

# Table des matières

<b>Remerciements</b>	<b>1</b>
<b>Introduction</b>	<b>5</b>
<b>1 Introduction : le magnétisme, la spintronique et les MRAM</b>	<b>7</b>
1.1 Les matériaux magnétiques . . . . .	7
1.1.1 Quelques notions de magnétisme . . . . .	7
1.1.2 L'anisotropie magnétique . . . . .	10
1.1.3 Les couches minces magnétiques, matériaux à aimantation per- pendiculaire . . . . .	11
1.2 Couplages dans les multicouches magnétiques . . . . .	12
1.2.1 Couplage direct par trou d'épingle . . . . .	12
1.2.2 Couplage de Néel ou peau d'orange . . . . .	13
1.2.3 Couplage RKKY . . . . .	13
1.2.4 Couplage dipolaire . . . . .	14
1.3 Caractérisation magnétique . . . . .	15
1.3.1 Le magnétomètre à échantillon vibrant . . . . .	15
1.3.2 Le magnétomètre à SQUID . . . . .	16
1.3.3 Les mesures d'effet Hall extraordinaire . . . . .	17
1.3.4 Les mesures magnéto-optique d'effet Kerr polaire . . . . .	18
1.4 Les dépôts par pulvérisation cathodique magnétron . . . . .	19
1.5 Transport dépendant du spin . . . . .	21
1.5.1 Diffusion dépendante du spin . . . . .	21
1.5.2 La magnétorésistance géante . . . . .	22
1.5.3 Polarisation en spin des électrons . . . . .	23
1.5.4 La magnétorésistance tunnel . . . . .	24
1.5.5 Le couple de transfert de spin . . . . .	29
1.6 Les MRAM . . . . .	31
1.6.1 Comparaison avec différents types de mémoires . . . . .	32
1.6.2 Les MRAM à aimantation planaire à écriture par champ . . . . .	33
1.6.3 Les MRAM à écriture par couple de transfert de spin . . . . .	35
1.6.4 Les MRAM à aimantation perpendiculaire . . . . .	36
1.6.5 Les MRAM assistées thermiquement (TA-MRAM) . . . . .	37

1.7	L'assistance thermique dans les jonctions à aimantation perpendiculaire .	39
1.8	Objectifs de la thèse . . . . .	40
<b>2</b>	<b>Développement de multicouches (Co/Pt) et (Co/Pd)</b>	<b>47</b>
2.1	L'anisotropie magnétique perpendiculaire dans les multicouches (Co/NM)	48
2.1.1	Champ démagnétisant et anisotropie de forme . . . . .	49
2.1.2	Anisotropie magnétocristalline . . . . .	50
2.1.3	Effets des contraintes . . . . .	50
2.1.4	Effets induits aux surfaces et interfaces . . . . .	52
2.1.5	Effets des rugosités et diffusions . . . . .	53
2.2	Détermination des contributions d'anisotropie de volume et d'interface .	54
2.3	Anisotropie perpendiculaire des tricouches Pt/Co/Pt et Pd/Co/Pd . . .	55
2.4	Asymétrie d'anisotropie interfaciale entre interfaces supérieure et inférieure	59
2.4.1	Mise en évidence de l'asymétrie . . . . .	59
2.4.2	Remplacement du platine par du palladium . . . . .	67
2.4.3	Mesure de l'anisotropie d'interface de différents métaux . . . . .	69
2.5	Effet de l'interdiffusion Co-Pt à l'interface supérieure . . . . .	71
2.5.1	Effet de l'insertion de cuivre dans les tricouches Pt/Co/Pt . . . . .	71
2.5.2	Influence de l'épaisseur de la couche de platine de couverture sur l'anisotropie . . . . .	73
2.6	De la tricouche NM/Co/NM à la multicouche magnétique (Co/NM) <sub>n</sub> . .	75
2.6.1	Comparaison entre les multicouches (Co/Pt) <sub>n</sub> et (Co/Pd) <sub>n</sub> . . . . .	75
2.6.2	Développement de multicouches (Co/Cu/Pt) <sub>n</sub> . . . . .	78
2.7	Conclusion . . . . .	80
<b>3</b>	<b>Développement de multicouches (Co/Tb)</b>	<b>83</b>
3.1	Alliages TbCo . . . . .	84
3.1.1	Ferrimagnétisme des alliages TbCo . . . . .	84
3.1.2	Anisotropie des alliages RE-TM . . . . .	85
3.2	Méthodes de fabrication d'alliages RE-TM . . . . .	86
3.3	Développement de multicouches (Co/Tb) . . . . .	88
3.3.1	Ajustement de la composition . . . . .	88
3.3.2	Influence de l'épaisseur totale de la multicouche . . . . .	91
3.3.3	Influence de l'épaisseur de la bicouche Co/Tb . . . . .	92
3.4	Caractérisation structurale . . . . .	93
3.5	Conclusion . . . . .	96
<b>4</b>	<b>Fabrication de jonctions tunnel à aimantation perpendiculaire</b>	<b>99</b>
4.1	Fabrication de la barrière tunnel . . . . .	100
4.1.1	Mesures CIPT . . . . .	101
4.1.2	Étude du degré d'oxydation de la barrière . . . . .	102
4.2	Électrodes à aimantation perpendiculaire . . . . .	105
4.2.1	Calcul théorique . . . . .	105

4.2.2	Fabrication des électrodes . . . . .	107
4.3	Effet des champs rayonnés : étude de structures SAF . . . . .	110
4.3.1	Structures SAF perpendiculaires . . . . .	111
4.3.2	Effet de l'insertion d'une couche de Pt . . . . .	113
4.3.3	Réduction du couplage dipolaire . . . . .	117
4.4	Caractéristiques électriques des jonctions perpendiculaires . . . . .	121
4.4.1	Multicouches (Co/Pt) et barrière d'alumine . . . . .	122
4.4.2	Multicouches (Co/Pd) et barrière de MgO . . . . .	123
4.4.3	Utilisation de multicouches (Co/Tb) . . . . .	126
4.5	Conclusion . . . . .	129
<b>5</b>	<b>Effets de la température sur l'anisotropie</b>	<b>135</b>
5.1	Modèle de basculement d'anisotropie . . . . .	135
5.1.1	Les bases du modèle . . . . .	135
5.1.2	Validité du modèle . . . . .	136
5.1.3	Utilisation de systèmes multicouches . . . . .	139
5.1.4	Mesure de la température de basculement d'anisotropie . . . . .	139
5.2	Ajustement de la variation d'aimantation dans les multicouches (Co/NM) . . . . .	140
5.2.1	Influence de l'épaisseur de cobalt . . . . .	140
5.2.2	Influence de l'épaisseur de l'espaceur . . . . .	143
5.3	Fabrication des électrodes de stockage et de référence . . . . .	146
5.3.1	Validation du basculement d'anisotropie . . . . .	147
5.3.2	Ajustement de la température de basculement d'électrodes magnétiques . . . . .	149
5.3.3	Utilisation des alliages TbCo . . . . .	152
5.4	Conclusion . . . . .	153
<b>6</b>	<b>Écriture assistée thermiquement de jonctions tunnel magnétiques perpendiculaires</b>	<b>157</b>
6.1	Mesure des probabilités de retournement . . . . .	158
6.2	Modèle de chauffage 1D . . . . .	160
6.3	Calcul de la stabilité thermique des piliers . . . . .	161
6.4	Démonstration de l'écriture assistée thermiquement . . . . .	167
6.4.1	Écriture par champ assistée thermiquement . . . . .	167
6.4.2	Écriture par couple de transfert de spin assistée thermiquement . . . . .	169
6.4.3	L'effet du chauffage avec une électrode de référence CoTb . . . . .	174
6.5	Conclusion . . . . .	174
	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>179</b>
	<b>Annexe 1 : Fabrication des nanopiliers</b>	<b>183</b>
	<b>Annexe 2 : Conversion des unités cgs en unités SI</b>	<b>189</b>





# Remerciements

Thèse soutenue, il est temps pour moi d'écrire ses quelques lignes de remerciements qui viendront clore trois années de thèse au laboratoire SPINTEC (comme le temps passe vite!). Trois années riches au niveau scientifique, mais également au niveau humain, grâce à toutes les personnes que j'ai eu l'occasion de rencontrer.

Pour commencer, je tiens à remercier chaleureusement Bernard Diény, mon directeur de thèse. Tout d'abord pour m'avoir permis d'effectuer cette thèse, mais également pour ses conseils avisés, ses nombreuses idées et ses connaissances scientifiques qui font l'admiration de l'ensemble de ses collègues! Sans Bernard, SPINTEC ne serait pas vraiment SPINTEC. Et enfin, je remercie également Bernard pour ses qualités humaines, sachant toujours rester disponible et amical. Je remercie également Ricardo Sousa qui m'a suivi d'un peu plus près durant cette thèse, en particulier pendant les réunions MRAM. Merci de m'avoir donné autant d'autonomie, mais également de m'avoir aidé lorsque j'en avais besoin avec les mesures électriques. Je tiens également à exprimer ma reconnaissance à Bernard Rodmacq, dont les conseils avisés et l'esprit critique m'ont permis d'apprendre énormément de choses sur les matériaux magnétiques durant ces trois années. Sa rigueur scientifique et sa qualité d'analyse m'ont permis de garder un oeil critique sur mes résultats et de prendre le recul nécessaire à toute interprétation physique. Je dois également remercier les différents directeurs de SPINTEC qui se sont succédés, tout d'abord Alain Schuhl, puis Jean-Pierre Nozières. D'ailleurs, merci Jean-Pierre pour l'organisation des matchs de foot Crocus/SPINTEC au Sappey, et le barbecue qui suit!

J'aimerais également remercier mon jury de thèse : tout d'abord Agnès Barthélémy et François Montaigne qui ont accepté d'être rapporteurs (et donc de lire en détail ce manuscrit, les malheureux!). Je remercie également Alexandra Mougin et Russell Cowburn d'être venus assister à ma soutenance de thèse, et enfin Joël Cibert de l'avoir présidée.

J'en viens maintenant à mes collègues de SPINTEC, sans qui ces trois années n'auraient vraisemblablement pas été aussi agréables. Pour commencer, je tiens à remercier tout particulièrement Lavinia et Maria qui ont effectué leurs trois années de thèse en même temps que moi. Je vous ai allègrement piqué quelques développements matériaux, mais comme vous avez fait pareil avec moi, on va dire qu'on est quitte! Merci pour votre bonne humeur. Il convient de les féliciter d'avoir supporté le français râleur que je

---

suis (enfin, soi-disant râleur. Moi, je me trouve très jovial!) pendant trois ans (et demi avec le stage de fin d'étude)! Je remercie également les autres thésards avec qui j'ai pu échanger durant ces trois années : Jérémy, Lucien et Erwan, que je rejoindrai bientôt à Crocus pour de nouvelles aventures, Michaël, Bertrand, Mihai, Émilie (qui ne râle jamais et ne casse pas les manips, même pas un AFM), Sylvain le geek, et les autres. Je tiens également à saluer les permanents du laboratoire, pour leur aide, leur soutien et pour l'ambiance! Merci en particulier à Gilles le montagnard d'Aix, Hélène, Bernard : c'était sympa ces petites ballades en montagne! À Vincent, Daria, Mair et les russophones de SPINTEC, qui m'ont fait redécouvrir le charme de Moscou. Vivement le prochain MISM. À Stéphane, Clarisse, qui ne sont pas trop bavards, mais on arrive quand même parfois à leur tirer deux-trois(mille) mots. Et également à Olivier. C'était pas toujours facile de vous réunir à 11H45 pour aller manger, mais j'ai fait de mon mieux! Merci également à Jérôme (grand pourvoyeur de débats à la pause café de 12h30), Guillaume et les autres.

Je remercie également le personnel de Crocus qui a encore un pied dans SPINTEC. Non seulement pour nous avoir fourni moult plaques de cuivre nitruré (merci Céline) ou mesures CAPRES (merci Clarisse), mais également pour m'avoir un peu suivi et guidé durant ses trois années (merci Lucian).

Je tiens également à remercier Marité, Yasmina, Julien et Laurent (les gens du "process" comme on les appelle dans le milieu) pour m'avoir fourni en piliers, puis aidé à les fabriquer, ces fameux nanopiliers. Je tiens également à saluer les membres de la PTA pour leur aide précieuse et leurs conseils avisés sur le fonctionnement de ces machines de fabrication. Toutes ces gravures, lithographies, etc... resteront pour moi un brin mystérieuses, mais je suis très reconnaissant envers les personnes qui s'y sont intéressé de près et établi la recette qui permet de réaliser en 2 jours les maintenant célèbres piliers RAM3 avec un rendement de 99%(parfois).

