



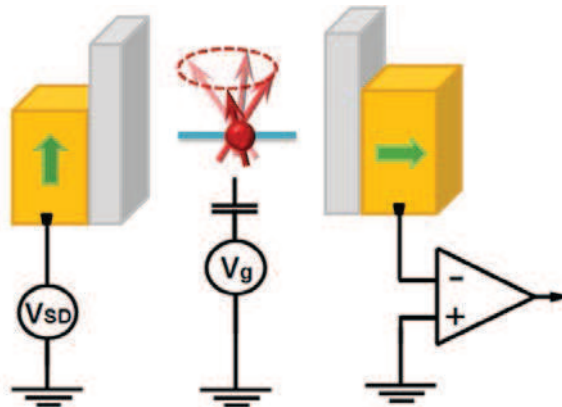
Non-collinear Magneto-electronics in Single Wall Carbon Nanotubes

Author:

Alina-Dora CRISAN

Supervisors:

Dr. Takis KONTOS and Dr. André THIAVILLE



Résumé

1.1 Introduction

L'électronique représente une pierre angulaire de notre technologie moderne. Avec les récents développements des nanotechnologies, il est possible d'accéder à des dimensions qui permettent d'étudier le spin en ouvrant la voie à l'utilisation du degré de liberté du spin des électrons dans des dispositifs électroniques de nouvelle génération. Ceci est à l'origine d'un nouveau domaine de recherche, très prometteur, baptisée spintronique.

Dans ce travail, nous présentons des expériences dans le domaine de la spintronique en utilisant deux matériaux très prometteurs: les nanotubes de carbone (NTC) et le palladium - nickel (PdNi), un ferromagnét versatile dans le but de manipuler le spin électronique dans les deux régimes, classiques et quantiques. Les NTC sont des cylindres de carbone de quelques nanomètres de diamètre et jusqu'à plusieurs millimètres de longueur. Ils ont été découverts par Sumio Iijima en 1991 [1] et ils ont suscité beaucoup d'intérêt en raison de leurs propriétés électroniques et mécaniques exceptionnelles qui sont intensément étudiées depuis. Plus récemment, l'injection de spin, ainsi que le transport en nanotubes de carbone a suscité l'intérêt des chercheurs. La combinaison de la mobilité de charge élevée, le couplage spin-orbite négligeable et la faible interaction hyperfine promet des temps de relaxation très longs pour le spin. Tous ces arguments ont contribué au fait que les NTC sois intensément étudié dans le contexte des applications électroniques de très bas dimension.

L'alliage $Pd_{1-x}Ni_x$ a également attiré une attention considérable lorsqu'il est utilisé comme électrodes ferromagnétiques dans des vannes de spin à base de carbone [2] [4]. Ses excellentes propriétés de contact sur les nanotubes de carbone (NTC), conduit à des contacts à faible résistance (transparent), tandis que son comportement ferromagnétique offre les moyens à l'injection de spin. Étonnamment, dans le cas des nanotubes de carbone une barrière tunnel entre le PdNi et le NTC ne semble pas être indispensable pour l'injection de spin. En fait, l'anisotropie de l'alliage joue un rôle important car des expériences réussies d'injection de spin ont montré un effet de magnétorésistance géante (GMR), qui est déterminé par l'orientation relative entre l'aimantation des électrodes ferromagnétiques du dispositif. Dans les système type de vannes de spin quantiques, la disposition planaire du système complique la réalisation des aimantations non colinéaires. Ainsi, la capacité de contrôler la direction de l'aimantation par rapport au plan de l'électrode devient indispensable. Mais les propriétés magnétiques

de ces alliages ferromagnétiques lorsque lithographié en électrodes étroites, sont peu connues.

