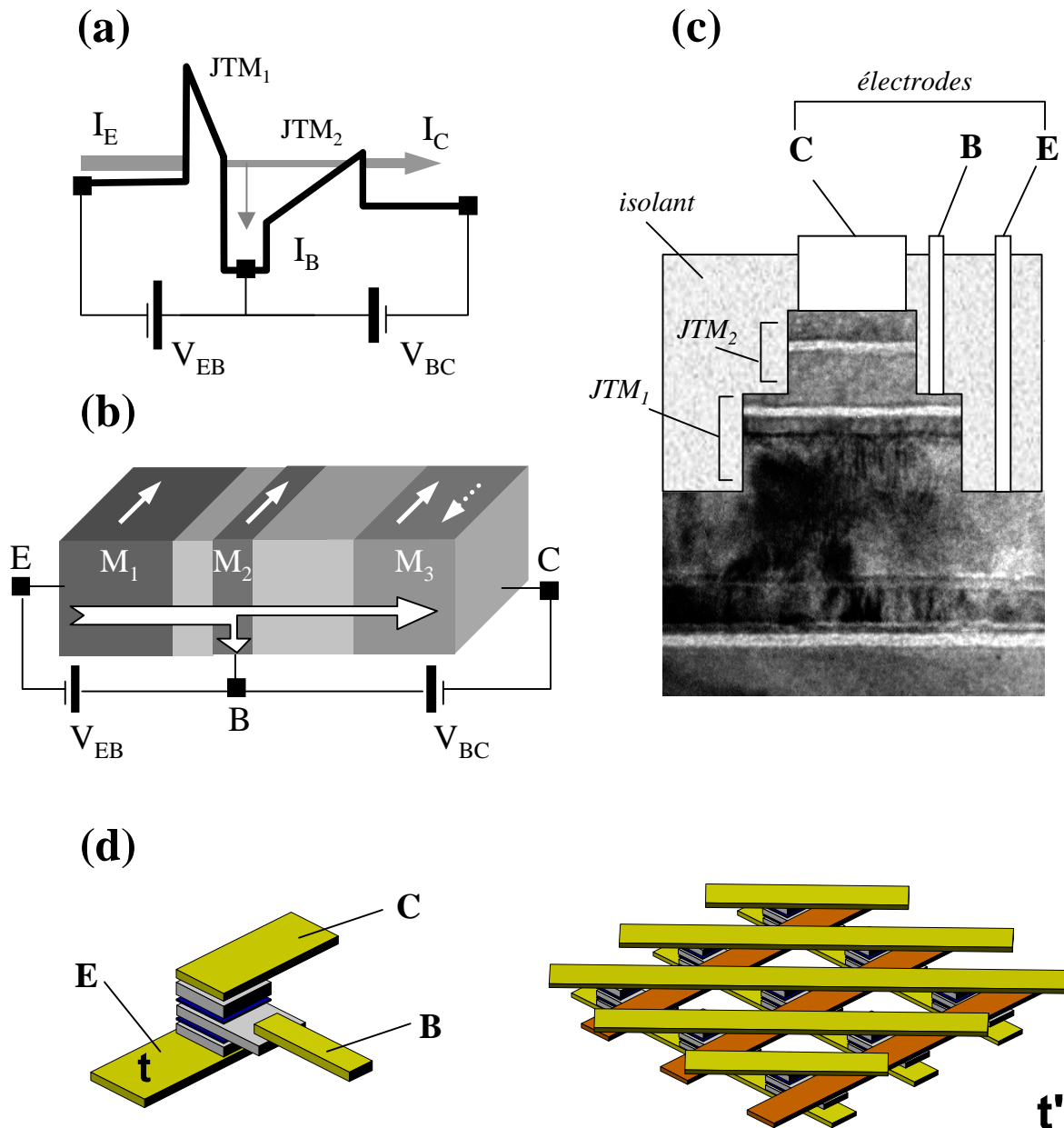


Figure 6.1. Transistor magnétique à jonctions tunnel. Le profil de potentiel (a) associé au schéma simplifié (b) illustre le mécanisme de fonctionnement du transistor; (c) Dessin schématique du transistor, après une structuration par lithographie. Le schéma est réalisé en utilisant une image MET de l'empilement à double jonctions tunnel. (c) Le transistor magnétique comme élément de mémoire (t) dans une matrice de mémoires (t') avec une polarisation sélective des électrodes.

Par rapport à un transistor classique dont le gain est contrôlé par l'intermédiaire des tensions de polarisation appliquées à ses électrodes, le gain d'un transistor magnétique à jonctions tunnel peut être contrôlé en plus par l'orientation relative des aimantations de chaque électrode en exploitant les propriétés magnéto-résistives des jonctions tunnel. Le fonctionnement du transistor repose ainsi sur le mécanisme de transport tunnel des jonctions

tunnel magnétiques. Un courant tunnel polarisé en spin, pompé d'une première diode tunnel JTM_1 (EB) par l'application d'une tension de polarisation à ses bornes (V_{EB}), est injecté dans la seconde diode JTM_2 (BC) séparée physiquement de la première par une fine couche ferromagnétique de l'électrode médiane (la base B). Les électrons se comportent alors comme des *électrons chauds* dont l'énergie est fonction de la tension de polarisation (V_{EB}) de la première et/ou de la seconde JTM (V_{BC}). La transmission des électrons polarisés en spin de la première diode à la seconde, c'est-à-dire le gain du transistor, est contrôlable non seulement par les tensions de polarisation mais aussi par l'orientation relative des aimantations de chaque électrode magnétique. Le transistor magnétique peut également fonctionner en régime de commutation (blocage du passage de l'information) par la polarisation sélective des trois électrodes du dispositif.