Pour faire de la physique expérimentale, il faut des machines. Et pour fabriquer ces machines, il faut des ingénieurs, des techniciens, des mécaniciens et des électriciens. Pour cela, je remercie Isabelle, Éric et Philippe pour m'avoir aidé à réaliser les manips dont j'avais besoin durant cette thèse. Je tiens également à témoigner toute ma reconnaissance aux sociétés VAS et Actémium pour la machine de dépôt qui a égayé mes longues soirées d'hiver. Étendre le concept de la roulette russe à la pulvérisation cathodique, c'était un pari osé. Cause de nombreux accès de rage ou de désespoir, cette machine à été ma principale monture pour ce travail de thèse. Je tiens à témoigner à Stéphane toute ma gratitude pour m'avoir appris à dompter la bête! Et également pour m'avoir appris tous les rouages (enfin, la plupart) du dépôt. Bon courage avec le nouveau logiciel!

Le chercheur serait bien perdu s'il devait se débrouiller seul dans les méandres de la bureaucratie. Je remercie donc Rachel et Kat qui m'ont guidé pendant ces trois années pour remplir divers formulaires et papiers nécessaires au départ en conférence, à la com-

---

mande de matériel ou pour pouvoir se réinscrire en thèse.

Je tiens également à remercier les personnes qui m'ont aidé à préparer la partie la plus importante d'une soutenance de thèse : le pot. Merci donc à Perrine, Émilie, Lavinia pour leur participation active à l'élaboration de gâteaux, et également à Maria pour m'avoir aidé à installer tout ce bazar.

Je voudrai également rendre hommage aux divers professeurs que j'ai eu durant ma scolarité et qui m'ont donné goût à la physique. J'ai une petite pensée en particulier pour M. Devismes qui m'a appris la rigueur scientifique en Terminale, M. Poizot qui a continué en classe préparatoire, et également MM. Carminati et Greffet à l'école Centrale pour leur enthousiasme et la qualité de leurs cours !

Pour finir, je voudrais remercier mes parents, ma famille pour leur soutien durant ces trois années. Merci également à mes amis pour le temps que je passais hors du labo et qu'on a partagé (quand je ne dormais pas) : la bande du 2A, Janou, JD, Dadou et Mike ; et également la bande du lycée (c'était le bon vieux temps) : Sébastien, Sébastien, Aurore, Tiphaine, Colin et Marie. Merci de m'avoir fait sortir de temps en temps de ma tanière ! Ça n'a pas toujours été facile, vous m'avez sûrement trouvé un peu grognon ou fatigué de temps à autre (si peu..., moi, un modèle d'optimisme et de dynamisme !), mais il paraît que c'est normal pendant une thèse !

*"L'homme de Science le sait bien, lui, que seule la Science a pu, au fil des siècles, lui apporter l'horloge pointeuse et le parcimètre automatique sans lesquels il n'y a pas de bonheur terrestre possible."*

Pierre Desproges

---

# Introduction

Le stockage de l'information est un enjeu crucial de notre civilisation. Depuis des siècles, l'homme cherche à conserver ses connaissances de façon pérenne. Notre mémoire étant faillible et la transmission des savoirs par voie orale imparfaite, il a été nécessaire de trouver un moyen de stocker ces connaissances par un moyen plus fiable. De ce point de vue, les peintures rupestres réalisées il y a plusieurs dizaines de milliers d'années peuvent être considérées comme les premières méthodes d'enregistrement de données. L'apparition de différentes techniques comme l'écriture et la papeterie ont permis de fortement augmenter la densité de stockage d'informations. Ces techniques ont évolué tout au long de l'histoire en vue d'améliorer l'endurance des écrits ainsi que le temps et le coût d'écriture. Une percée technologique est réalisée au milieu du XX<sup>e</sup> siècle avec l'avènement de l'électronique et du magnétisme. Ces deux branches de la physique ont révolutionné le monde du stockage et du traitement des données, permettant d'augmenter de façon exponentielle la densité de stockage de l'information.

La réunion de l'électronique et du magnétisme a donné naissance à la spintronique, un domaine qui connaît un essor important depuis une vingtaine d'années. L'idée de ce nouveau domaine est d'utiliser à la fois les propriétés de la charge et du spin de l'électron, ce qui permet de fabriquer de nouvelles technologies plus économes en énergie, plus rapides et plus compactes. Si le transport dépendant du spin est étudié depuis plus de 50 ans, des applications utilisant cet effet n'ont été développées que depuis la fin des années 80. La découverte de la magnétorésistance géante par Albert Fert et Peter Grünberg est de ce point de vue l'événement qui a déclenché un enthousiasme sans précédent pour ces nouvelles technologies.

Le laboratoire SPINTEC (SPINtronique et TEchnologie des Composants) s'investit dans ce domaine de recherche stimulant. Présent dans de nombreux domaines reliés aux technologies de l'information basés sur des dispositifs spintroniques, SPINTEC se positionne à l'interface entre la recherche fondamentale et la physique appliquée. Un des rôles du laboratoire est la découverte et la compréhension de nouveaux phénomènes physiques et leur utilisation dans des dispositifs appliqués innovants.

Cette thèse s'inscrit dans cet état d'esprit. Le but est de démontrer la faisabilité d'une nouvelle technique d'écriture de mémoire magnétorésistive à accès direct MRAM

---

(pour Magnetic Random Access Memory) combinant assistance thermique, couple de transfert de spin, et matériaux à anisotropie perpendiculaire. L'objectif de cette thèse est donc double : mieux comprendre les mécanismes physiques nécessaires au fonctionnement de ce nouveau type de mémoire, et également apporter des solutions pratiques aux problèmes rencontrés pour démontrer la validité du concept.

Dans le chapitre 1, le lecteur trouvera les bases nécessaires à la compréhension de ce manuscrit, en particulier les méthodes de caractérisation magnétique utilisées et quelques bases sur le magnétisme, l'anisotropie perpendiculaire et le transport dépendant du spin. Une brève description des différents types de mémoires MRAM est également présente dans ce chapitre, et le nouveau concept étudié dans cette thèse sera détaillé. Les chapitres 2 et 3 présenteront quant à eux la fabrication de matériaux magnétiques à aimantation perpendiculaire : les multicouches cobalt/métal non magnétique et les alliages cobalt-terbium, qui sont à la base de la fabrication de jonctions tunnel magnétiques à aimantation perpendiculaire, détaillée dans le chapitre 4. Ce chapitre expose les étapes clés pour obtenir une jonction présentant à la fois des caractéristiques électriques et magnétiques satisfaisantes pour les applications MRAM. Le chapitre 5 est consacré à l'étude de la variation thermique de l'anisotropie magnétique et le développement d'électrodes dites à "basculement d'anisotropie", caractéristique essentielle pour le nouveau concept qui fait l'objet de cette thèse. Enfin, la validité du concept sera démontrée dans le chapitre 6. En particulier, il est montré que la consommation à l'écriture est fortement réduite grâce à la nouvelle méthode d'écriture, ouvrant la voie à la fabrication de mémoires MRAM à forte densité de stockage et faible consommation.

# Chapitre 1

## Introduction : le magnétisme, la spintronique et les MRAM

### 1.1 Les matériaux magnétiques

#### 1.1.1 Quelques notions de magnétisme

La découverte des propriétés magnétiques de certains matériaux remonte à l'antiquité, de nombreuses références à des pierres attirant le fer ont été découvertes que ce soit en Chine ou en Grèce. Bien que des théories permettant de décrire correctement l'aimantation d'un matériau sont longtemps restées hors de portée des physiciens, des applications liées au magnétisme ont rapidement été mises en oeuvre. De ce point de vue, la fabrication de boussoles rudimentaires à partir de cuillères taillées dans de la magnétite en Chine aux alentours de -200 av. JC a vraisemblablement été la première utilisation technique de propriétés magnétiques. Il aura cependant fallu attendre la fin du XIX<sup>e</sup> siècle pour voir apparaître des études théoriques permettant de décrire qualitativement et quantitativement les matériaux magnétiques. Ces études ont servi de base à la fabrication de nombreuses applications industrielles telles que les aimants permanents, des capteurs, des concentrateurs de flux magnétique et bien d'autres.

Le magnétisme d'un matériau est porté par chacun de ses atomes. Dans ces atomes, les électrons sont les principaux responsables de l'apparition d'un moment magnétique, le moment magnétique du noyau étant 3 ordres de grandeur plus faible. Chaque électron gravitant autour du noyau peut être vu comme une boucle de courant induisant un moment magnétique. Ces trajectoires, ou orbitales, sont quantifiées, et le moment magnétique associé projeté le long de l'axe de quantification  $z$  peut prendre  $2l+1$  valeur :

$$\vec{\mu}_{orb} = -\mu_B \vec{l} \quad (1.1)$$

où  $\mu_B$  est le magnéton de Bohr. La somme des moments orbitaux de chaque électron  $\vec{l}_i$  donnent un moment magnétique orbital associé  $\vec{L}$ . Le spin de l'électron donne une seconde contribution au magnétisme de l'atome. La projection de ce moment magnétique

ne peut prendre que deux valeurs le long de  $z$  :

$$\mu_{spin}^z = \pm \mu_B \quad (1.2)$$

De même que pour le moment orbital, la somme des spins de électrons donne un moment magnétique de spin  $\vec{S}$ . La somme du moment magnétique orbital et du moment magnétique de spin donne le moment magnétique  $\vec{\mu}$  porté par l'atome. Cette somme dépend du remplissage de chaque sous-couche, régi par les règles de Hund et de Pauli. Il faut noter que les sous-couches pleines ( $J=0$ ) ne participent pas au magnétisme car dans ce cas tous les moments magnétiques se compensent. Dans le cas où des sous-couches ne sont pas remplies, l'atome est magnétique. C'est le cas pour 79 éléments purs.

Un matériau constitué d'atomes magnétiques n'est cependant pas forcément magnétique. En effet, les moments portés par chaque atome au sein de la matière peuvent être ordonnés (ferromagnétisme, antiferromagnétisme, ferrimagnétisme...) ou désordonnés (paramagnétisme). Cet ordre dépend de l'énergie d'interaction entre deux moments :

$$E_{ij} = -J_{ij} \vec{\mu}_i \vec{\mu}_j \quad (1.3)$$

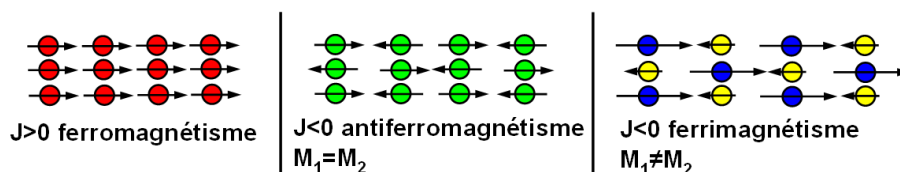


FIGURE 1.1 – Les trois types d'ordre magnétique les plus courants : ferromagnétisme, antiferromagnétisme et ferrimagnétisme.

Lorsque cette énergie de couplage est supérieure à l'énergie d'agitation thermique, le matériau est ordonné et donc magnétique. Il est ferromagnétique si la constante de couplage  $J_{ij}$  est positive, et antiferromagnétique ou ferrimagnétique si elle est négative. Lorsque l'énergie thermique est supérieure à cette énergie de couplage, ou si tout simplement il n'y a pas de couplage entre moments magnétiques, le matériau est paramagnétique. La température de Curie est la température pour laquelle l'ordre d'un matériau ferromagnétique disparaît. Pour un matériau ordonné, il est possible de définir l'aimantation du système comme étant la somme des moments de chaque atome divisée par le volume total de l'échantillon. L'aimantation à saturation est l'aimantation de l'échantillon lorsque tous les moments sont alignés. Cette grandeur dépend de la température.