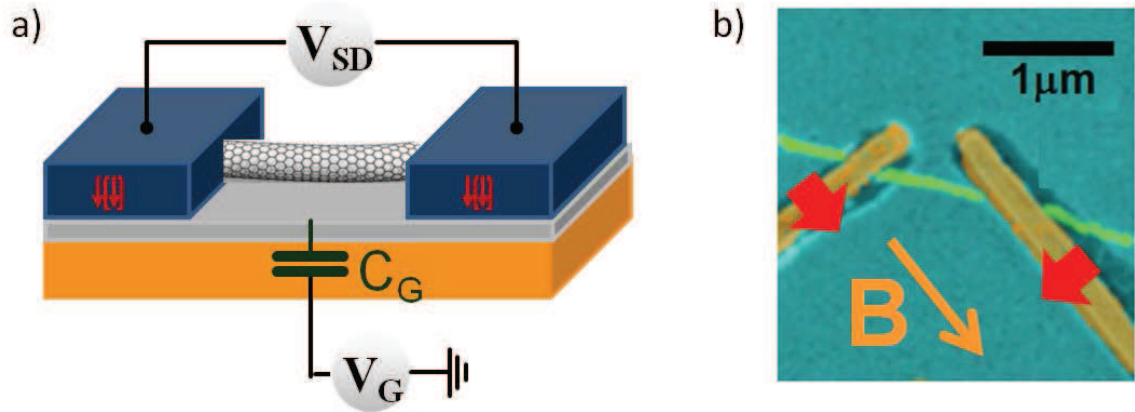


Figure 1.1: (a) Vue schématique d'un point quantique à base d'un NTC: deux électrodes métalliques (source et drain) sont évaporées sur le NTC; le nanotube est capacitivement connecté à une tension de grille pendant que, une source de tension source-drain est utilisé pour varié le potentiel chimique des électrodes; (b) image MEB d'un échantillon typique en fausses couleurs. Les flèches rouges indiquent la direction des aimantations. Une électrode de grille (non visible) est utilisée pour ajuster les niveaux d'énergie du dispositif. Comme indiqué par la flèche orange, le champ magnétique extérieur, B , est appliqué au long de l'axe facile des deux électrodes de PdNi.

Dans ce travail, on met en place un point quantique connecté à deux ferromagnétique non colinéaires similaire a celui présentée schématiquement dans la fig. 1.1, (a). Les deux électrodes (source et drain) sont évaporées sur le NTC; le nanotube est connectée à une tension de grille pendant que, une source de tension source-drain est utilisé pour varié le potentiel chimique des ferromagnéts. Les électrodes sont conçu a former un angle de $\theta = \pi/2$, voir la fig. 1.1, (b). On attend un comportement similaire a celui d'une vanne de spin, dont un effet fini de magnétorésistance est à prévoir.

Dans un system comme celui présenté en haut, on s'attend à une différence de résistance du dispositif entre deux situations de base: la première, lorsque les électrodes ferromagnétiques ont des aimantations orienté façon antiparallèle de sorte que la majorité des spins injectés par le premier électrode vont être principalement réfléchié par le deuxième, ce ci se traduit par un état de haute résistance. Deuxième situation décrit le cas lorsque les ferromagnéts ont un alignement parallèle, alors le couple d'électrons injectés va se coupler bien avec le deuxième ferromagnét conduisant à un état de moindre résistance. À dimension nanométrique, bien sûr, il faut tenir compte des effets de confinement quantique.

Pour moduler la dynamique du système décrit en fig. 1.1, on utilise une matrice de densité, qui contient tous les degrés de liberté du point et des conducteurs. Les deux électrodes sont traitées comme des réservoirs d'électrons sans interaction. Dans cette approximation, les seules qui comptent pour les propriétés de transport du dispositif sont les degrés de liberté de l'île quantique. Ainsi, pour la modélisation du system propose, une matrice de densité réduite, ρ_{point} , pour les degrés de liberté du point quantique est suffisante a décrire le comportement du dispositif. Un ensemble de 6 équations maîtres sont utilisées pour caractériser la probabilité d'occupation et le spin moyen à l'intérieur du point quantique. Pour ce travaille, on est particulièrement intéressés par les trois équations décrivant l'évolution temporelle de la rotation moyenne:

$$\frac{dS}{dt} = \left(\frac{dS}{dt}\right)_{acc} + \left(\frac{dS}{dt}\right)_{rel} + \left(\frac{dS}{dt}\right)_{rot} \quad (1.1)$$

où: $\left(\frac{dS}{dt}\right)_{acc}$ décrit l'accumulation de spin hors d'équilibre donner par les électrons qui vont passer par effet tunnel à partir des/vers les électrodes polarisé en spin (ce terme est aussi la source de la polarisation en spin dans la boîte quantique). Le deuxième terme $\left(\frac{dS}{dt}\right)_{rel}$ est un terme d'équilibre qui décrit la désintégration du spin a l'intérieur du point quantique; la cause de ce phénomène est la sortie des électrons, avec un spin donné, du point quantique par effet tunnel ou l'entrée aussi par effet tunnel d'un deuxième électron de signe opposée formant un maillot de spin a l'intérieur de l'île quantique.