A l'heure actuelle, sur la base de l'expérience acquise pendant ce travail de thèse, nous sommes déjà capables d'élaborer des systèmes multicouches, constitués d'un empilement de deux JTMs, de bonne qualité magnétique et topologique. Dans la figure 6.1 (c), nous présentons une image TEM de l'empilement à double barrière tunnel qui va être utilisé pour réaliser le transistor à l'aide des différentes étapes de lithographie et de gravure. L'image montre la continuité et la bonne définition des deux barrières tunnel. Des mesures magnétiques effectuées sur la multicouche avant structuration montrent que les trois électrodes ont des rigidités magnétiques différentes qui vont nous permettre un contrôle indépendant de l'aimantation de chaque électrode. De plus, des mesures très récentes de transport tunnel sur le système structuré sous forme de JTM à double barrière, en utilisant les mêmes techniques de lithographie que pour les JTMs élaborées dans le cadre de ce travail de thèse, montrent des valeurs de magnétorésistance tunnel de l'ordre de 20-25% à la température ambiante.

Ces résultats prometteurs nous offrent une bonne base de travail dans la perspective de l'élaboration du transistor magnétique à jonctions tunnel. De plus, l'ensemble des masques nécessaire à la structuration de dispositifs à trois terminaux par lithographie et gravure a été dessiné et il est déjà disponible pour commencer la fabrication des transistors magnétiques.

Le transistor à jonctions tunnel comme élément de mémoire

Le transistor magnétique décrit ci-dessus est également une solution avantageuse pour la réalisation d'une cellule mémoire élémentaire insérée dans une matrice de mémoires

magnétiques (Figure 6.1. (d)). L'information est stockée dans la première JTM sous la forme de l'orientation relative des aimantations de ses électrodes magnétiques et la seconde JTM est polarisée afin de jouer le rôle de la "diode de blocage". Le fonctionnement de la mémoire est analogue à celui de la mémoire magnétique décrite dans le paragraphe 1.3.2., Figure 1.4 [Gallagher97]. Un avantage direct de cette nouvelle architecture provient de la possibilité de réduire la taille latérale de l'élément de mémoire au delà de la limite imposée pour le bon fonctionnement d'une diode Schottky standard utilisée comme diode de blocage.

L'écriture et la lecture de l'information va se faire de la même manière que celle décrite dans le paragraphe 1.3.2. Cependant, dans le réseau de mémoires utilisant le transistor, les réseaux de lignes de commande extérieures permettent d'appliquer une polarisation sélective à chaque jonction de la structure (t'). Ainsi, la transmission tunnel de chaque jonction peut être contrôlée indépendamment. La réduction de la taille latérale à des dimensions submicroniques de JTMs ou de tous systèmes basés sur l'utilisation de JTMs ouvre la voie vers un champ d'investigation initié depuis quelques années qui concerne les propriétés magnétiques statiques et dynamiques de petits objets magnétiques complexes.

6.2. Propriétés micromagnétiques statiques et dynamiques d'objets multicouches complexes de taille submicronique

L'étude fondamentale des propriétés magnétiques *statiques* et *dynamiques* de petits objets magnétiques doit être poursuivie en parallèle avec le développement de dispositifs micro-électroniques de spin comme les JTMs et les transistors magnétiques. Comme nous l'avons montré dans le cadre de cette thèse, les distributions d'aimantations et structures en domaines dans les électrodes de la jonction jouent un rôle primordial sur la réponse TMR. Or, lorsque la taille latérale d'un objet magnétique diminue, on s'attend à une redistribution des aimantations liée à l'apparition d'un champ démagnétisant planaire. Il est fort à parier, qu'à des dimensions submicroniques, les propriétés magnétiques initiales des multicouches non gravées soient fortement perturbées. De plus, la connaissance de la distribution de l'aimantation n'est qu'une première étape dans la mise au point des dispositifs micro-électroniques. En effet, lors du fonctionnement de ces systèmes, ce sont leurs propriétés *dynamiques* qui sont sollicitées dans tous les processus de lecture et d'écriture.

A titre d'exemple, nous représentons dans la figure 6.2 des résultats préliminaires obtenus sur une matrice de JTM's sub-microniques de taille latérale égale à 500nm (Figure 6.2 (a)). L'image de microscopie MFM de l'état magnétique rémanent (Figure 6.2 (b)) montre que chaque plot contient une structure en domaines complexe, loin d'être une configuration monodomaine. Ainsi, des études systématiques sont à développer sachant que les résultats peuvent être différents de ceux reportés à ce jour sur des structures submicroniques contenant qu'une seule couche magnétique [Hehn97], [Demand99], [Miramond], [Fruchard98]. En effet, comme nous l'avons montré, l'interaction inter-couche est un paramètre déterminant dans les propriétés magnétiques de ces empilement multicouches hybrides.