Il existe deux types de matériaux ferromagnétiques distincts : les matériaux dont le magnétisme provient d'atomes possédant un moment magnétique produit par des électrons localisés, comme c'est le cas pour les électrons 4f des terres rares, et les matériaux dont le magnétisme provient d'électrons délocalisés, comme c'est le cas pour les métaux



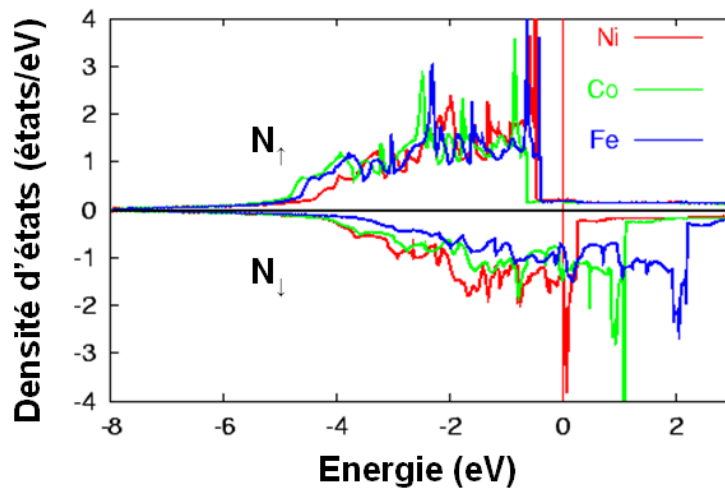


FIGURE 1.2 – Calcul de la densité d'états du fer, du nickel et du cobalt pour les électrons de spin up et down. Le magnétisme de ces métaux de transition est induit par le décalage en énergie des deux sous-bandes. D'après [4].

de transition 3d. Dans ce second cas, la structure électronique du système est modélisée par des bandes plutôt que par des orbitales. Il est possible de séparer les bandes en deux sous-bandes selon l'état de spin des électrons. Un matériau est ferromagnétique s'il y a un décalage en énergie de ces deux sous-bandes (figure 1.2). Ce décalage provient du principe d'exclusion de Pauli : deux électrons de spin opposé se repoussent plus que deux électrons de spin identique car deux électrons de même spin ne peuvent se retrouver dans le même état. Il est possible de modéliser cet effet par une énergie répulsive de grandeur  $U$ . Le système répartira les électrons de façon à minimiser la somme de l'énergie cinétique et de l'énergie de répulsion entre deux électrons. La situation stable peut être d'avoir deux sous-bandes symétriques, ou au contraire d'avoir un décalage entre les deux sous-bandes. Cela dépend des valeurs de la densité d'état au niveau de Fermi  $N(E_F)$  et de  $U$ . Le critère de Stoner indique qu'un matériau est ferromagnétique si  $UN(E_F) > 1$ . Ces matériaux sont donc ceux qui ont une grande densité d'état au niveau de Fermi. L'asymétrie en spin de la densité d'états se traduit par une différence de population des deux catégories de spin  $N_{\uparrow} - N_{\downarrow}$ , donnant un moment magnétique  $(N_{\uparrow} - N_{\downarrow})\mu_B$ . Bien que les électrons 3d soient délocalisés, la modélisation du magnétisme des métaux de transitions par une assemblée de moments localisés peut dans certains cas donner un accord correct avec l'expérience.

Il existe également une catégorie de matériau appelés diamagnétiques pour lesquels aucune contribution magnétique n'est détectable. Seule la signature des courants induits par un champ magnétique (d'habitude masquée par les contributions magnétiques) est détectable. Ces courants produisent un champ magnétique s'opposant au champ qui les a créés. Le signal magnétique de tels matériaux est une droite ne saturant jamais et de

penne négative. Le cuivre ou le silicium sont des matériaux diamagnétiques.

### 1.1.2 L'anisotropie magnétique

Les échantillons magnétiques peuvent présenter des directions préférentielles d'aimantation. Ce phénomène est appelé anisotropie magnétique. Le contrôle de cette anisotropie est crucial pour la conception d'application utilisant des propriétés magnétiques. Dans le cas du stockage de l'information, les matériaux utilisés doivent présenter deux positions stables en l'absence de perturbation extérieure, et ceci peut se réaliser si un axe d'anisotropie est induit dans le matériau. L'énergie volumique du système peut s'écrire :

$$E = -K^{eff} \cos^2(\theta) \quad (1.4)$$

où  $\theta$  est l'angle entre l'aimantation et l'axe d'anisotropie et  $K^{eff}$  est la constante d'anisotropie effective. Cette constante donne la barrière d'énergie à franchir pour faire passer l'aimantation d'une position stable à l'autre et permet de déterminer la stabilité d'un aimant vis à vis des fluctuations thermiques. Les standards de l'industrie des mémoires non-volatiles imposent que cette stabilité soit suffisamment importante pour que le taux de retournement dû aux fluctuations thermiques soit inférieure à  $10^{-12}$  sur une durée de 10 ans. Ce critère peut s'écrire  $K^{eff}V > 50k_B T$ , où  $k_B$  est la constante de Boltzmann,  $V$  le volume magnétique et  $T$  la température du système.  $K^{eff}V$  est la hauteur de barrière à franchir pour passer d'une configuration stable à l'autre. Cette constante d'anisotropie peut être calculée à partir des mesures de cycle magnétique effectuées parallèlement et perpendiculairement à l'axe d'anisotropie.

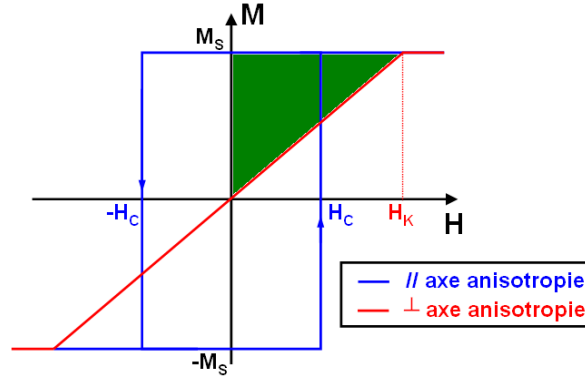


FIGURE 1.3 – Mesure de l'aimantation en fonction du champ magnétique  $H$  appliqué parallèlement (en bleu) et perpendiculairement (en rouge) à l'axe d'anisotropie. L'énergie d'anisotropie effective  $K^{eff}$  est égale à l'aire en vert.

Une mesure d'aimantation parallèle à l'axe d'anisotropie donnera en général un cycle d'hystérésis, tandis qu'un cycle mesuré perpendiculairement à cet axe donnera une variation linéaire de l'aimantation, saturant à  $M_S$  au champ d'anisotropie  $H_K$ . Il convient

cependant de garder à l'esprit que plusieurs axes d'anisotropies peuvent coexister. Un matériau peut également être isotrope, et dans ce cas le cycle obtenu ne dépend pas de la direction de champ appliqué, donnant un cycle ouvert ou fermé selon les cas. L'anisotropie effective  $K^{eff}$  peut être calculée à partir de ces mesures en calculant l'aire coloriée en vert sur la figure 1.3. La différence d'énergie du système entre la situation où l'aimantation est saturée selon l'axe de facile aimantation et la situation où l'aimantation est saturée selon l'axe de difficile aimantation vaut par définition l'énergie d'anisotropie  $K^{eff}$ . Cette énergie peut également se calculer à partir des travaux :

$$K = \Delta E = \int_{perp}^{para} \delta W = \int_{M(H=0)}^{M_S, para} \delta W - \int_{M(H=0)}^{M_S, perp} \delta W \quad (1.5)$$

Le travail nécessaire pour aimanter sous champ le système de  $M(H=0)$  à  $M = M_S$  vaut  $W = \int_0^{M_S} H \delta M$ . Ce travail est égal à l'aire comprise entre l'axe des ordonnées, la ligne  $M = M_S$  et la courbe d'aimantation. La différence des aires obtenues pour les mesures en champ parallèle et perpendiculaire à l'axe d'anisotropie est donc égale à la constante d'anisotropie. Dans le cas où le cycle d'aimantation mesuré selon l'axe facile est 100% rémanent et que la courbe d'aimantation mesurée selon l'axe difficile suit bien une loi linéaire (cas d'une anisotropie uniaxiale), cette aire est un triangle, et l'anisotropie est alors égale à  $K^{eff} = H_K M_S / 2$ .

### 1.1.3 Les couches minces magnétiques, matériaux à aimantation perpendiculaire

Dans le cadre des technologies de stockage de l'information, les matériaux magnétiques utilisés sont fabriqués en couches minces. Plusieurs techniques permettent d'obtenir de telles couches, mais le principe reste le même : un matériau magnétique est déposé sur un substrat, son épaisseur étant bien inférieure à ses dimensions latérales. Typiquement, l'épaisseur de la couche déposée varie de quelques Å à quelques  $\mu\text{m}$ . Il existe plusieurs techniques de dépôt de couches minces présentant chacune ses propres inconvénients et avantages : dépôt par épitaxie par jets moléculaires, évaporation, pulvérisation cathodique, etc... Cette dernière méthode présente l'avantage d'être adaptée aux standards de l'industrie, et sera détaillée dans la suite de ce chapitre.

Les matériaux magnétiques sous forme de couches minces vont présenter des caractéristiques physiques pouvant être très différentes du matériau massif. Dans de telles structures, les effets d'interface vont être prépondérants, et il devient possible de faire apparaître de nouvelles propriétés impossibles à obtenir dans un matériau massif. Une catégorie de couches minces magnétiques présente des propriétés particulièrement intéressantes pour les applications spintroniques, il s'agit des matériaux dits à "aimantation perpendiculaire". L'aimantation est dite perpendiculaire lorsque l'axe de facile aimantation est perpendiculaire au plan des couches. Cette situation est défavorable d'un point de vue magnétostatique, l'aimantation étant tirée dans la direction de la plus grande

dimension de l'échantillon par le champ démagnétisant (ce concept sera expliqué plus en détails dans le chapitre 2). Cependant, en jouant sur les matériaux mis aux interfaces de la couche magnétique ou avec sa structure cristalline, il est possible d'induire une anisotropie perpendiculaire supérieure à l'énergie magnétostatique, et d'obtenir une aimantation hors du plan. Cette configuration a de nombreux avantages pour les applications de stockage de l'information. En particulier, l'énergie d'anisotropie  $K^{eff}$  de tels matériaux est en général bien supérieure à celle des matériaux à aimantation planaire, ce qui permet de fabriquer des dispositifs plus stables et plus petits. D'autre part, l'aimantation pointant hors du plan, elle n'est plus sensible à la forme latérale du matériau, tant que l'épaisseur de la couche reste bien inférieure à ses dimensions latérales. Les dispositifs submicroniques fabriqués par gravure d'une couche continue sont ainsi moins sensibles aux défauts géométriques engendrés durant la fabrication.

De nombreux matériaux présentant un tel axe d'anisotropie ont été développés par le passé et sont utilisés dans diverses applications (disques durs, enregistrement magnéto-optique, mémoires MRAM, oscillateurs, etc...). Citons en particulier les multicouches métalliques type (Co/Pt), (Co/Pd) ou (Co/Ni) qui seront étudiées dans le chapitre 2, les alliages terre rare-métal de transition présentés dans le chapitre 3, les alliages présentant un ordre  $L1_0$  (FePt, FePd, CoPt ou CoPd)[1] ou les semiconducteurs ferromagnétiques type  $Ga_xMn$ [3]. Enfin, l'anisotropie induite aux interfaces métal magnétique/oxyde, présentée plus en détail dans la référence [2] est également un phénomène permettant la fabrication de matériaux à aimantation perpendiculaire, qui sont de plus tout à fait adaptés aux jonctions tunnel magnétiques.

## 1.2 Couplages dans les multicouches magnétiques

Dans les matériaux magnétiques massifs, le couplage entre moments magnétiques se fait à l'échelle atomique par interaction d'échange, de super échange ou dipolaire. Dans une structure multicouche, de nouveaux types d'interaction peuvent apparaître. En particulier, si deux matériaux magnétiques sont séparés par une couche non magnétique, un couplage peut apparaître à travers cette couche sous certaines conditions.

### 1.2.1 Couplage direct par trou d'épingle

Dans un empilement multicouche, il est parfois difficile d'obtenir une croissance plan par plan des couches déposées. Des défauts peuvent alors apparaître dans ces structures, et en particulier, si une couche est trop fine, il peut apparaître des discontinuités. Dans un empilement FM/NM/FM où FM est un ferromagnétique et NM un matériau non magnétique, une discontinuité dans la couche NM conduit à l'établissement d'un contact direct entre les deux couches magnétiques appelé trou d'épingle. Ce contact direct conduit donc à un couplage ferromagnétique des deux couches magnétiques. La présence et la densité de défauts dans la couche NM dépend beaucoup des conditions de fabrication du matériau et de la rugosité des couches sur laquelle elle est déposée.

### 1.2.2 Couplage de Néel ou peau d'orange

La rugosité d'un empilement FM/NM/FM peut également engendrer un couplage au travers de l'espaceur NM même sans contact direct entre les deux couches magnétiques. Ce mécanisme décrit par Néel[5] est d'origine dipolaire. Dans une structure multicouche où la rugosité des interfaces est corrélée d'une interface à l'autre, des charges magnéto-statiques apparaissent aux interfaces et interagissent. Ce phénomène donne naissance à un couplage ferromagnétique. Pour une rugosité de forme sinusoïdale de hauteur  $h$  et de période  $L$  (voir figure 1.4), le couplage  $J$  s'effectuant à travers l'espaceur d'épaisseur  $t_{NM}$  peut s'écrire en unités S.I. :

$$J = \frac{\pi^2}{\sqrt{2}} \frac{h^2}{L} \mu_0 M_S^2 \exp\left(-2\pi\sqrt{2}\frac{t_{NM}}{L}\right) \quad (1.6)$$

où  $M_S$  est l'aimantation à saturation des couches FM.