1.2 L'anisotropie du PdNi

Une compréhension détaillée des caractéristiques magnétiques de $Pd_{1-x}Ni_x$ est cruciale à la fois pour comprendre les caractéristiques d'un dispositif nanométrique de type vanne de spin comme celui qu'on veut étudier, à la fois pour comprendre les caractéristiques de basculement d'un tel dispositif mais aussi pour optimiser ses propriétés électroniques. Une étude sur des structures des dimensions micrométrique et nanométrique en PdNi a été mené par des mesures de l'effet Hall extraordinaires (EHE) sur des croix lithographier, voir fig. 1.2. Des différentes compositions chimiques, épaisseurs et films de plafonnement qui empêche l'oxydation, ont tous été testé dans ce contexte.

Les mesures ont été effectués avec un system PPMS qui permet d'étudier l'évolution de l'EHE dans une plage de température comprise entre 5 K et 300 K et dans l'intervalle du champ entre $-9 T$ et $9 T$. Les dimensions des croix de Hall micrométriques étudiés ont 40 μm de largeur et 100 μm en longueur. Dans le cas des échantillons nanométrique, les dimensions sont: 300 nm de largeur et 2 μm de longueur.

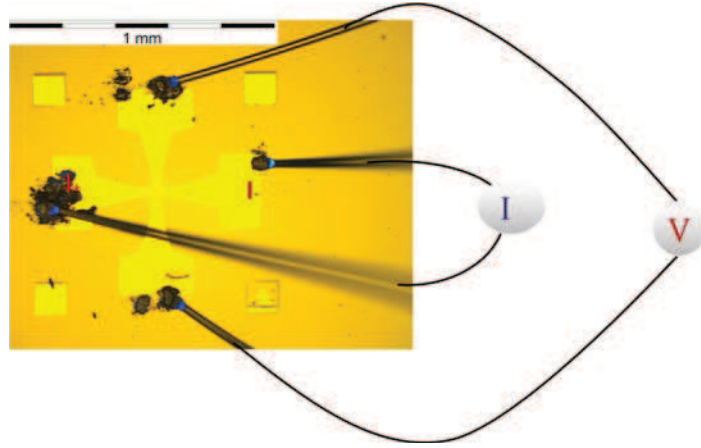


Figure 1.2: *Image optique d'une croix Hall typique, les croix en PdNi sont contacté avec de l'Au et après, en utilisant une machine de microbonding, ils sont relié au porte échantillon; le principe d'une mesure électrique à 4 points de est exposée dans l'image: nous mesurons la différence de tension (V) tout en appliquant un courant électrique entre les terminaux I_+ et I_- . Les mesures ont été effectués avec un system PPMS qui a donné la possibilité d'étudier l'évolution de l'effet Hall extraordinaire (EHE) dans une plage de température comprise entre 5 K et 300 K et dans l'intervalle du champ entre $-9 T$ et $9 T$.*

L'étude présentée ici, s'est concentrée sur le $Pd_{20}Ni_{80}$ et le $Pd_{90}Ni_{10}$. Dans le cas du $Pd_{90}Ni_{10}$, alliage avec une température Curie de 120 K, que donc peut être étudié seulement à basse température, les résultats montrent une évolution de l'anisotropie qui passe de l'orientation dans le plan des électrodes en celui perpendiculaire à une températures d'environ 60 K.

Le $Pd_{20}Ni_{80}$, avec une température Curie beaucoup plus élevée, environ 600 K, est plus intéressante à étudier car il donne la possibilité d'utiliser aussi des techniques de caractérisations à température ambiante. Quand même cette investigation sur le $Pd_{20}Ni_{80}$ représente une première en ce qui concerne les investigations à basse température et les résultats montrent une aimantation de l'échantillon qui reste dans le plan des électrodes même à $T = 10 K$. Cela se traduit par un faible champ magnétique de fuite exercé par le matériau qui est très utile dans la construction des dispositifs de petite taille avec des électrodes ferromagnétiques. Ce résultat est très utile pour la seconde partie de cet ouvrage, concentrée sur la vanne de spin quantique lorsque le résultat obtenu signifie que le champ de fuite exercé par les électrodes sur l'île quantique est faible. Pour cette raison, les investigations ultérieures à ce résultat se sont concentrées sur le $Pd_{20}Ni_{80}$.