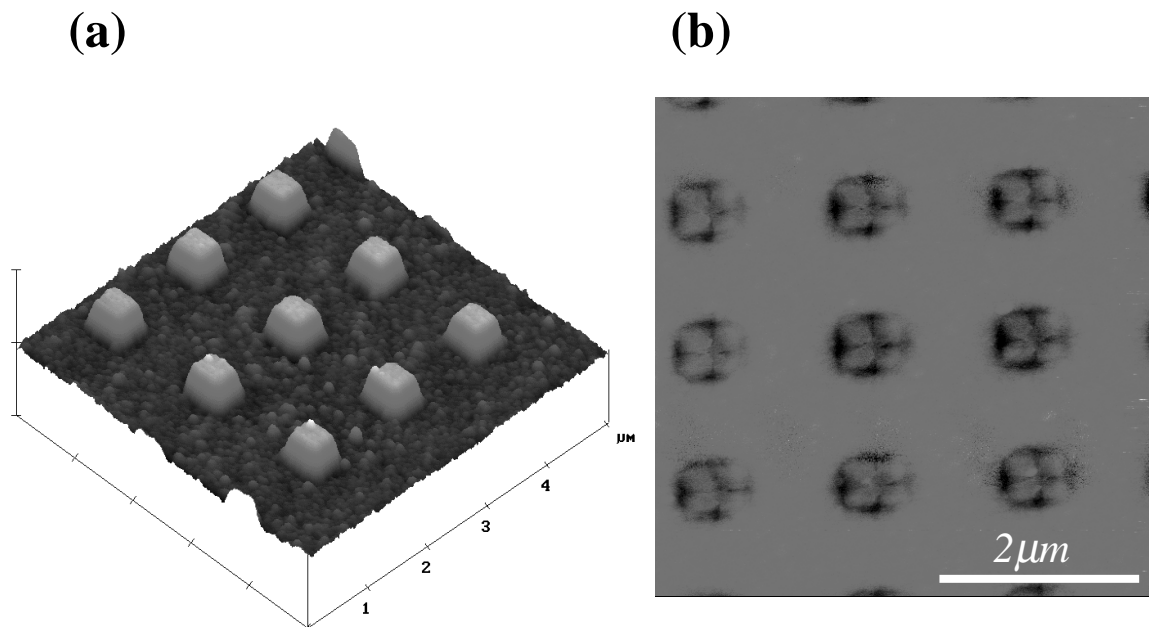


Figure 6.2. (a) Réseau 3x3 de jonctions tunnels. La taille latérale de chaque élément est égale à 500nm. (b) Image MFM de l'état magnétique rémanent de chaque petit objet magnétique.

De plus, une large palette d'études sont à entreprendre pour comprendre et ensuite contrôler le renversement de l'aimantation des électrodes de ces dispositifs sub-microniques.

- mesures de résonance ferromagnétique sur des réseaux de plots pour caractériser l'anisotropie et la dynamique du système (coefficient d'amortissement).
- mesures de transport polarisé en spin sous champ magnétique séquentiel pour étudier les caractéristiques du renversement séquentiel des petits éléments magnétiques.

- Une importance particulière sera portée à l'étude de la dynamique de renversement de l'aimantation des jonctions tunnel sub- microniques. Cet aspect est directement relié au fonctionnement des éléments de mémoires dans les régimes d'écriture et de la lecture de l'information.
- études des interactions magnétostatiques entre les différentes couches magnétiques constituantes des objets magnétiques sub-microniques.

Les résultats et perspectives issus de ce travail de thèse ouvrent une voie large pour la réalisation de nouveaux dispositifs électroniques. Cependant, avant toute application industrielle, l'analyse théorique et expérimentale des propriétés magnétiques, micromagnétiques et de transport polarisé en spin d'ensembles de jonctions tunnel de taille latérale micronique et sub- micronique est à entreprendre.

Références du chapitre 6

[Brev99]

Demande de brevet français n° 99 04227, datée du 31 mars 1999, au nom de l'Université Louis Pasteur et de l'Université Henri Poincaré, par M. Hehn et K. Ounadjela.

Dispositif microélectronique à jonctions tunnel et réseau de mémoires et capteur comprenant de tels dispositifs

[Demand99]

Marc Demand, thèse de Doctorat de l'Université Louis Pasteur – Strasbourg (1999)

[Fruchart98]

Olivier Fruchart, thèse de Doctorat de l'Université Joseph Fourier - Grenoble (1998)

[Gallagher 97]

W.J. Gallagher, J.H. Kaufman, S.S.P Parkin, R.E. Scheuerlin, *Magnetic Memory Array using Magnetic Tunnel Junction Devices in Memory Cells*, United States Patent N. 5 640 343 (1997)

[Hehn97]

Michel Hehn, thèse de Doctorat de l'Université Louis Pasteur – Strasbourg (1997)

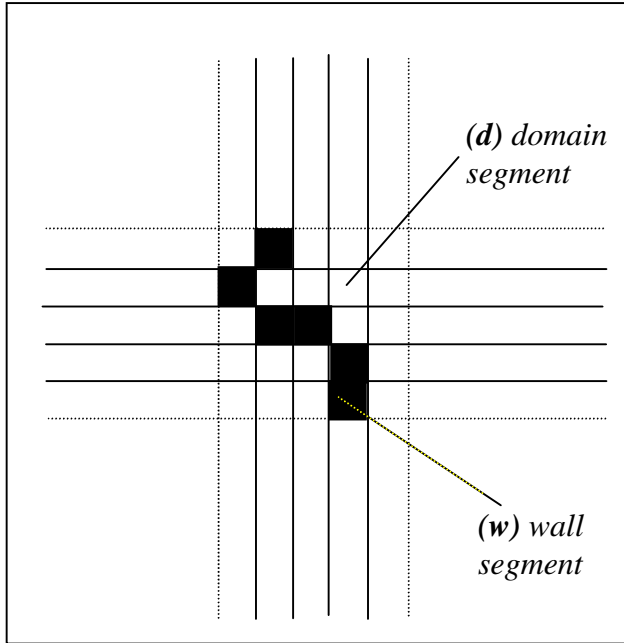
[Miramond9x]

Corinne Miramond, thèse de Doctorat de CEA Saclay (1997)

Appendix C.