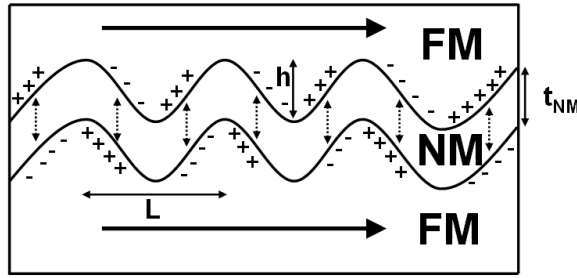


FIGURE 1.4 – Représentation du mécanisme de couplage peau d'orange. La rugosité corrélée entre les deux interfaces FM/NM crée des charges magnéto-statiques qui induisent un couplage ferromagnétique.

### 1.2.3 Couplage RKKY

Dans un empilement FM/NM/FM, il peut y avoir un couplage d'échange même en l'absence de défauts structuraux. Ce couplage résulte d'une polarisation des électrons de la couche NM au contact des couches magnétiques. Dans un matériau non magnétique massif, une impureté magnétique va polariser les électrons de conduction du matériau non magnétique dans son voisinage : il va y avoir un déséquilibre des densités d'électrons de spin up et spin down. Cette polarisation oscille avec une période  $2k_F$  (où  $k_F$  est le vecteur d'onde de Fermi) et s'atténue en  $1/r^3$  où  $r$  est la distance par rapport à l'impureté. Ces oscillations sont dites de Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida[6, 7, 8]. Si deux impuretés magnétiques sont présentes dans le matériau non magnétique, l'interaction entre les deux ondes de polarisation va coupler indirectement les deux moments magnétiques, ferromagnétiquement ou antiferromagnétiquement selon la distance qui les sépare. Dans le cas de multicouches FM/NM/FM le même type d'interaction est présent. Les couches

magnétiques induisent une polarisation oscillante des électrons de conduction de NM. Le couplage entre les deux couches magnétiques oscille avec l'épaisseur de NM  $t_{NM}$ . Cette interaction peut être modélisée par une formule simple décrivant les oscillations :

$$J = \frac{J_0}{t_{NM}^2} \sin^2(2k_F t_{NM} + \phi) \quad (1.7)$$

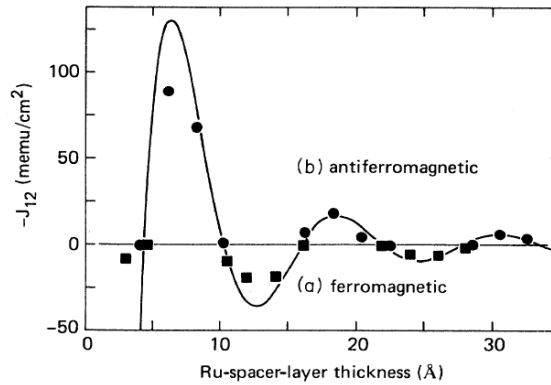


FIGURE 1.5 – Couplage RKKY mesuré sur une tricouche CoNi/Ru/CoNi. D’après Parkin et al. [9].

Ce genre d’empilement est une brique de base essentielle dans les jonctions tunnel. En effet, l’utilisation de tricouches FM/NM/FM présentant un couplage antiferromagnétique permet de diminuer fortement les champs magnétiques rayonnés dans des structures submicroniques. En effet, dans la configuration antiparallèle, le champ rayonné par une couche est fortement réduit par le champ rayonné par la seconde couche.

### 1.2.4 Couplage dipolaire

Un moment magnétique produit un champ magnétique  $H$  qui rayonne dans tout l’espace. Lorsque plusieurs moments magnétiques sont présents, l’interaction entre les moments et les champs rayonnés va donner lieu à un couplage dipolaire entre ces moments. L’énergie de couplage  $E_{dip}$  entre deux moments  $i$  et  $j$  peut s’exprimer comme :

$$E_{dip} = -\frac{\mu_0}{4\pi r_{ij}^3} [3(\vec{m}_i \cdot \vec{e}_{ij})(\vec{m}_j \cdot \vec{e}_{ij}) - \vec{m}_i \cdot \vec{m}_j] \quad (1.8)$$

où  $\vec{e}_{ij}$  est le vecteur unité parallèle à la droite reliant les dipôles  $\vec{m}_i$  et  $\vec{m}_j$  qui sont distants de  $r_{ij}$ . Dans le cas de deux couches minces continues et monodomaines, l’interaction dipolaire résultante entre les deux couches est négligeable. En effet les charges magnétostatiques en bord de couches sont repoussées à l’infini et l’interaction est donc négligeable. Ceci n’est plus vrai si l’aimantation est en domaine, car les champs rayonnés

par les dipôles en bord de domaine ou dans les parois de domaines ne sont plus compensés. De même, dans des dispositifs magnétiques submicroniques, les effets de bords deviennent mesurables, et les champs rayonnés par les bords d'un empilement de couches magnétiques vont coupler magnétostatiquement les différentes couches magnétiques.

### 1.3 Caractérisation magnétique

De nombreuses méthodes de mesure ont été développées pour mesurer le magnétisme d'échantillons de plus en plus petits. Il est possible de distinguer deux catégories distinctes d'appareils de mesures : ceux qui mesurent directement le moment magnétique de l'échantillon (SQUID et VSM), et ceux qui utilisent des effets magnéto-optiques ou magnéto-électriques pour sonder le magnétisme d'un matériau. Dans la suite, quatre méthodes de caractérisation magnétiques utilisées dans cette thèse seront présentées.

#### 1.3.1 Le magnétomètre à échantillon vibrant

Ce magnétomètre (VSM pour "vibrating sample magnetometer") permet de mesurer directement l'aimantation d'un échantillon en fonction du champ appliqué. Un échantillon magnétique est placé sur une canne porte-échantillon, qui est mise en translation linéaire à une fréquence précise (typiquement 10 Hz). La mesure du courant créé dans les bobines de mesure par la variation de flux due à cette vibration permet de remonter à la valeur du moment magnétique de l'échantillon. Le courant induit dans la bobine est filtré par l'électronique de mesure pour ne sélectionner que la fréquence de vibration de l'échantillon, ce qui permet de réduire énormément le bruit dû aux perturbations extérieures.

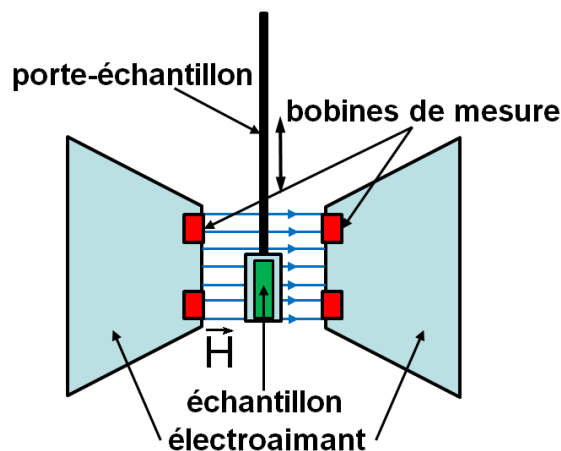


FIGURE 1.6 – Schéma de fonctionnement d'un VSM.

Les mesures effectuées sont relativement sensibles (de l'ordre de  $10^{-5}$  emu) et rapides (de l'ordre de 10 s par point). L'avantage de cet appareil est de pouvoir effectuer des cycles d'hystérésis avec un champ magnétique pouvant être appliqué dans toutes les directions de l'échantillon jusqu'à 17000 Oe. Il est alors possible de remonter aux valeurs du champ coercitif, du champ d'anisotropie et de l'aimantation volumique. Cependant, cette méthode a le désavantage de mesurer également la contribution du porte-échantillon. Cette contribution peut se soustraire : la canne étant selon les cas diamagnétique ou paramagnétique, elle donne un signal linéaire en fonction du champ appliqué. Pour des échantillons peu magnétiques, il convient d'utiliser un moyen de mesure plus sensible, en particulier pour les mesures de champ d'anisotropie pour lesquelles il n'y a pas de saut d'aimantation, la saturation pouvant être difficile à extraire du signal du porte-échantillon.

### 1.3.2 Le magnétomètre à SQUID

Ce magnétomètre est le détecteur de champ magnétique le plus sensible qui existe. De même que pour le VSM, le principe de mesure est d'induire un courant dans le détecteur par une variation de flux magnétique créée par la mise en translation de l'échantillon. Dans le cas du magnétomètre à SQUID, le détecteur est constitué de deux jonctions Josephson dans un anneau supraconducteur. Le principe de mesure repose sur deux phénomènes physiques : la quantification du flux dans l'anneau et l'effet Josephson.

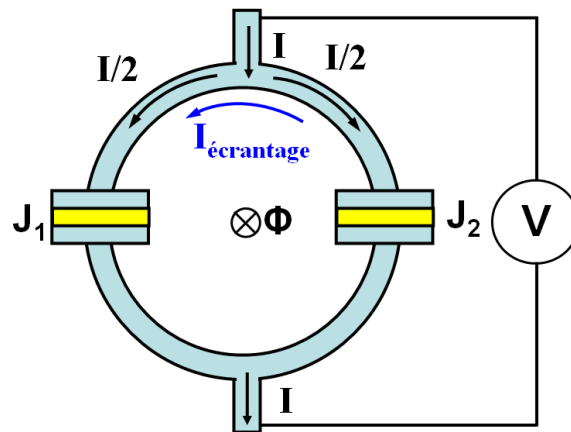


FIGURE 1.7 – Schéma de fonctionnement d'un SQUID. Un courant  $I$  est injecté dans un anneau supraconducteur dans lequel sont placées deux jonctions Josephson  $J_1$  et  $J_2$ . Lorsqu'un flux  $\Phi$  est appliqué, un courant  $I_{\text{écranage}}$  apparaît de telle sorte que le flux total soit un multiple du quantum de flux  $\Phi_0$ .

Dans un anneau supraconducteur, le flux magnétique ne peut exister que sous la



forme d'un multiple d'un quantum de flux  $\Phi_0$  valant  $h/2e = 2 \cdot 10^{-15}$  Weber,  $h$  étant la constante de Planck et  $e$  la charge de l'électron. C'est la quantification de cette valeur extrêmement faible qui donne une grande sensibilité au SQUID. La jonction Josephson est une jonction où une barrière tunnel sépare deux supraconducteurs. Un courant superfluide peut passer par effet tunnel à travers cette barrière sans différence de potentiel tant qu'il ne dépasse pas une valeur critique bien inférieure au courant critique du supraconducteur.

En l'absence de champ magnétique, l'injection d'un courant  $I$  dans le SQUID va se séparer en deux courants égaux  $I/2$  dans chacune des boucles. Si un champ magnétique est appliqué au sein de la boucle, un courant  $I_{\text{écranage}}$  va se créer de telle façon que le flux total devienne un multiple de  $\Phi_0$ . En injectant un courant légèrement supérieur au courant critique des jonctions Josephson, une tension peut être mesurée aux bornes du SQUID. Cette tension est une fonction périodique du flux magnétique appliqué, possédant une période égale au quantum de flux. La variation de tension est donnée par la loi d'Ohm et est reliée à la variation de flux par :  $\Delta V = (R/L)\Delta\Phi$ , où  $L$  est l'auto inductance de l'anneau.

Dans la pratique, la variation de flux est obtenue en effectuant une translation linéaire de l'échantillon à une fréquence de 1 Hz. La sensibilité est de l'ordre de  $10^{-7}$  emu. Comme le système doit être refroidi à l'hélium liquide pour la boucle de mesure supraconductrice, une bobine supraconductrice est également installée et permet d'appliquer des champs pouvant atteindre 50 kOe. Les mesures peuvent se faire de 2 à 400 K, mais ces dernières sont particulièrement longues car l'échantillon vibre à une faible fréquence (Il faut environ 5 minutes pour mesurer un point).

### 1.3.3 Les mesures d'effet Hall extraordinaire

L'effet Hall ordinaire est une manifestation classique de la force de Lorentz s'exerçant sur des électrons. En présence d'un champ magnétique, un courant d'électrons sera dévié perpendiculairement à sa direction et à la direction du champ, faisant apparaître une tension dite tension de Hall transverse à la direction du courant et au champ  $B$ . Dans les matériaux magnétiques, une contribution supplémentaire apparaît dite d'effet Hall extraordinaire (EHE). Pour un matériau magnétique d'épaisseur  $t$ , d'aimantation  $M_S$  et soumis à une induction magnétique  $B$ , la tension de Hall peut s'écrire :

$$V^{\text{Hall}} = V^{\text{ord}} + V^{\text{EHE}} = \lambda_{\text{ord}} \frac{i}{t} B \cos(\alpha) + \mu_0 \lambda_{\text{EHE}} \frac{i}{t} M_S \cos(\theta) \quad (1.9)$$

où  $\lambda_{\text{ord}}$  est le coefficient d'effet Hall ordinaire,  $\lambda_{\text{EHE}}$  le coefficient d'effet Hall extraordinaire, et  $i$  l'intensité du courant appliqué. Les angles  $\alpha$  et  $\theta$  sont définis sur la figure 1.8. En général, l'effet Hall extraordinaire est grand devant l'effet Hall ordinaire.  $V_{\text{ord}}$  apparaît comme une pente ne saturant jamais qui peut être soustraite de la mesure.