Les autres investigations effectuées montrent que la géométrie, l'épaisseur et la composition chimique ainsi que la couche de recouvrement, ils ont tous une influence sur l'aimantation des électrodes de PdNi, en particulier ceux de taille nanométrique. Cela est dû à la relaxation des contraintes sur les bords qui devient important pour les dispositifs de petite dimensions.

Des mesures de l'effet Hall extraordinaires effectués pendant ce travail confirment les expériences précédentes [3], [4] qui ont mis en évidence une direction préférentielle d'un axe magnétique des électrodes du PdNi transverse à l'axe facile de l'électrode. En outre, ce travail fournit des preuves expérimentales pour le modèle proposé par Chauleau et al, qui explique l'orientation bizarre de l'axe magnétique facile, comme une conséquence de l'anisotropie de forme du système. Une composante perpendiculaire de l'aimantation a été également enregistrée pour le centre de la bande, mais selon Chauleau et al, les bords restent toujours transversaux.

Suite à ces résultats, dans nos dispositifs vanne de spin à base de nanotubes de carbone, un alliage riche en Ni a été utilisé pour les électrodes reliant le NTC, en raison de l'orientation dans le plan de l'aimantation qui produit un petit champ de dispersion.

1.3 Magnéto-électronique non colinéaires à l'échelle nanométrique

Les dimensions nanométriques du dispositif type vanne de spin proposé dans ce travail, l'utilisation de nanotubes de carbone et la grande sensibilité de l'ensemble du système de charge électrostatique, rend le processus de nanofabrication délicat assez difficile. Les NTC sont reliés à des électrodes PdNi qui à leur tour sont contactés à des contacts en Au. Des croix d'alignement en Au (des petits et des grands) sont utilisées pour bien aligner les électrodes ferromagnétiques sur les nanotubes sélectionnés et gagner ainsi en précision sur les propriétés physiques du système.

Afin de minimiser les étapes de fabrication nécessaires pour obtenir un échantillon viable, la tension de grille est appliquée directement à travers le substrat. Pour cette raison, a été choisi un substrat de Si dopé, ayant une résistivité de $0.004 - 0.008 \Omega\text{cm}$ et revêtu de $525 \pm 25 \mu\text{m SiO}_2$.

Dans le processus de fabrication de l'échantillon, la lithographie par faisceau d'électrons est utilisée à trois reprises. Une première étape pour dessiner les endroits où le catalyseur nécessaire à la croissance de nanotubes va être utilisé, puis dans une seconde étape pour dessiner les zones utilisées pour bien aligner l'échantillon et aussi les grands contacts en Au et enfin une troisième étape pour modéliser les électrodes de PdNi.

Les dimensions des échantillons et la multitude des procédures requises pour les obtenir, peuvent donner naissance à une série de problèmes au cours du processus de fabrication. Certaines étapes clés qui peuvent poser des problèmes sont: la densité insuffisante / excessive de nanotube de carbone - situation exposée dans la fig. 1.3, localisation MEB défectueuse des nanotubes en raison de l'accumulation de charges sur

la surface de l'échantillon, les problèmes de métallisation, spécialement dans le cas du PdNi, en raison d'un mauvais choix de paramètres lithographiques ou même à cause des difficultés à atteindre une pression optimale lors l'évaporation.

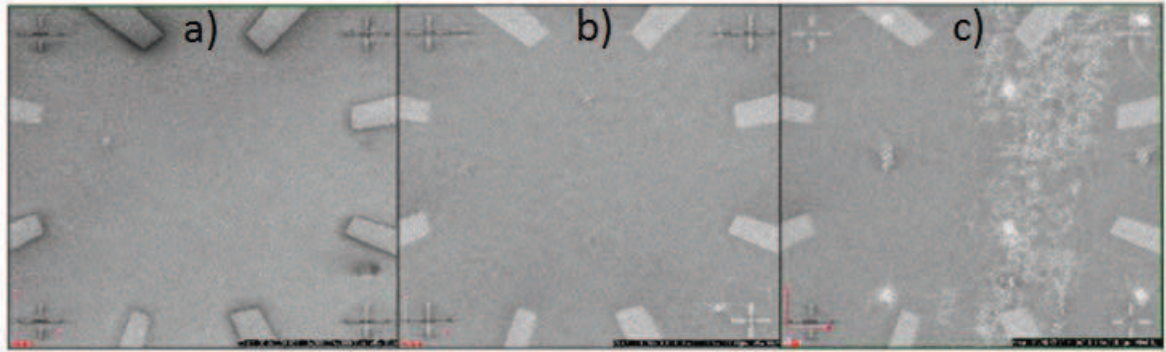


Figure 1.3: *Images typiques MEB de différentes zones d'un échantillon; (a) densité très faible de NTC de longueur insuffisante pour les relier avec des électrodes en PdNi; (b) bonne densité de nanotube, prêts à être raccordés; (c) densité trop haute de tubes - en raison de l'enchevêtrement des tubes, il est impossible de les connecter proprement et ensuite de les mesurer.*