Analysis of domain wall influence on the tunnel magnetoresistance signal

a) Model for the MTJ in a multi domain state



w - elementary wall segment of surface s_o
d - elementary domain segment of surface s_o
S - total surface of the junction

n_w - number of elementary wall segments in the total surface S
 n_d - number of elementary domain segments in the total surface S

$\Rightarrow S_w$ - surface occupied by the walls
 $\Rightarrow S_d$ - surface occupied by domains

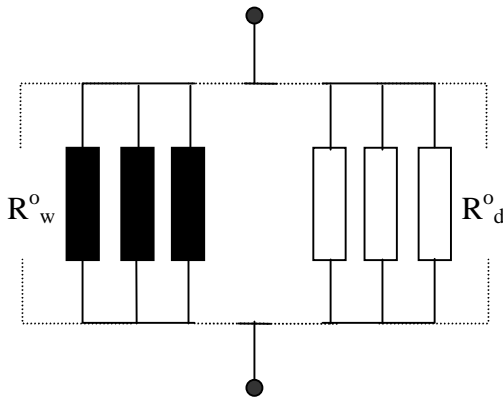
$$S_w + S_d = S$$

$n_w = S_w/s_o$ - the total number of elementary wall segments

$n_d = S_d/s_o$ - the total number of elementary domain segments

Figure C1. The MTJ in a multidomain state. The total surface (S) of the junction is divided by a grid in elementary wall (w) and domain (d) segments.

The total resistance of the junction is the resistance of the in-cascade network of resistances, associated with domains, respectively domain walls elementary segments:



$$\begin{aligned} \frac{1}{R} &= \sum_i \frac{1}{R_w^0} + \sum_j \frac{1}{R_d^0} = \frac{n_w}{R_w^0} + \frac{n_d}{R_d^0} = \\ &= \frac{1}{s_o} \left[\frac{S_w}{R_w^0} + \frac{S - S_w}{R_d^0} \right] \end{aligned} \quad (C1)$$

Figure C2. Electric model for the MTJ in a multi domain state.

During the reversal of the magnetization of the hard subsystem of the tunnel junction 360° domain walls are created. The center of the wall is determined by regions which remained blocked along the initial positive direction of the applied magnetic field. The magnetization of adjacent domains is reversed, making an angle θ with the field direction.

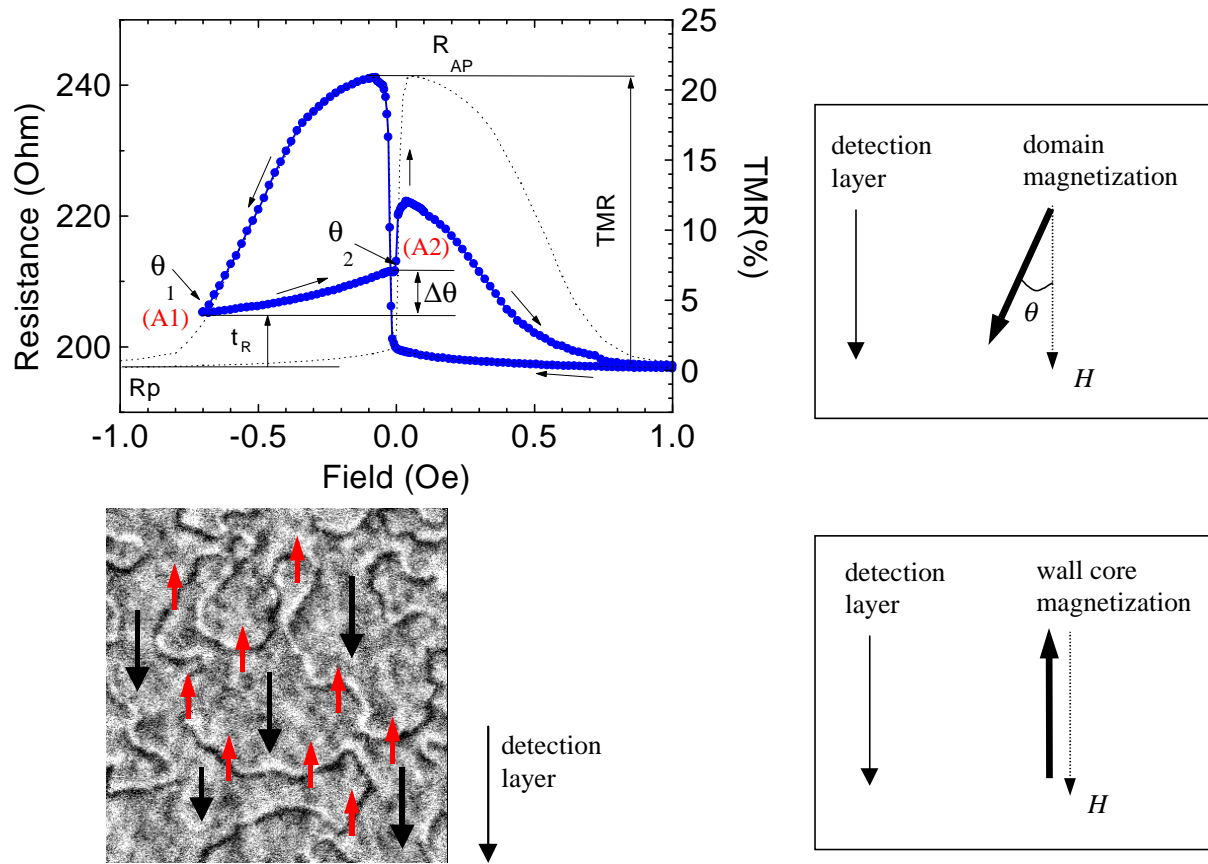


Figure C3. a) Minor TMR curve. The magnetization reversal of the AAF is stopped in a point A1, at about $H = -600$ Oe, where domain structure still subsist, as shown by the MFM image (b), then the negative field is reduced towards zero (state A2) then reversed. c), d) sketch showing the orientation of magnetization in domains and domain wall core, respectively, with respect to the external field (detection layer)

Stopping the reversal in a point (A1) as shown in the figure C3, the residual domain structure subsisting in the hard subsystem will be reflected by a resistive state of the MTJ, higher than the one corresponding to the parallel configuration. The resistance of this state is quantified by a *residual magnetoresistive* signal denoted by t_R . Indeed, the core of the 360° walls being oriented opposite to the detection layer give rise to high resistive tunneling channels, compared with tunneling channels associated to adjacent domains which give rise to low resistive tunneling channels.