Cette méthode de mesure est particulièrement adaptée aux couches minces à aimantation perpendiculaire car elle n'est sensible qu'à la composante hors du plan de l'aimantation. Cependant, si la proportion de couches magnétiques est faible devant

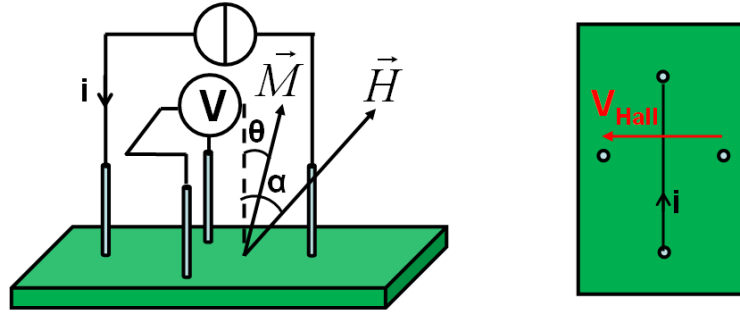


FIGURE 1.8 – Géométrie de mesure d'effet Hall extraordinaire.

celle des autres couches métalliques, le signal d'EHE peut être difficile à détecter car une partie importante du courant sera dérivée dans les couches non magnétiques. Des mesures peuvent être effectuées dans le plan des couches, en particulier pour mesurer le champ d'anisotropie. Dans ce cas la composante planaire peut être retrouvée à partir de la composante perpendiculaire mesurée :

$$m_{plan} = \sqrt{1 - \frac{R(H)}{R_{EHE}}} \quad (1.10)$$

Il n'est pas possible de mesurer directement l'aimantation d'une couche avec cette méthode, en particulier parce que la résistance de Hall dépend de nombreux paramètres intrinsèques au matériau et parce qu'une partie du courant est toujours dérivée dans les couches tampons et de couverture. Il faut également noter que si la géométrie de mesure n'est pas parfaite, en particulier s'il y a un décalage angulaire entre la perpendiculaire à la direction du courant appliqué et la direction de la mesure de la tension de Hall, il apparaît une contribution parasite de magnétorésistance anisotrope.

### 1.3.4 Les mesures magnéto-optique d'effet Kerr polaire

L'effet Kerr polaire est un effet magnéto-optique en réflexion. Un faisceau de lumière polarisée rectilignement (polarisation p) est envoyé en incidence normale sur une surface aimantée. Après réflexion, la polarisation du faisceau a tourné d'un angle  $\theta_K$  (typiquement inférieur au degré), et une ellipticité apparaît. La rotation de la polarisation est proportionnelle à la composante perpendiculaire au plan de la couche (en première approximation), et est inversée quand l'aimantation est renversée. Cet effet peut être mis à profit pour mesurer des échantillons à aimantation perpendiculaire. Le banc de mesure est décrit en figure 1.9.

La source laser utilisée ici est un laser hélium-néon émettant en continu une onde de 632 nm polarisée p par une lame placée à l'angle de Brewster incluse dans le laser. Le

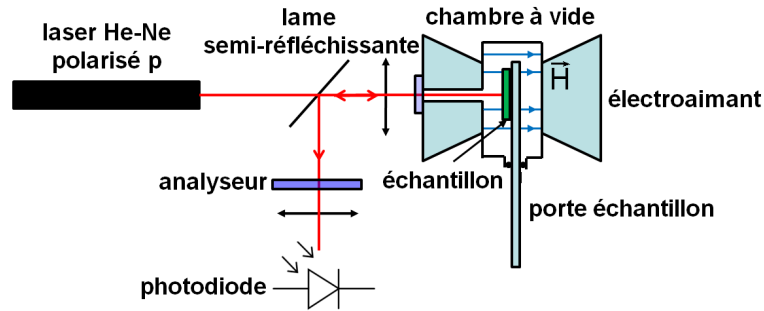


FIGURE 1.9 – Schéma du dispositif de mesure d'effet Kerr polaire.

faisceau est transmis à travers une lame semi-réfléchissante et un électroaimant (permettant d'appliquer un champ magnétique de 7 000 Oe) jusqu'à l'échantillon. Le faisceau réfléchi par la couche mince suit le trajet inverse de l'onde incidente jusqu'à la lame semi-réfléchissante où une partie du faisceau est réfléchi vers un polariseur analyseur présentant un axe perpendiculaire à l'axe de polarisation du faisceau incident, de telle sorte qu'en l'absence de rotation Kerr l'intensité récoltée par la photodiode de mesure soit nulle. L'avantage d'une telle méthode est la sensibilité de la mesure (0,3 nm de cobalt peuvent être facilement détectés par effet Kerr), et l'absence de signal venant du substrat. Cependant, l'épaisseur de peau caractéristique des métaux à cette longueur d'onde est d'environ 20 nm, ce qui veut dire que les couches magnétiques mesurées ne doivent pas être recouvertes de plus de 20 nm de métal pour pouvoir être détectées. Pour la même raison, dans un empilement de plusieurs couches magnétiques, les couches les plus proches de la surface auront une contribution relative plus importante. Il est donc extrêmement compliqué de retrouver l'aimantation d'un matériau à partir de telles mesures. J'ai également conçu et installé à l'occasion de cette thèse une chambre à vide (permettant d'éviter l'oxydation des échantillons) et un porte échantillon chauffant permettant de faire des mesures en température jusqu'à 500°C sous une pression de  $10^{-3}$  mbar. Il est impossible de mesurer l'anisotropie d'un échantillon à aimantation perpendiculaire directement avec cette géométrie de mesure car le champ magnétique ne peut pas être appliqué dans le plan des couches.

## 1.4 Les dépôts par pulvérisation cathodique magnétron

La pulvérisation cathodique est une méthode de dépôt de couches minces. Le principe est d'utiliser un plasma froid pour pulvériser sur un substrat le matériau à déposer. L'ensemble des opérations se déroule dans une chambre à vide. Le vide de base est atteint par des pompes cryogéniques. Ce pompage permet d'avoir une atmosphère la plus propre possible pour éviter l'incorporation de particules contaminantes dans le dépôt.

La qualité des couches obtenues sera directement reliée à la qualité du vide limite obtenu, ce dernier valant typiquement de  $10^{-9}$  à  $10^{-6}$  mbar selon la qualité de la machine utilisée. Les matériaux cibles à pulvériser sont installés sur une cathode dans la chambre à vide, le substrat est fixé sur un bras permettant de le déplacer dans la chambre sous chaque cible. Lors du dépôt, un gaz neutre est introduit dans la chambre à vide (typiquement de l'argon, mais cela peut également être du krypton ou d'autres gaz nobles). Le plasma de gaz neutre va être créé en appliquant une différence de tension entre la cathode où est placée la cible et une contre-électrode située au dessus de cette cible. Le champ électrique attire les espèces positives du plasma vers la cible. La collision de ces espèces avec la cible va provoquer la pulvérisation du matériau sous forme d'espèces neutres qui vont se condenser sur le substrat. Un magnétron est installé dans la cathode. Ce magnétron permet de concentrer les électrons près de la surface de la cible. Ceux-ci ont une trajectoire hélicoïdale autour des lignes de champ et subissent donc plus de collisions que sans champ. Ce supplément de collisions crée une quantité supplémentaire d'ions argon. La vitesse de dépôt est ainsi augmentée, et le plasma peut être maintenu à une plus basse pression.

L'épaisseur de la couche est déterminée par le temps d'exposition du substrat au dessus de plasma. Un cache situé entre la cible et le substrat permet de contrôler ce temps d'exposition. La connaissance de la vitesse de dépôt du matériau et le contrôle du temps d'ouverture du cache permettent de fabriquer des couches d'épaisseur inférieure au nm. La vitesse et la qualité d'un dépôt dépendent principalement de la pression de travail, de la qualité du vide limite préalablement obtenu et de la qualité de la cible utilisée. La qualité du dépôt dépend également du mouillage de la couche en cours de dépôt sur la couche inférieure et de l'accord cristallographique de ces couches entre elles.

La vitesse de dépôt peut être contrôlée par la puissance du plasma utilisé, ainsi que par la pression de travail. Si la pression est trop faible, le nombre de collisions ions-cible est insuffisant pour avoir une pulvérisation efficace, alors que si la pression est trop forte, les atomes pulvérisés subissent des collisions avec les espèces du plasma et ne peuvent pas se condenser sur le substrat. Il existe une pression entre ces deux limites pour laquelle la vitesse de dépôt est maximale.

Dans le cas d'une cible isolante, l'accumulation de charges à la surface de la cible empêche la pulvérisation des espèces. Pour éviter cette accumulation de charges, la tension appliquée n'est plus continue mais alternative. Le signe de la polarisation anode-cathode est inversé à haute fréquence, cette fréquence étant adaptée par un boîtier d'accord d'impédance. Cette technique est utilisée par exemple pour le dépôt de barrières tunnel de MgO à partir d'une cible céramique.

Un oxyde peut également être fabriqué à partir de l'oxydation d'une couche métallique. Dans ce cas, le dépôt métallique est effectué dans la chambre de pulvérisation, puis l'oxydation se déroule sous atmosphère d'oxygène dans une chambre d'oxydation, préalablement mise sous vide pour limiter au maximum les contaminations. Le contrôle de la pression d'oxygène et du temps d'oxydation déterminera la qualité et la stoechiométrie de l'oxyde obtenu.

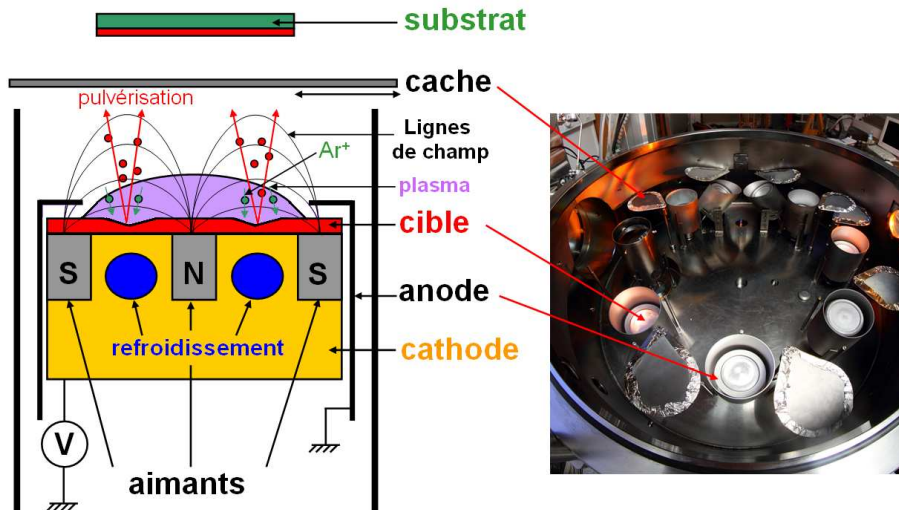


FIGURE 1.10 – A gauche : principe de la pulvérisation cathodique. A droite : photographie d'un bâti de dépôt par pulvérisation cathodique Plassys.

Dans la suite, sauf mention contraire, les dépôts seront effectués à partir d'une pression de base de  $10^{-7}$  mbar et avec une pression de travail de  $2 \cdot 10^{-3}$  mbar. Le gaz utilisé pour créer le plasma est l'argon, la vitesse de dépôt varie entre 0,03 et 0,2 nm/s, selon la puissance utilisée et l'élément pulvérisé. Ces vitesses sont étalonnées à partir de la mesure de l'épaisseur d'échantillons témoins par réflectivité de rayons X. Les substrats sont des plaques de silicium (001) oxydées thermiquement. Les dépôts seront notés  $A_{tA}/B_{tB}/\dots$  où A et B sont les éléments utilisés et  $t_A$  et  $t_B$  sont leur épaisseur nominale respective déposée en nm, l'empilement partant du substrat commence par le dépôt de A, puis B, etc. Le CoFeB utilisé dans la suite du manuscrit a une composition de 60% de cobalt, 20% de fer et 20% de bore.