Après les processus de lithographie et métallisation, le substrat est collé sur le porte-échantillon et les structures sont connectées à l'aide d'une machine de micro-collage. Une fois les structures reliées au port-échantillon, toutes les variations électrostatiques doivent être évitées, à ne pas endommager les nanotubes de carbone.

Pour les mesures de conductance, une tension de grille est appliqué à travers le substrat (voir fig 1.4). Pour contrôler les niveaux de énergie à l'intérieur du point quantique et pour polariser le système, une tension source-drain est appliqué entre les deux électrodes de PdNi. La conductance différentielle locale est mesurée en appliquant une petite tension, V_{AC} , (avec l'aide d'un amplificateur lock-in) qui est proportionnelle au courant alternatif passant à travers le circuit. Le signal obtenu à l'électrode de drain est mesuré en utilisant un préamplificateur de courant avec une augmentation de 10^6 .

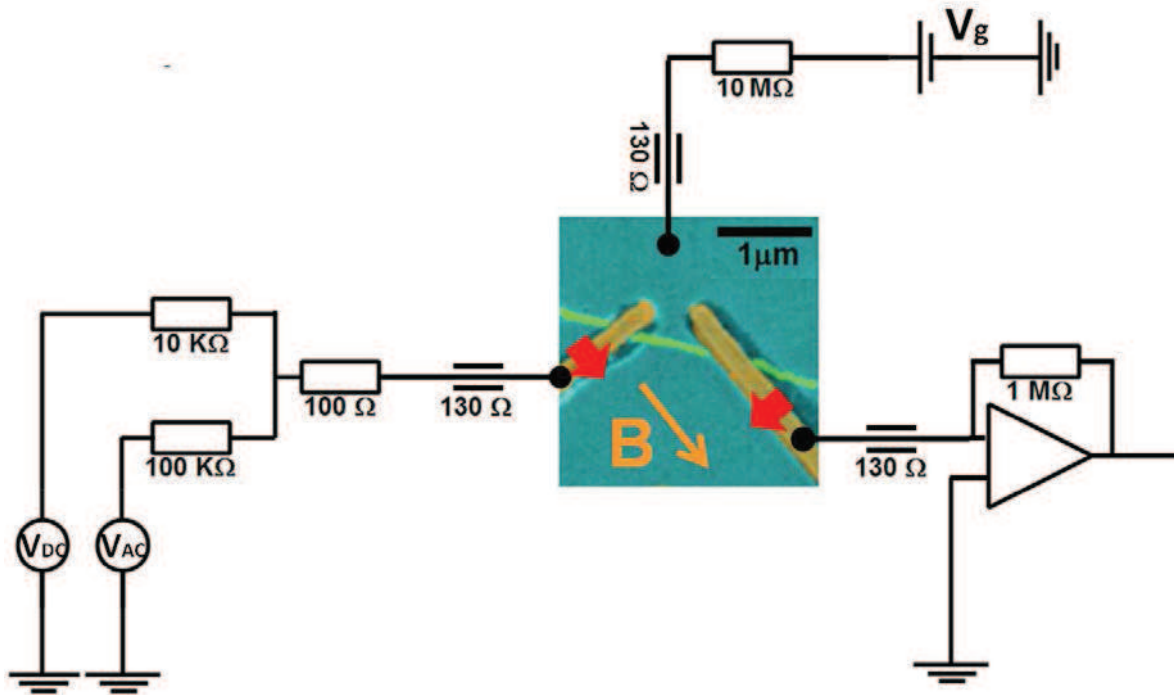


Figure 1.4: Schéma électrique des mesures de transport.

1.3.1 Le régime du transport du blocage du Coulomb

Le passage par effet tunnel des électrons à partir des électrodes vers l'île quantique est fortement influencé par l'énergie de charge de Coulomb du point quantique. Ce passage d'un électron dans une telle île augmente l'énergie électrostatique par l'énergie de charge $E_C = e^2/2C$, où e représente la charge électronique et C est la capacité totale du point quantique.