If we denote with:

R_P and R_{AP} : the total resistance of the MTJ in perfectly parallel /antiparallel configurations (domain magnetization fully saturated along /opposite to the field direction and no domain wall)

we can write the following equations:

- the resistance of the elementary domain:

$$R_d^0 = \frac{1}{2} \frac{S}{s_0} [R_P + R_{AP} + (R_P - R_{AP}) \cos \theta] \quad (\text{C2})$$

- the resistance of the elementary wall:

$$R_w^0 = \frac{S}{s_0} R_{AP} \quad (\text{C3})$$

Obs. Concerning the resistance of the 360° wall, we treated the wall as a small domain of inverse magnetization (core of the wall). Tail related effects (when taking into account a real analytical wall profile) can be included in our model in the angle θ of the wall adjacent domain magnetization.

The resistance in the state (**A1**), figure C3, where a residual t_R can be measured from the TMR curve is:

$$R = R_P(1 + t_R) \quad (\text{C4})$$

From the equations (C1) - (C4) we can write:

$$\frac{1}{R_P(1 + t_R)} = \frac{1}{s_0} \left[\frac{s_0 S_w}{S R_{AP}} + \frac{2 s_0 (S - S_w)}{S (R_P + R_{AP}) + (R_P - R_{AP}) \cos \theta} \right] \quad (\text{C5})$$

Using the relationship between the R_P and R_{AP} , given by the definition of the tunnel magnetoresistance of the junction (TMR):

$$TMR = \frac{(R_{AP} - R_P)}{R_P} \quad (\text{C6})$$

we can deduce the surface of the walls with respect to the total surface of the junction:

$$\frac{S_w}{S} = \frac{t_R - \frac{TMR (1 - \cos \theta)}{2}}{TMR \frac{1 + \cos \theta}{2}} \frac{1 + TMR}{1 + t_R} \quad (\text{C7})$$

needed to have a residual magnetoresistive effect t_R .

b) Quantifying the variation of angle in domains when reducing the field

(magnetization relaxation due to random anisotropy effects).

We start from the point **(A1)**, where a given domain structure subsist ($S_w/S = \omega$) and is reflected by the residual magnetoresistance t_R . By reducing the field towards zero (state **A2**, figure C3), the resistance of the junction increases. Having in view that the domain wall structure remains unchanged between the states **(A1)** and **(A2)**, the variation of the resistance is related with the relaxation of the magnetization in the domains, due to local anisotropies effects, when reducing the external field. Again, the variation of the wall profile with the field (tails effects) can be included in the variation of angle θ of wall adjacent domain magnetization.

When knowing t_R and $S_w/S = \omega$, from the equation (C7) one may calculate the angle of the domain magnetization:

$$\cos \theta = \frac{t_R - \frac{TMR}{2} \left(\omega \frac{1+t_R}{1+TMR} + 1 \right)}{\frac{TMR}{2} \left[\omega \frac{1+t_R}{1+TMR} - 1 \right]} \quad (C8)$$

Note that the angle θ can be considered as an average angle of magnetization fluctuations inside the domains.

The equation (C8) can be applied for the states **(A1)** and **(A2)**, figure C3, by estimating:

$S_w/S = \omega$ from the MFM image analysis, corresponding to state **(A1)**

t_R^1, t_R^2 from the TMR curve

Therefore we can calculate the relaxation angle:

$$\Delta \theta = \theta_1 - \theta_2 \quad (C9)$$

c) Quantitative analysis

After a threshold treatment of the MFM images, from the histogram analysis the black ratio will reflect the surface of the walls with respect to the total surface of the junction. This value can be compared with the one calculated from the TMR curve (from which we get the t_R , TMR), by using the equation C7. The analysis is performed by fixing the angle θ .

For high magnetic fields, when the magnetization of domains is saturated along the field direction the angle $\theta = 0$.

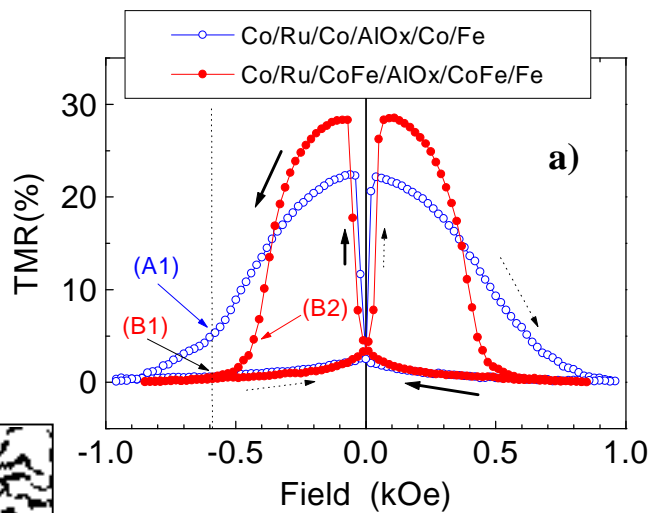
Magnetic tunnel junction using the Co/Ru/Co AAF.