## 1.5 Transport dépendant du spin

### 1.5.1 Diffusion dépendante du spin

Le transport dans un métal non magnétique est généralement décrit par un courant de charges négatives dans lequel le spin n'est pas pris en compte. Cependant, dans les matériaux ferromagnétiques, les propriétés électroniques sont différentes et ne peuvent être décrites par un modèle à un seul canal. En 1936, Mott propose un modèle à deux canaux[10] : les électrons dont le spin est parallèle à l'aimantation du matériau (électrons majoritaires) et les électrons dont le spin est antiparallèle à l'aimantation se propagent dans deux canaux distincts et en première approximation indépendants. Cette approche a été validée par Campbell et Fert dans des alliages de fer et de nickel présentant des

impuretés[11].

La section efficace de diffusion étant proportionnelle à la densité d'état au niveau de Fermi, il faut donc s'attendre à ce que les résistances associées aux deux canaux de conduction soient différentes pour un métal ferromagnétique puisque la densité d'état au niveau de Fermi de tels métaux dépend de la direction du spin.

### 1.5.2 La magnétorésistance géante

Suite à ces études sur la polarisation en spin des électrons de conduction dans les matériaux ferromagnétiques, des efforts de recherche ont été entrepris pour profiter de ce phénomène. L'amélioration des techniques de dépôt permettant de faire croître des couches de qualité sur des épaisseurs de l'ordre de grandeur de la longueur de diffusion de spin a été une étape essentielle pour mettre à profit les effets de polarisation en spin. La découverte de la magnétorésistance géante (GMR pour "giant magnetoresistance") par les équipes d'Albert Fert[13] et Peter Grünberg[14] a mis ainsi en relief la possibilité de changer la résistance d'une hétérostructure grâce à la polarisation des électrons par des couches ferromagnétiques. Les structures étudiées sont dans les deux cas des multicouches Fe/Cr (en multicouche répétées 40 fois pour A. Fert et une simple tricouche Fe/Cr/Fe pour P. Grünberg). Les couches de fer sont couplées antiferromagnétiquement au travers des espaceurs de chrome. A champ nul, deux couches de fer consécutives sont donc alignées antiparallèlement. Il est possible de casser ce couplage par l'application d'un champ magnétique : si l'énergie Zeeman associée à ce champ magnétique est plus forte que l'énergie de couplage à travers le chrome, alors les aimantations des couches de fer s'alignent parallèlement.

Une différence de résistance a été observée entre les deux configurations d'aimantation lorsqu'un courant est appliqué parallèlement au plan des couches comme présenté sur la figure 1.11 (Il existe également une différence de résistance lorsque le courant est appliqué perpendiculairement au plan des couches, cet effet ayant été démontré plus tard pour des raisons technologiques). Cet effet peut être expliqué par la conduction des électrons dans deux canaux de spins indépendants. Ces deux canaux ne présentent pas la même résistance car il y a une asymétrie de diffusion des électrons suivant leur spin au sein des couches magnétiques et de réflexion aux interfaces Fe/Cr. Dans le cas d'aimantations antiparallèles, le spin de l'électron importe peu, car il est parallèle à la moitié des couches et antiparallèle à l'autre moitié. Chaque canal de conduction présente alors la même résistance. Dans le cas d'aimantations parallèles, les électrons dont le spin est opposé à l'aimantation seront bien plus diffusés que ceux dont le spin est parallèle. Les deux canaux possèdent des résistances différentes, et il y aura comme un court-circuit à travers le canal de spins majoritaires, donnant une résistance globale plus faible que dans le cas précédent.

La magnétorésistance géante est alors définie par :  $GMR = (R^{AP} - R^P)/R^P$  où  $R^{AP}$  est la résistance de l'empilement dans la configuration antiparallèle et  $R^P$  celle dans l'état parallèle (définition dite "optimiste". Dans la version dite "pessimiste", la différence de résistance est divisée par la résistance antiparallèle). Ces structures ont



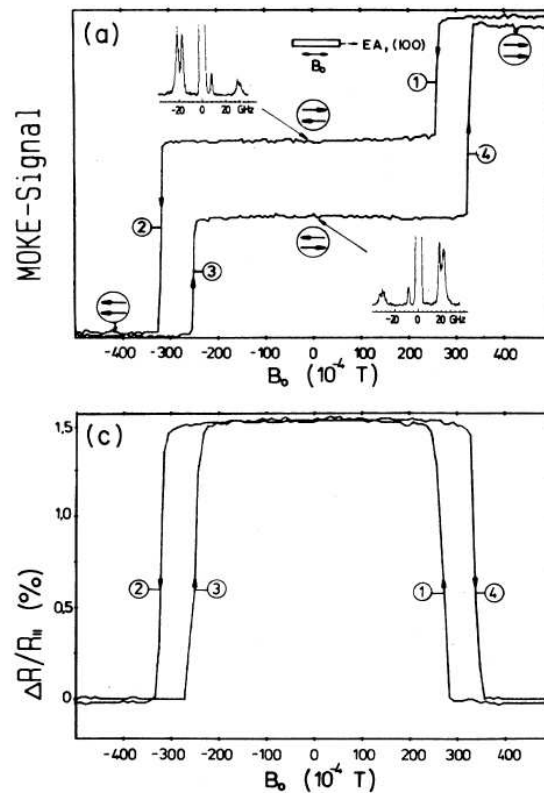


FIGURE 1.11 – En haut : cycle d’hysteresis mesuré par effet Kerr longitudinal d’une tricoche Fe/Cr/Fe. En bas : résistance de l’empilement en fonction de la configuration magnétique. D’après [14].

été utilisées comme base pour la fabrication de vannes de spin[15]. Dans ces structures, un espaceur de cuivre remplace le chrome, et du permalloy est utilisé comme électrode magnétique à la place du fer. Le couplage à travers le cuivre est très faible comparé au couplage à travers le chrome, et pour pouvoir obtenir deux configurations d’aimantations à champ nul, une des couches de permalloy est bloquée par échange avec du FeMn antiferromagnétique. Cette couche est dite "couche piégée", l’autre couche est la "couche libre". Ce dispositif permet de réaliser une tête de lecture de disque dur. Un bit du disque dur rayonne un champ magnétique selon lequel la couche libre s’aligne, alors que la couche piégée n’est pas affectée. La lecture de la résistance de la vanne de spin permet de connaître la direction du champ rayonné et donc de l’état du bit.

### 1.5.3 Polarisation en spin des électrons

Dans un métal ferromagnétique, l’asymétrie des densités d’états suivant le spin des électrons conduit à une différence de population entre électrons de spin up et électrons de

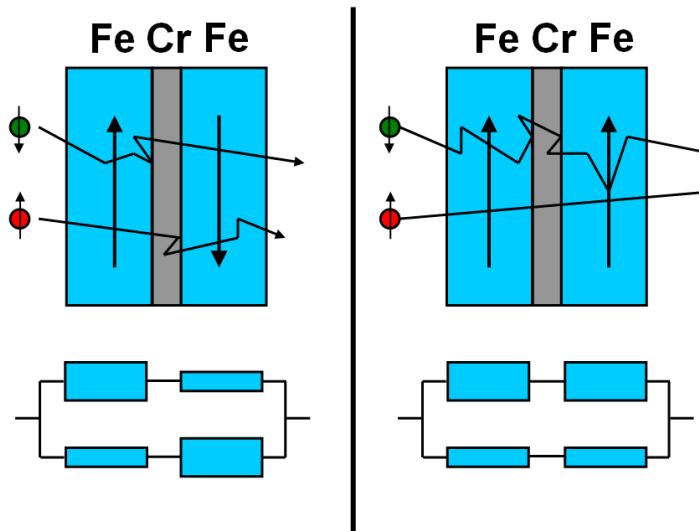


FIGURE 1.12 – En haut : schéma de principe de la magnétorésistance géante et de la diffusion dépendante du spin. En bas : schéma électrique équivalent.

spin down. Cette différence peut être vue comme une polarisation en spin des électrons. Tedrow et al. ont mesuré dans des jonctions ferromagnétique/isolant/supraconducteur (F/I/S) cette polarisation[12].

En l'absence de champ magnétique, le supraconducteur présente un gap  $2\Delta$ , ce qui se traduit par la présence d'un double pic sur le graphe 1.13 représentant la conductance de la jonction en fonction de la tension appliquée. Pour une tension assez grande, l'énergie de la bande de conduction du supraconducteur correspond au niveau de Fermi du ferromagnétique. En présence d'un champ magnétique, l'énergie Zeeman lève la dégénérescence des deux états de spin, la densité d'état étant séparée de  $\pm\mu H$  selon la direction du spin, où  $\mu$  est le moment magnétique de l'électron. En supposant que le transport à travers la barrière tunnel d'alumine conserve la direction du spin, une asymétrie d'intensité entre les différents pics (notés a, b, c et d) révèle la dépendance en spin de la densité d'état. Cette asymétrie est vérifiée sur la figure 1.14, ce qui démontre la polarisation en spin des électrons dans un métal ferromagnétique. La polarisation mesurée ici est de 7,5% ( $P = (\sigma_b - \sigma_a)/(\sigma_b + \sigma_a)$ , où  $\sigma$  est la conductance tunnel).

#### 1.5.4 La magnétorésistance tunnel

Bien avant la découverte de la magnétorésistance géante, en 1975, Jullière remarque que la résistance d'une tricolore Fe/GeOx/Co mesurée à 4,2 K dépend de la configuration d'aimantation de l'empilement[16]. La magnétorésistance tunnel (TMR pour "tunnel magnetoresistance") de ces jonctions, définie de la même façon que la GMR, vaut 14% à tension nulle. Le modèle développé pour rendre compte de cette TMR s'ins-



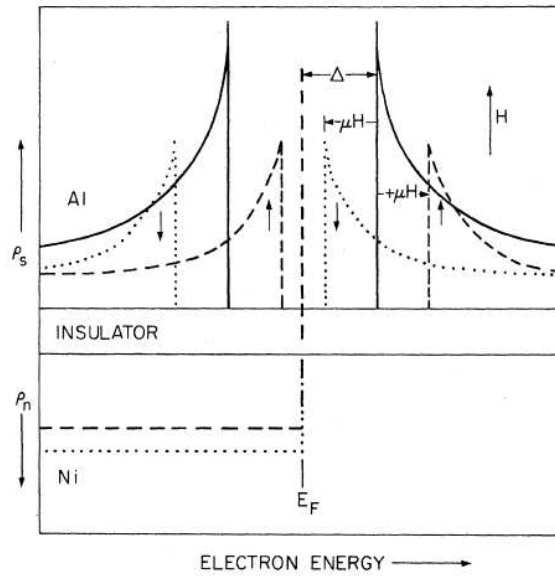


FIGURE 1.13 – Densité d'état de la jonction Al/AlO/Ni. En l'absence de champ magnétique, le supraconducteur présente un gap  $2\Delta$  (ligne continue). En présence d'un champ  $H$  (ligne pointillée), la densité d'état est séparée en une partie spin up et une partie spin down, décalées d'une énergie  $+\mu H$  et  $-\mu H$  respectivement. Il est supposé ici que les électrons de spin down sont majoritaires à la surface de Fermi du nickel. Tiré de [12].

pire des travaux de Tedrow et al.. La première hypothèse est que le spin de l'électron est conservé lors du transport tunnel. La seconde est que la probabilité de transmission des électrons à travers la barrière est proportionnelle à la densité d'états au niveau de Fermi dans l'électrode réceptrice. Le nombre d'électrons candidats au passage est lui-même proportionnel à la densité d'états au niveau de Fermi dans l'électrode émettrice. Le courant pour chaque canal de spin est donc proportionnel au produit des densités d'états au niveau de Fermi des deux électrodes. Or, dans les métaux ferromagnétiques, la densité d'état est différente pour les deux catégories de spins (ce qui crée par ailleurs le magnétisme du matériau). Dans le cas d'aimantations parallèles, la densité d'état au niveau de Fermi des électrons de spin majoritaire est importante dans l'électrode émettrice et dans l'électrode réceptrice, alors que la densité d'état au niveau de Fermi des électrons de spin minoritaire est faible dans les deux électrodes. Dans ce cas le courant est principalement dû au canal de spin majoritaire. Dans le cas d'aimantations antiparallèles, la densité d'état au niveau de Fermi des électrons de spin up ou down est faible soit dans l'électrode émettrice soit dans l'électrode réceptrice. Les deux canaux conduisent de façon équivalente, et globalement plus faiblement que dans le cas d'aimantations parallèles. De façon similaire à la magnétorésistance géante, l'asymétrie en spin des densités d'état conduit à une différence de résistance selon la configuration d'aimantation de la jonction.