Bien sûr, on peut parler de transport des électrons par effet tunnel seulement si les contacts entre le NTC et les deux contacts métalliques sont, dans une certaine mesure, transparent. En fait, sans doute, c'est le paramètre plus difficile à contrôler mais qui est le plus déterminante par rapport aux propriétés de transport d'un tel dispositif. Dans les échantillons ayant un contact faiblement transparent, est observé un régime de transport de blocage de Coulomb prononcée, où les maximums de conductance, donné par un électron unique, sont séparés par de larges vallées de conductance nulle. Pour observer le régime de blocage de Coulomb, ainsi des charges discrètes à l'intérieur du point quantique, il est nécessaire que les événements de transmission entre les pistes ferromagnétique et l'île soit beaucoup inférieur à 1. Ce sont les charges qui parviennent à pénétrer dans le point quantique pour y rester bloqué pendant une période suffisamment longue.

Le dispositif proposé ici utilise des NTC mono-paroi obtenu par un processus à base de méthane sur un substrat silicium fortement dopé utilisé comme une grille arrière. Les échantillons sont reliés à des électrodes ferromagnétiques $Ni_{0,7}Pd_{0,3}$, 30 nm d'épaisseur et 200 - 300 nm de larges, couvertes de 5 nm de Pd; les contacts forme

un angle $\theta = \pi/2$. L'angle entre les aimantations des électrodes est vérifié sur des échantillons témoins à température ambiante en utilisant l'imagerie MFM qui atteste l'aimantation transversale prévue. On s'attend que les deux aimantations des électrodes vont s'aligner soit en géométrie ou perpendiculaire parallèle / antiparallèle un à l'autre.

Les mesures de conductance sont faites avec la norme blocage technique de détection avec une modulation AC de $100 \mu V$ à $777,77 Hz$. Chaque courbe de magnétorésistance est obtenue en faisant la moyenne de 4 courbes simples, toutes affichant un basculement de la magnétisation des électrodes. Le champ magnétique externe est appliqué dans la direction de l'une des deux électrodes, donc perpendiculaire au deuxième. Le choix de l'angle entre les électrodes est dû à assurer un effet maximal lorsque le champ extérieur est balayé entre des valeurs positives et négatives.

Des mesures de transport su spin ont révélé un régime de blocage de Coulomb, confirmé à l'aide de la spectroscopie de transport. Le régime linéaire aussi bien que celui non linéaire ont été également testé. En régime linéaire, les résultats montrent un signal de TMR lorsqu'il est placé dans un champ de balayage, un comportement typique pour un dispositif vanne de spin. Les basculement hystérésis sont symétriques par rapport au champ externe 0 et correspondent à des modifications de l'aimantation relative de l'électrodes.

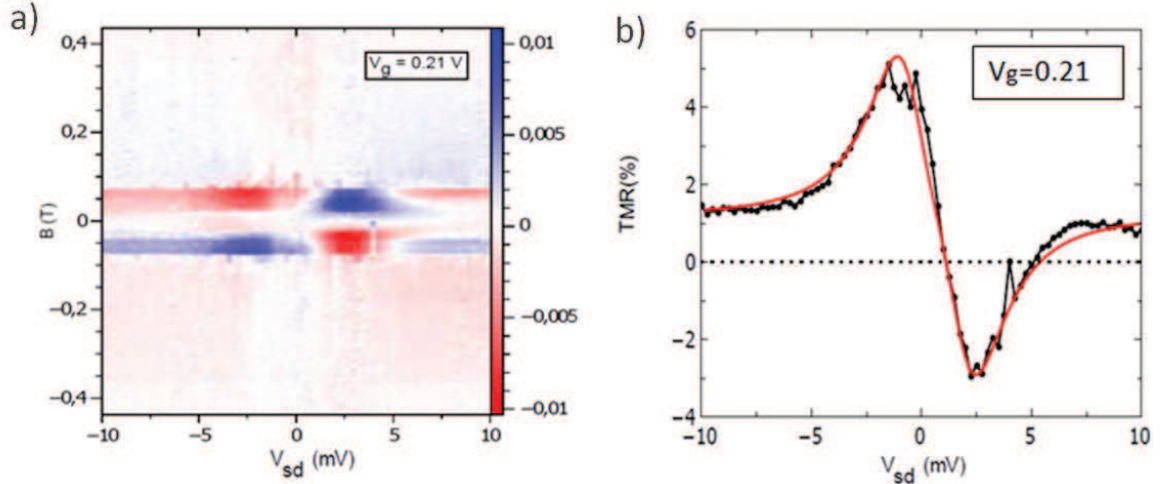


Figure 1.5: (a) réponse à l'échelle de la tension de grille du signal de spin $\Delta G = G_{trace} - G_{retracent}$ dans la spectroscopie de couleur en fonction du champ magnétique, B , et la source-drain V_{SD} . $V_g = 0,21 V$; (b) Ligne noire - conductance linéaire mesuré simultanément avec le signal de spin, la ligne rouge - simulations théoriques en accord avec les données expérimentales.