The residual density of walls at $H = -600$ Oe is estimated from the corresponding MFM image. We find $\omega \sim 20\%$.

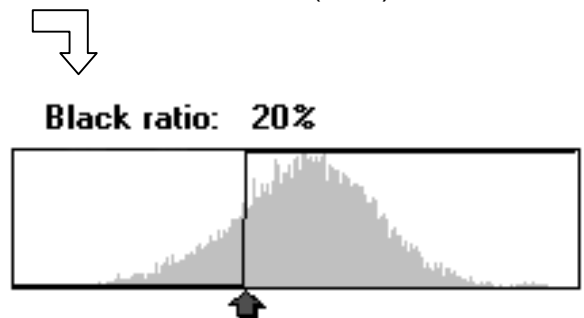
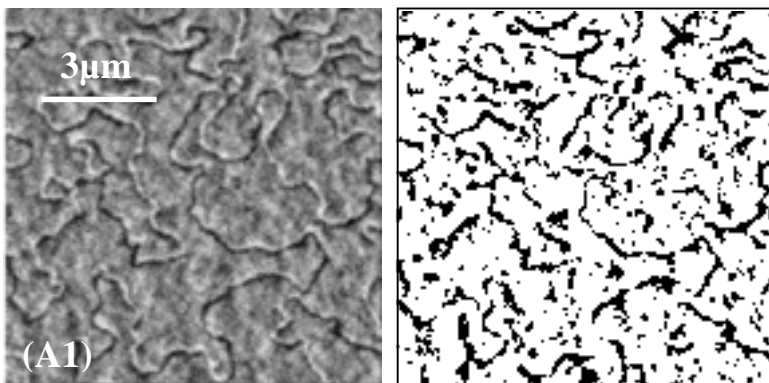
Figure C4. Comparative analysis for the domain wall stability in Co/Ru/Co and Co/Ru/CoFe based MTJs, respectively. **a)** TMR curves, analyzed at significant field values, defined by the states A1 and B1, B2, respectively.

The analysis is performed by using corresponding MFM images illustrated in **b)-d)**.

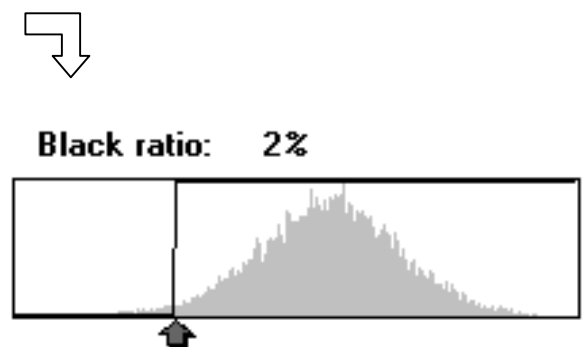
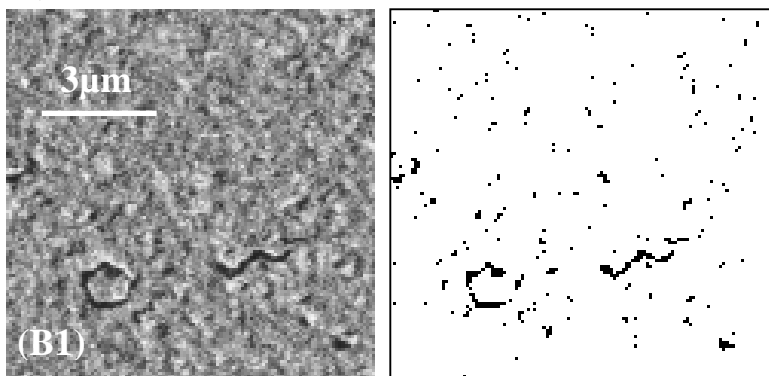
For each MFM image after a threshold treatment from the associated histogram we can roughly estimate the density of domain walls with respect to the total surface of the junction, from the corresponding black to white ratio.



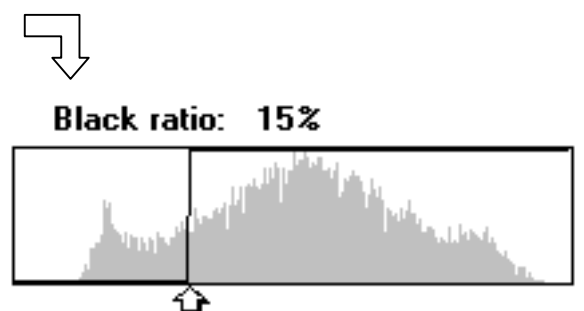
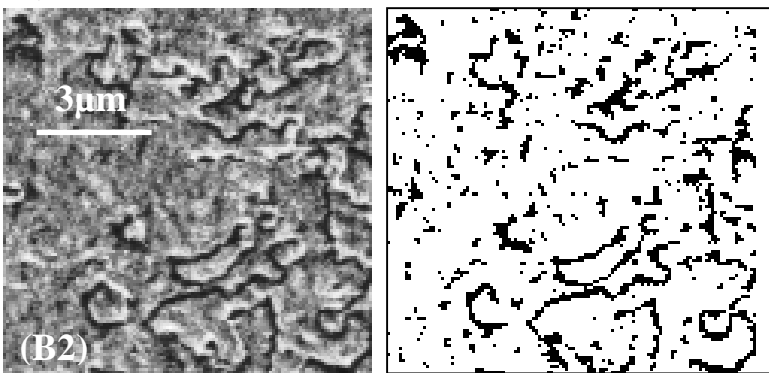
b)



c)



d)



Considering different values for the average angle of domain magnetization, theoretical estimations, using equation C7, applied for the state **(A1)**, figure C4: ($t_R = 5\%$, $TMR = 21\%$) gives :

$$\text{for } \theta = 0 \Rightarrow \omega = S_w/S \sim 22 \%,$$

or by choosing the angle θ :

$$\theta = 10^\circ \Rightarrow \omega = S_w/S \sim 21.4 \%,$$

$$\theta = 15^\circ \Rightarrow \omega = S_w/S \sim 20.5 \%$$

These results are in a good agreement with the value extracted from the MFM image (Figure C4, state **A1**: $\omega \sim 20 \%$).