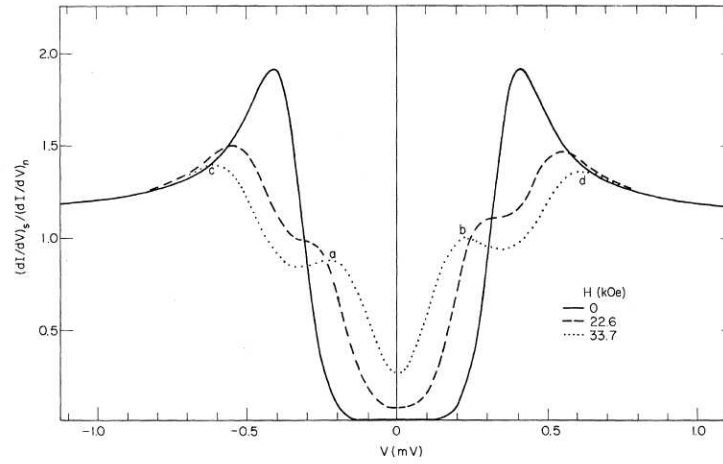


FIGURE 1.14 – Conductance normalisée de la jonction Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni en fonction de la tension appliquée et du champ magnétique extérieur. L’asymétrie des pics a, b, c et d à H=33,7 kOe résulte de la dépendance en spin des densités d’états. Tiré de [12].

La magnétorésistance tunnel vaut :

$$TMR = \frac{R_{AP} - R_P}{R_P} = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2} \quad (1.11)$$

où  $P_i$  est la polarisation de l’électrode  $i$ , valant :

$$P_i = \frac{D_i^\uparrow - D_i^\downarrow}{D_i^\uparrow + D_i^\downarrow} \quad (1.12)$$

avec  $D_i^j$  la densité d’état au niveau de Fermi de l’électrode  $i$  pour les électrons de spin  $j$ . Ce modèle permet de façon qualitative de comprendre le phénomène de magnétorésistance tunnel, mais ne permet de décrire les valeurs observées de magnétorésistance tunnel que dans des cas limites. De même, le signe de la polarisation des électrons ne peut être décrit dans tous les cas par ce modèle. Des avancées théoriques ont permis l’établissement de modèles plus complets. En particulier, Stearns a développé un modèle prenant en compte la structure de bande des électrodes magnétiques[18]. La polarisation des électrons est dans ce modèle proportionnelle au vecteur d’onde au niveau de Fermi plutôt qu’à la densité d’état. Pour compléter encore ce modèle, Slonczewski a montré que la nature de la barrière devait être prise en compte dans le calcul de la polarisation[19]. Si la magnétorésistance tunnel est restée pendant une vingtaine d’année un phénomène intéressant à étudier uniquement d’un point de vue fondamental, un très net regain d’intérêt pour les applications technologiques est apparu lorsque Moodera et al. et Miyazaki et al. ont pu observer une magnétorésistance tunnel conséquente à température ambiante[20, 21]. La TMR de la jonction CoFe/AlOx/Co atteint alors 11,8%. De nombreux développements ont permis d’obtenir des TMR de l’ordre de 80% à température

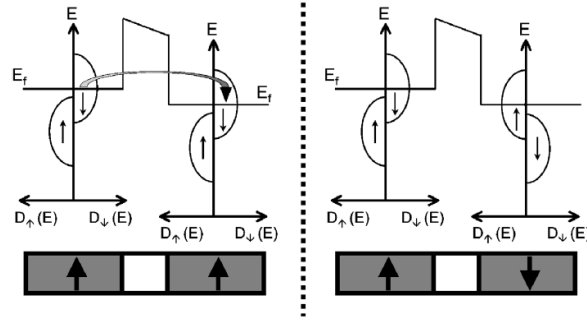


FIGURE 1.15 – Schéma de principe de la magnétorésistance tunnel dans le modèle de Jullière. Tiré de [17].

ambiante avec ces barrières d'alumine amorphes[22]. Une jonction tunnel magnétique doit vérifier certaines conditions pour pouvoir présenter une forte magnétorésistance tunnel :

- Deux configurations magnétiques (parallèle et antiparallèle) bien définies.
- Des interfaces électrode magnétique/isolant nettes.
- Une barrière isolante avec le moins de défauts possible, et possédant une affinité avec l'oxygène plus grande que les électrodes magnétiques pour éviter la migration de l'oxygène dans les électrodes.
- Des matériaux magnétiques polarisant fortement en spin les électrons.

Un recuit après dépôt permet en général de corriger certains défauts, en particulier de repomper l'oxygène dans la barrière et de lisser les interfaces, ce qui conduit en général à une augmentation de la magnétorésistance tunnel[23].

Un nouveau type de barrière permettant de filtrer les états de symétrie des états de Bloch a permis d'augmenter significativement la magnétorésistance tunnel. En 2001, Butler et al. ont calculé que des magnétorésistances tunnel de l'ordre de 1000% pouvaient être obtenues dans le système épitaxié Fe(100)/MgO(100)/Fe(100). Dans le fer orienté selon la direction (001), il existe quatre types de bandes électroniques, combinaisons linéaires d'orbitales atomiques s, p et d. Ces 4 bandes dénommées  $\Delta_1$ ,  $\Delta_2$ ,  $\Delta_{2'}$  et  $\Delta_5$  n'ont pas la même énergie selon l'état de spin des électrons (figure 1.16).

Il est remarquable que les électrons de symétrie  $\Delta_1$  n'existent au niveau de Fermi que pour les spins majoritaires. Le fer (100) est donc un demi métal au regard de cette symétrie. Dans une jonction tunnel magnétique Fe/MgO/Fe, comme la barrière possède la même symétrie que les électrodes magnétiques, il est possible de filtrer les électrons selon leur état de spin de façon très sélective. Le transport par effet tunnel doit se faire en conservant les symétries des électrons. Dans l'état parallèle, la conduction se fait essentiellement par le canal  $\Delta_1$ , alors que dans l'état antiparallèle, les électrons de symétrie  $\Delta_1$  de l'électrode émettrice ne peuvent trouver une symétrie équivalente dans l'électrode réceptrice et dans ce cas la conduction est dominée par le canal  $\Delta_5$ . Dans une telle structure, la différence de conduction entre les deux états d'aimantation peut

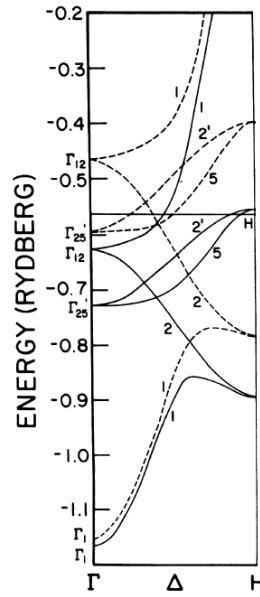


FIGURE 1.16 – Structure électronique du fer dans la zone  $\Gamma - \Delta - H$ . Les traits pleins représentent les spins majoritaires et les traits pointillés les spins minoritaires. Tiré de [25].

donc être très importante comparée au cas d'une barrière amorphe.

Peu après ces prédictions théoriques, de fortes magnétorésistances tunnel (de l'ordre de 200% à température ambiante) ont été mesurées expérimentalement dans des systèmes Fe/MgO/Fe [26] ou CoFe/MgO/CoFe [27]. Malheureusement, ces systèmes réalisés par épitaxie par jets moléculaires ne peuvent pas être réalisés à l'échelle industrielle. Ce problème a été résolu en utilisant des électrodes magnétiques de CoFeB et en recuisant la structure. Les électrodes de CoFeB sont amorphes après dépôt, et la barrière de MgO peut donc croître dans la structure cristalline qui lui convient, c'est à dire cubique centrée (cc) (001). Un recuit aux alentours de 300 à 350°C expulse le bore vers les couches adjacentes, le CoFeB cristallise alors en CoFe cc (001) au voisinage de la barrière tunnel et d'obtenir une jonction tunnel ayant une magnétorésistance supérieure à 100%. Il est important dans ce système que les électrodes de CoFeB cristallisent dans la symétrie cc (001), car c'est dans cette direction que les bandes du CoFeB présentent un caractère demi-métallique. Dans le cas où la direction cristallographique de l'électrode magnétique est différente, la magnétorésistance de l'empilement est diminuée [28, 29]. Il est alors essentiel de contrôler la cristallisation du CoFeB en choisissant judicieusement les matériaux en contact avec la couche magnétique. En effet, si un matériau cubique face centrée (cfc) (111) comme du cuivre est mis en contact avec la seconde interface du CoFeB, celui-ci ne cristallise pas dans la même structure que celle du MgO. Cet effet est expliqué par une cristallisation s'effectuant à partir des interfaces du CoFeB et in-

tervenant à différentes températures selon les matériaux mis en contact[29]. Malgré ces difficultés, ces systèmes ont permis d'améliorer significativement le signal des jonctions tunnel magnétiques, avec une évolution plus rapide que le développement des jonctions à base d'alumine (figure 1.17). Aujourd'hui des structures présentant des magnétorésistances tunnel de 600% à température ambiante ont été développées[30].

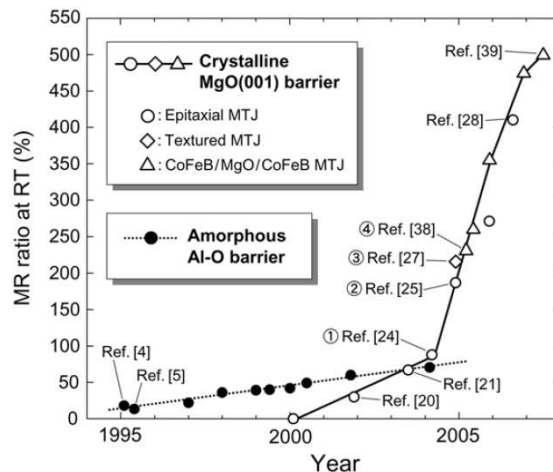


FIGURE 1.17 – Historique des améliorations des jonctions tunnel magnétiques. D'après [29].

### 1.5.5 Le couple de transfert de spin

Si les effets de magnétorésistance tunnel ou géante sont la manifestation de l'action de l'aimantation sur un courant électrique, alors la réciproque existe également. L'idée qu'un courant polarisé en spin puisse agir sur l'aimantation locale a émergé dans l'esprit de théoriciens comme Berger et Slonczewski. Ces idées ont abouti à la formulation des théories du couple de transfert de spin (STT pour "spin transfer torque")[31, 32]. Ces théories prévoient qu'un courant électrique polarisé en spin puisse induire des excitations magnétiques voire renverser une aimantation.

Deux ans après ces prédictions, Tsoi et al. observent des pics de la résistance  $dV/dI$  dans des multicouches métalliques dans lesquelles les auteurs ont injecté un courant électrique par un contact ponctuel[33]. Ces excitations ont été expliquées par la polarisation en spin du courant agissant sur l'aimantation du matériau. Katine et al. ont démontré la possibilité de retourner l'aimantation de la couche libre d'une vanne de spin par courant : il devient ainsi possible de renverser une aimantation avec des courants d'une densité de  $10^7$  à  $10^8$  A/cm<sup>2</sup>. Ces effets proportionnels à la densité de courant ne peuvent être observés que dans des piliers de taille de l'ordre de la centaine de nanomètre pour ne pas être écartés par les effets du champ d'Oersted. Le développement de jonctions tunnel magnétiques à barrière de faible résistivité, permettant de faire passer un courant

de l'ordre de  $10^7$  A/cm<sup>2</sup> sans claquage, a permis d'observer également un renversement d'aimantation dans ces systèmes[35].

L'idée principale de la théorie du couple de transfert de spin est que le moment angulaire doit être conservé. Si un courant électrique polarisé en spin passe dans une couche magnétique dont l'aimantation est non colinéaire à la polarisation du courant, les électrons vont être polarisés dans la direction de l'aimantation. La conservation du moment angulaire impose l'existence d'un couple s'exerçant sur la couche magnétique, et qui a tendance à diriger l'aimantation dans la direction de polarisation initiale. Ce couple peut s'écrire :

$$\vec{T}_{STT} = a_j \vec{M} \wedge (\vec{M} \wedge \vec{P}) + b_j \vec{M} \wedge \vec{P} \quad (1.13)$$

où  $\vec{M}$  est l'aimantation de la couche magnétique et  $\vec{P}$  est la polarisation en spin des électrons. Les termes  $a_j$  et  $b_j$  sont respectivement les coefficients de couple de transfert de spin usuel et de champ effectif induits par le courant. Le terme  $b_j$  est en général plus faible que le terme  $a_j$ , et le couple exercé tend donc à aligner l'aimantation dans la direction de polarisation des électrons. La dynamique de l'aimantation sous courant polarisé en spin peut être calculée à partir de l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma \vec{M} \wedge \vec{H}^{eff} - \alpha \frac{\gamma}{M_S} \vec{M} \wedge (\vec{M} \wedge \vec{H}^{eff}) - \gamma \vec{T}_{STT} \quad (1.14)$$

Le premier terme décrit la précession de l'aimantation  $\vec{M}$  autour du champ effectif  $\vec{H}^{eff}$  (comprenant champ appliqué, champ dipolaire et champ d'anisotropie de la couche magnétique),  $\gamma$  étant le rapport gyromagnétique de l'électron. Le second terme décrit de façon phénoménologique le terme d'amortissement qui tend à ramener l'aimantation dans la direction du champ effectif,  $\alpha$  est le terme d'amortissement de Gilbert. Le terme  $\vec{T}_{STT}$  peut selon le signe de  $a_j$  s'opposer ou s'ajouter à l'effet de l'amortissement (figure 1.18).  $a_j$  étant proportionnel à la densité de courant, il existe un courant critique  $J_C$  pour lequel le couple de transfert de spin devient plus grand que l'amortissement, ce qui permet de retourner l'aimantation d'un matériau. Ce courant peut s'écrire dans le cas d'une aimantation planaire[36] :

$$J_{C,\parallel} = \frac{A\alpha M_S t}{g(\theta)p} (H + H_{dip} \pm (H_K - 2\pi M_S)) \quad (1.15)$$

où  $p$  est la polarisation des électrons,  $t$  l'épaisseur de la couche magnétique et  $M_S$  son aimantation à saturation.  $g(\theta)$  est une fonction dépendant de l'angle entre les deux aimantation, et  $A$  une constante dépendant du modèle de transport utilisé.  $H$ ,  $H_{dip}$  et  $H_K$  sont respectivement le champ appliqué, le champ dipolaire rayonné par la couche de référence sur la couche de stockage et le champ d'anisotropie. Le renversement de l'aimantation sera donc facilité lorsque la couche magnétique est fine, son aimantation, son anisotropie et son amortissement faibles et que les électrons sont fortement polarisés.