Le signal TMR oscille avec la tension de grille en raison du comportement quantique

du nanotube connecté aux conducteurs ferromagnétiques. Ces oscillations ont comme source les phénomènes d'interférences quantiques ainsi que les interactions qui ont lieu à l'intérieur du dispositif. En plus, les courbes de TMR sont légèrement décalés en phase (d'environ $\pi/4$) en ce qui concerne les modulations de la conductance, avec la même période, marqueur de phénomènes d'injection de spin dans un conducteur cohérent avec les niveaux d'énergie quantifiés.

Dans le régime non linéaire, ont été obtenu des variations dans le signal d'hystérésis lorsque la polarisation change des valeurs de positive à des valeurs négatives (voir fig. 1.5, (a)). De plus, le TMR affiche un comportement presque antisymétrique avec la conductance. Les mesures réalisées pour différentes valeurs de la tension grille et celle source-drain comptent pour la non trivialité de ce comportement. Cette variation antisymétrique, qui a la même symétrie que le courant, indique un courant de spin induite par un phénomène de précession (voir fig. 1.5, (b)). Des simulations théoriques appuient également cette hypothèse: une combinaison entre des phénomènes d'accumulation de spin qui tend à forcer une rotation du spin à l'intérieur du point de suivre la symétrie du courant et de l'autre cote la relaxation de spin et qui agit contre lui. En outre, l'étude du signal de spin dans le plan de polarisation du champ relève une précession du spin à l'intérieur du point quantique (voir schémas présenté dans la fig. 1.6).

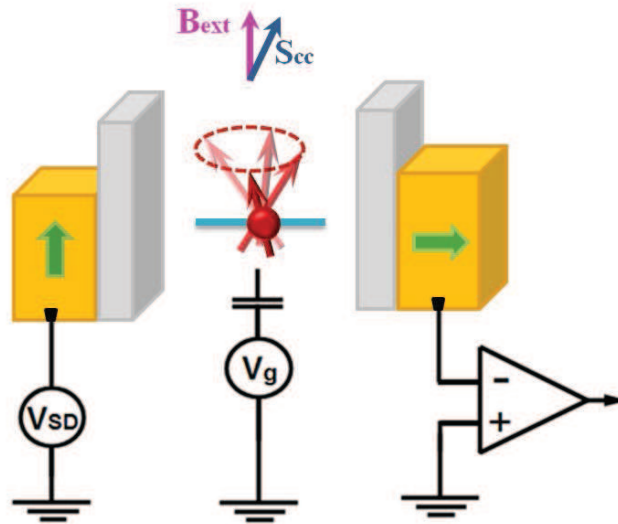


Figure 1.6: *Illustration du comportement phénoménologique de l'appareil. Un niveau d'énergie active unique effectue un seul tour, qui peut prendre n'importe quelle direction, en principe, car elle est commandée par les électrodes ferromagnétiques. Un comportement concurrentiel entre les phénomènes d'accumulation de spin qui tend à forcer la rotation à l'intérieur du point de suivre la symétrie de la relaxation de spin de courant et qui agit contre elle, déterminer une précession de spin à l'intérieur du point quantique.*

1.3.2 Le régime de transport Fabry-Perot

Un contact transparent entre le NTC et les conducteurs ferromagnétiques permettent un comportement qui respecte le régime de conduction de Fabry-Pérot, l'analogue électronique à l'interféromètre Fabry-Pérot. La courbe de conductance en fonction de la tension source-drain et de la tension de grille, en damier, confirme la physique Fabry-Pérot (voir fig. 1.7, (a)). L'espacement entre les centres de deux rhombes adjacents est de 5 mV ; cela donne accès aux niveaux d'énergie à l'intérieur du nanotube. Dans notre cas, ils sont conforme à la longueur défini par lithographie qui est d'environ 600 nm .