Magnetic tunnel junction using the Co/Ru/CoFe AAF

In the case of the Co/Ru/CoFe AAF based MTJs, the walls are less stable. At fields $H = -600$ Oe, almost all the walls are annihilated. An analysis of the corresponding MFM image (figure C4, state **B1**) gives:

$$\omega = S_w/S \sim 2\%$$

This value is in good agreement with the theoretical estimation using the equation C7, from which a residual TMR of about 0.5 % is expected for this residual density of walls.

An interesting situation, similar with the Co/Ru/Co based MTJ at $H = -600$ Oe, can be analyzed for Co/Ru/CoFe based MTJ at a field about $H = -450$ Oe (figure C4, state **B2**). Here, a residual tunnel magnetoresistance $t_R \sim 4\%$ from a $TMR = 28.8\%$ is related with the subsistence of the domain walls at this field value.

Analysis of the MFM contrast (figure C4, state **B2**), gives a density of walls of:

$$\omega = S_w/S \sim 15\%$$

This value is in good agreement with the values extracted from the equation C7, by choosing the average magnetization angle θ :

$$\theta = 0^\circ \Rightarrow \omega = S_w/S \sim 17.2 \%$$

$$\theta = 10^\circ \Rightarrow \omega = S_w/S \sim 16.3 \%$$

$$\theta = 15^\circ \Rightarrow \omega = S_w/S \sim 15.3 \%$$

Variation of angle in domains when reducing the field for Co/Ru/Co based MTJs

We analyze again the figure C3, between the states **(A1)** - **(A2)**.

The equation (C8) can be applied for the states **(A1)** and **(A2)**, respectively.

The density of walls $S_w/S = \omega$ is estimated from the MFM image analysis corresponding to the initial state (A1).

and $t_R^1 \sim 4\%$, $t_R^2 \sim 7\%$ from the TMR curve (figure C3), in the states (A1) and (A2).

Therefore, we can calculate the relaxation angle: $\Delta\theta = \theta_1 - \theta_2$ by fixing the initial value for θ_1 :

$$\theta_1 = 0^\circ \Rightarrow \theta_2 = 48.8^\circ \Rightarrow \Delta\theta = 48.8^\circ$$

$$\theta_1 = 10^\circ \Rightarrow \theta_2 = 49.8^\circ \Rightarrow \Delta\theta = 39.8^\circ$$

$$\theta_1 = 15^\circ \Rightarrow \theta_2 = 51.0^\circ \Rightarrow \Delta\theta = 36.0^\circ$$

These relaxation angles, extracted from the quantitative analysis of the TMR minor loops as presented above, is an important parameter related to the local anisotropy distribution, at zero field in our sample.

Appendice D

Liste de publications issues de ce travail de thèse

- **Publications dans des revues internationales à comité de lecture**

¹ C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, H.A.M. van den Berg, V. da Costa, Y. Henry, *Phys. Rev.* **B 61**, 580-593, (2000)

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

² C. Tiusan, M. Hehn, K. Ounadjela, Y. Henry, J. Hommet, C. Meny, H.A.M. van den Berg, L. Baer, R. Kinder, *J. of Appl. Phys* **85**, 5276, (1999)

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

³ C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, H.A.M. van den Berg, V. da Costa, Y. Henry, *J. of Appl. Phys* **87**, 4676, (2000)

Tunnel magnetoresistance versus micromagnetism in magnetic tunnel junctions

⁴ T. Dimopoulos, C. Tiusan, K. Ounadjela, M. Hehn, H.A.M. van den Berg, Y. Henry, V. da Costa, acceptée pour publication dans *J. of Appl. Phys* **87**, 4685, (2000)

Enhanced robustness and tunnel magnetoresistance in artificial ferrimagnet based tunnel junctions

⁵ M. Hehn, O. Lenoble, D. Lacour, C. Féry, M. Piécuch, C. Tiusan, K. Ounadjela, *Phys. Rev.* **B 61**, 11643, 2000.

Tunnel magnetoresistance and induced domain structure in Al₂O₃ based junctions

⁶ C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, soumise pour publication dans *Phys. Rev.* **B**.

Evolution of domain phases in artificial antiferromagnetic systems investigated by spin polarized tunnel transport in magnetic tunnel junctions

⁷ V. da Costa, C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 876, 2000.

Tunneling phenomena as a probe to investigate the atomic scale fluctuations in metal/oxide/metal magnetic tunnel junctions

Appendices

- **Communications orales**

¹ C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, H.A.M. van den Berg, Y. Henry, V. da Costa, 6^{ième} Colloque Louis Néel 'Couches Minces et Nanostructures Magnétiques', Dieppe, 3-5 juin 1999.

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

² C. Tiusan, M. Hehn, K. Ounadjela, Y. Henry,

Reunion GDR POMMES, Gif-sur-Yvette, 7-8 décembre 1998.