Les mesures effectuées en régime linéaire ont été utilisées pour caractériser le transport de spin en l'absence d'une tension source-drain. Le signal enregistré a une évolution hystérétique, les basculassions indiquant des modifications dans l'aimantation des contacts de PdNi. Les mesures effectuées sur un large intervalle de tensions de grille montrent des variations cohérentes dans l'ampleur des sauts jusqu'à 4 %. Un tel comportement est spécifique d'un dispositif de type jonction magnétique.

Un résultat spectaculaire obtenu est présentés dans la fig. 1.7, (b): les boucles d'hystérésis montrent un basculassions de l'aimantation dans les deux électrodes ferromagnétiques qui ont lieu avant que le champ magnétique externe appliqué change de signe. Cette caractéristique a été enregistrée dans le régime d'équilibre pour quelques tensions de grille. Les phénomènes ont été étudiés à la fois pour les champs magnétique qui monte et aussi quant ils descendent. En plus, les différentes valeurs V_g concernés prouve la non trivialité de ce comportement .

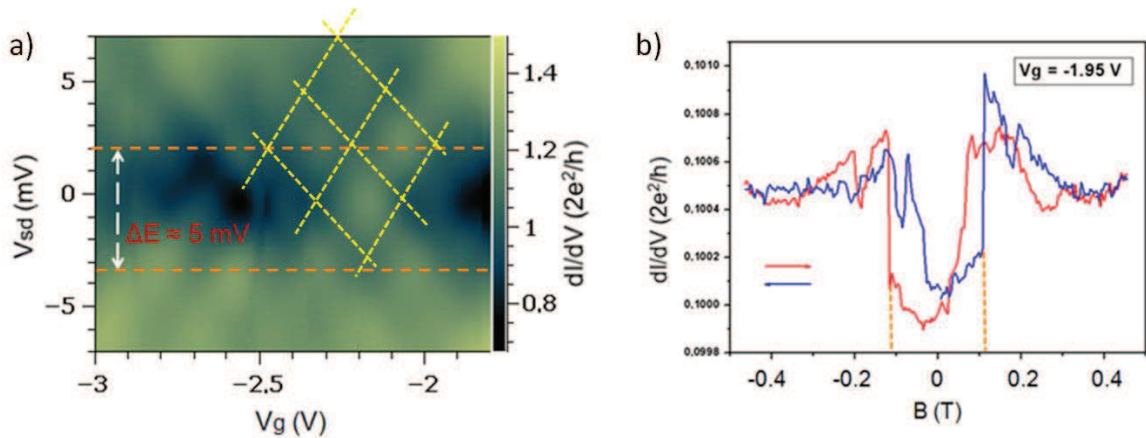


Figure 1.7: (a) la spectroscopie de conductance différentielle du dispositif sur une large plage de la polarisation source-drain V_{SD} et tension de grille. Le damier caractéristique à la physique du regime Fabry-Pérot. Température expérimentale est $1,8 \text{ K}$. (b) la courbe unique de magnétorésistance pour $V_g = -1.95 \text{ V}$. Basculassions de l'aimantation avant que le champ change de signe externe.

Afin d'arriver à une conclusion définitive sur la nature de ce résultat, des investigations supplémentaires doivent être poursuivies, mais ce travail préliminaire effectué jusqu'à présent semble suggérer un couple qui "aide" du champ extérieur appliqué pour basculer l'aimantation à l'intérieur des deux électrodes ferromagnétiques PdNi.

Bibliography

- [1] S. Iijima. *Helical microtubules of graphitic carbon*. Nature, 354, pages 56 - 58 (1991).
- [2] S. Sahoo and T. Kontos, J. Furer, C. Hoffman, M. Graber, A. Cottet, C. Schronberger. *Electric field control of spin transport*. Nature Physics, 1:99 (2005).
- [3] J.-Y. Chauleau, B.J. McMorran, R. Belkhou, N. Bergéard, T.O. Mentès, M. A. Nino, A. Locatelli, J. Unguris, S. Rohart, J. Miltat, A. Thiaville. *On the magnetization textures in NiPd nanostructures*. Phys. Rev. B, B 84, 094416 (2011).
- [4] C. Feuillet-Palma, T. Delattre, P. Morfin, J.-M. Berroir, G. Fève, D. C. Glattli, B. Placais, A. Cottet, and T. Kontos. *Conserved spin and orbital phase along carbon nanotubes connected with multiple ferromagnetic contacts*. Phys. Rev. B, B 81, 115414 (2010).