Jonctions Magnétiques à effet Tunnel à base du système antiferromagnétique artificiel (AAF)

³ C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, H.A.M. van den Berg, V. da Costa, Y. Henry

44th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, San-Jose, California, 15-18 novembre 1999

Tunnel magnetoresistance versus micromagnetism in magnetic tunnel junctions.

⁴ T. Dimopoulos, C. Tiusan, K. Ounadjela, M. Hehn, H.A.M. van den Berg, Y. Henry, V. da Costa

44th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, San-Jose, California, 15-18 novembre 1999

Enhanced robustness and tunnel magnetoresistance in artificial ferrimagnet based tunnel Junctions.

⁵ C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, H.A.M. van den Berg, V. da Costa, Y. Henry

Journée thématique IPCMS: Nanostructures Magnétiques, 8 mars 2000

Relation entre transport polarisé et magnétisme

- **Communications posters**

¹ C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, H.A.M. van den Berg, V. da Costa, Y. Henry, Ecole 'Magnéto-électronique de spin', Aussois, 3-8 janvier 1999.

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

Appendices

² C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, H.A.M. van den Berg, V. da Costa, Y. Henry, Ecole 'Magnéto-électronique de spin', Rhodes, 12-18 septembre 1999.

Domain structure and spin dependent transport in magnetic tunnel junctions

Résumé:

L'effet tunnel dépendant du spin dans une structure métal ferromagnétique/isolant/métal ferromagnétique, composant une jonction tunnel magnétique, connaît ces dernières années un regain d'intérêt avec sa mise en évidence à température ambiante et avec ses multiples applications potentielles pour l'élaboration de nouveaux dispositifs micro-électroniques (mémoires non-volatiles, capteurs magnéto-résistifs, etc). Dans une jonction tunnel magnétique la transmission par effet tunnel des électrons, polarisés par les électrodes magnétiques, dépend de l'orientation relative des aimantations des électrodes et des caractéristiques de la barrière isolante. La résistance d'une jonction tunnel magnétique varie de plus de 20% en modifiant de manière sélective l'orientation de l'aimantation d'une électrode par rapport à l'autre, en appliquant un champ. Pour cela, une architecture appelée douce-dure est utilisée. Elle repose sur l'association d'une couche magnétique dure et d'une couche magnétique douce comme électrodes magnétiques de la jonction tunnel. Un aspect novateur de ce travail de thèse repose sur l'utilisation d'un système antiferromagnétique artificiel comme système magnétique dur. Ce système, constitué de deux couches magnétiques (Co et/ou CoFe) d'épaisseurs différentes, ayant leurs aimantations arrangées antiparallèles par couplage à travers une couche non magnétique (Ru), permet d'obtenir une grande rigidité magnétique, ajustable, avec une grande stabilité thermique (>300°C). Ce travail de thèse nous a amené à élaborer des jonctions tunnel magnétiques de taille micrométrique et à étudier la corrélation entre leurs propriétés magnétiques et leurs propriétés de transport polarisé en spin à des échelles macroscopiques et microscopiques. Il s'est avéré que, grâce à la sensibilité extrême du transport par effet tunnel polarisé en spin aux fluctuations de l'aimantation aux interfaces métal ferromagnétique/isolant, les jonctions magnétorésistives sont des systèmes idéaux pour étudier sélectivement l'évolution de la structure en domaines des couches ferromagnétiques en contact avec la couche isolante en fonction du champ magnétique appliqué.

MAGNETISM AND SPIN POLARIZED TRANSPORT IN MAGNETIC TUNNEL JUNCTIONS: THE USE OF TUNNEL TRANSPORT AS A MICROMAGNETIC PROBE.

Abstract:

The spin dependent tunnelling effect in a ferromagnetic /insulator /ferromagnetic structure, which constitutes a magnetic tunnel junction, has regained much interest in the last years since it was demonstrated that the effect also takes place at room temperature. This makes magnetic tunnel junction important potential candidates for the application in micro-electronic devices, such as non-volatile memories, magneto-resistive sensors, etc. In a magnetic tunnel junction the electrons are polarized by the magnetic electrodes. Their tunneling probability across the insulating barrier depends on the characteristics of the insulator as well as the relative orientation of the magnetization of the electrodes. Upon modifying selectively the orientation of the magnetization in one magnetic electrode (soft layer) with respect to the other electrode (hard or reference layer) by application of a field, the resistance of the magnetic tunnel junction varies by more than 20%. A major aspect of this thesis work is the use of an artificial antiferromagnetic (AAF) system as the hard magnetic system in the magnetic tunnel junction. The AAF consists of two magnetic layers (Co and/or CoFe) of different thickness having their magnetization aligned anti-parallel due to the exchange coupling across a non-magnetic spacer layer (Ru). This configuration allows one to obtain a large adjustable magnetic rigidity together with a large thermal stability (>300° C). During this thesis work magnetic tunnel junctions of micronic size were fabricated and the correlation between their magnetic properties and their spin polarized transport properties have been studied in the macroscopic as well as the microscopic regimes. It was found that the spin polarized tunnel transport is extremely sensitive to the fluctuations of the configuration of the magnetization ferromagnetic in the electrodes. This sensitivity makes magnetic tunnel junctions ideal probes to study selectively the field dependent evolution of the domain structure of the ferromagnetic layers which is in direct contact with the insulator.

Discipline:

Physique de la matière condensée

Mots-clés:

Jonctions tunnel magnétiques, magnétorésistance tunnel, système antiferromagnétique artificiel, transport polarisé en spin, micromagnétisme, système multicouche, Co/Ru/Co et Co/Ru/CoFe, couplages magnétiques

Laboratoire

Groupe d'Etude des Matériaux Métalliques, Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg (UMR 7504 du CNRS), 23 rue du Loess, F-67037 Strasbourg