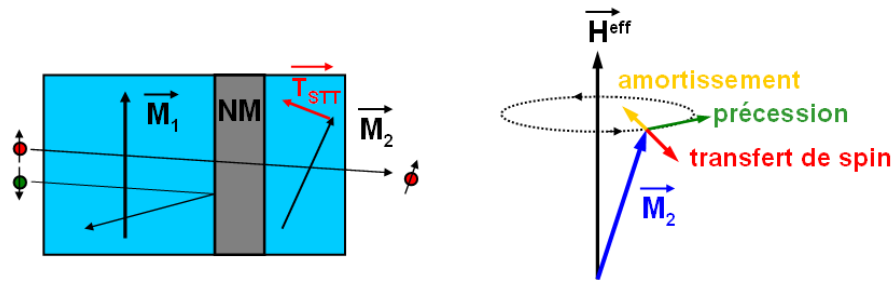


FIGURE 1.18 – A gauche : schéma de principe du transfert de spin dans une vanne de spin ou une jonction tunnel. A droite : représentation des différentes composantes agissant sur une aimantation et modélisable par l'équation LLG.

## 1.6 Les MRAM

De nombreuses techniques ont été développées pour stocker l'information binaire. Le principe est de coder cette information par un système ayant un paramètre physique présentant une rémanence et une coercivité, un "1" et un "0" pouvant être codés par l'état de ce paramètre. Les grandeurs physiques utilisées sont la résistance électrique dans le cas des transistors CMOS des mémoires SRAM, la charge électrique dans les mémoires flash, ou l'aimantation dans un disque dur. La lecture de l'état du système se fait en général par conversion de cette grandeur en signal électrique. Les paramètres caractérisant une mémoire magnétique sont sa densité de stockage, son temps d'accès pour lire les données, le temps d'écriture d'un bit, l'énergie nécessaire pour réaliser cette écriture, et la durée de rétention de l'information. Ce dernier point permet de distinguer deux types de mémoires : les mémoires volatiles dont un apport en énergie constant est nécessaire pour conserver l'information, et les mémoires non volatiles qui sont conçues de façon à ce que la durée de rétention de l'information soit de 10 ans. Le premier type de mémoire est utilisé pour sa rapidité de lecture/écriture pour traiter rapidement des données et effectuer des calculs. Le second type est utilisé pour conserver la quantité la plus importante d'information possible, le temps d'accès et d'écritures étant moins important dans ce cas là.

Les jonctions tunnels magnétiques peuvent être utilisées dans ce contexte pour coder l'information binaire. L'état magnétique du système permettant de changer la résistance de l'empilement, il est possible de fabriquer des matrices de jonctions de taille submicronique pour coder une série de "1" et de "0". En pratique, plus la différence entre les deux niveaux de résistance est élevée, plus la lecture de l'état est rapide. La non volatilité des systèmes magnétiques et la démonstration d'écritures sub-nanoseconde permet d'envisager leur utilisation en tant que mémoire de stockage d'une grande fiabilité et de support au traitement de données logiques. De tels systèmes sont appelés mémoires magnétorésistives à accès direct (MRAM pour "Magnetoresistive Random Access Memories").



Une jonction tunnel magnétique doit vérifier plusieurs caractéristiques pour pouvoir être utilisée en tant que brique de base dans une mémoire MRAM. Elle doit tout d'abord être stable en mode lecture et repos et pour cela vérifier le critère de stabilité  $K^{eff}V/k_B T > 50-60$ , et cela sur la gamme de température de fonctionnement de la mémoire (typiquement de  $-30^\circ\text{C}$  à  $85^\circ\text{C}$ ). Ce critère permet de déterminer le volume magnétique minimal nécessaire à la rétention de l'information pour une anisotropie  $K^{eff}$  donnée, et donc il détermine en partie la densité de stockage réalisable. Son état doit pouvoir être changé de façon reproductible, soit par champ magnétique, soit par couple de transfert de spin. Pour cela, une des électrodes magnétiques sert de référence, son aimantation est bloquée et rien ne doit la faire changer d'état. L'autre électrode, dite couche de stockage (ou couche libre ou couche douce), doit pouvoir être commutée. La vitesse de commutation détermine la vitesse d'écriture de la mémoire, et peut être réalisée en quelques centaines de picosecondes dans certains dispositifs[37]. Enfin, la reproductibilité des caractéristiques magnétiques et électriques d'un point mémoire à l'autre doit être suffisante pour pouvoir fabriquer une matrice où le nombre de points mémoires non-fonctionnels (typiquement moins de 0,2% pour une mémoire de 1 Mb) peut être corrigé par des algorithmes adaptés.

### 1.6.1 Comparaison avec différents types de mémoires

Les mémoires actuelles comme les DRAM et SRAM sont proches de leurs limites. En particulier, elles vont rencontrer des difficultés qui semblent insurmontables pour aller au delà du noeud technologique de 22 nm. Cependant, de nombreux efforts de recherche ont été entrepris pour remplacer ces mémoires, et de nouvelles technologies ont émergé de ces recherches. Récemment, les organismes internationaux rédigeant l'ITRS (International Technology Roadmap for Semiconductors, feuille de route du développement des technologies de la micro et nano-électronique) ont identifié 8 mémoires pouvant potentiellement remplacer les technologies actuelles. Ces 8 technologies émergentes sont les transistors à effet de champ à grille ferroélectrique (FeFET), les mémoires nanoélectromécaniques (NEMS), les mémoires MRAM à transfert de spin (STTRAM, décrites plus loin dans cette section), les mémoires Réd-Ox (RédOxRAM), les mémoires à changement de phase (PCRAM), les mémoires moléculaires (molRAM), les mémoires macromoléculaires (MmolRAM) et les mémoires à effet électronique (EERAM). La description détaillée de ces mémoires serait trop longue, mais le lecteur peut trouver leur principe de fonctionnement dans la référence [38]. Les performances potentielles de ces différentes mémoires sont présentées dans le tableau 1.1

Ce tableau, bien que permettant une comparaison rapide des technologies en développement et de leur potentiel, reste relativement vague sur certains points. Bien sûr, ces technologies n'étant pas encore sur le marché, voire encore au stade de recherche avancée, il est parfois difficile de prévoir leur réel potentiel. Par exemple, des écritures de STT-RAM ont été réalisées en moins d'une nanoseconde (donc la valeur "inférieure à 100 ns" du tableau semble pessimiste) mais ces résultats de laboratoire peuvent être difficiles à reproduire sur une mémoire commerciale. Cependant, les groupes de travail de



	Flash	FeFET	NEMS	STT MRAM	RédOx RAM	PC RAM	EE RAM	Mmol RAM	Mol RAM
scalabilité F	16nm	22nm	5-10nm	7-10nm	5-10nm	5-10nm	5-10nm	5-10nm	5-10nm
taille min. cellule	$2,5F^2$	$4-8F^2$	$6-12F^2$	$20-40F^2$	$8/5F^2$	$6F^2$	$8/5F^2$	$8/5F^2$	$5F^2$
multiniveau	3bits/cellule	non	oui	2bits/cellule	oui	4bits/cellule	oui	non	non
tension d'écriture	18-20V	0,6/-0,2V	1,5V	<1,8V	<0,5V	<3V	<3V	1V	80mV
tension de lecture	0,1-0,5V	?	3V	0,5V	<0,2V	<3V	0,7V	0,7V	0,3V
courant d'écriture	Faible	?	?	<100 $\mu A$	0,4 $\mu A$	>100 $\mu A$	?	?	?
temps d'écriture	>10 $\mu s$	20ns	0,9/0,3ns	<100ns	<5ns	<50ns/120ns	<20ns	<10ns	<40ns
temps de lecture	15-50 $\mu s$	20ns	>1,5ns	10-20ns	<10ns	<60ns	<10ns	<10ns	<10ns
rétention	10ans	33jours	10ans	10ans	10ans	10ans	10ans	10ans	10ans
endurance	$10^4$ cycles	$10^{12}$ cycles	?	$10^{12}$ cycles	$10^{16}$ cycles	$10^{15}$ cycles	$10^{16}$ cycles	$10^{16}$ cycles	$10^{16}$ cycles
énergie d'écriture	>1fJ	2fJ	0,03fJ	<4pJ	1fJ	<2pJ	<100pJ	?	0,2aJ

TABLE 1.1 – Performances ultimes des différentes technologies de mémoires émergentes comparées à celles des mémoires Flash, d'après [38]. Dans ce tableau, F correspond à la taille de grille du transistor.

l'Emerging Research Device (ERD) et de l'Emerging Research Material (ERM) préconisent de concentrer les efforts de recherche et développement sur les mémoires MRAM à transfert de spin et les mémoires RédOx, en vue de les commercialiser dans les 5 à 10 ans à venir.

## 1.6.2 Les MRAM à aimantation planaire à écriture par champ

Le premier type de mémoire MRAM conçu consiste en une jonction tunnel magnétique dont l'écriture de la couche libre se fait par champ. Dans ce système, la couche de référence est une structure antiferromagnétique synthétique. Elle consiste en un empilement type AF/FM1/Ru/FM2/barrière tunnel. FM1 est un matériau ferromagnétique couplé par échange avec le matériau antiferromagnétique AF. La couche de Ru est

conçue de telle façon que FM2 et FM1 soient couplées antiferromagnétiquement. Dans cette configuration, l'aimantation de l'ensemble est bloquée et le champ rayonné sur la couche libre par cette structure peut être quasi nul si le champ rayonné par FM1 est compensé par celui rayonné par FM2. La couche libre est une couche ferromagnétique unique.

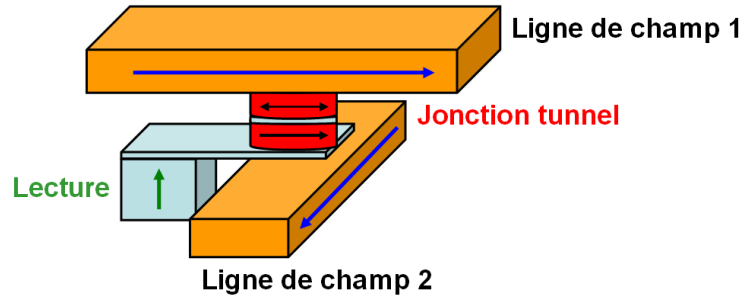


FIGURE 1.19 – Schéma d'une cellule mémoire MRAM à écriture par champ.

L'écriture s'effectue par l'application d'un champ magnétique à  $45^\circ$  de l'axe d'anisotropie de la couche libre. C'est dans cette situation que le champ de retournement est minimal d'après le modèle de Stoner-Wolfarth. Ce champ est produit par le passage d'un courant électrique dans deux lignes perpendiculaires situées en dessous et au dessus de la jonction. Enfin, une ligne déportée, en bleu sur la figure 1.19, permet de lire l'état de la jonction. Ce système atteint vite ses limites en termes de densité de stockage et de fiabilité. En effet, la réduction de la taille du point mémoire doit s'accompagner de la réduction de la taille des lignes de champ. Cependant, le champ produit par ces lignes est proportionnel à l'intensité du courant les traversant. La réduction de leur taille ne peut se faire que tant que la densité de courant ne dépasse pas la résistance à l'électromigration des lignes de champ. D'autre part, chaque ligne de champ est utilisée pour une colonne ou une ligne entière de jonctions dans la matrice. En fonctionnement normal, seules les jonctions situées au croisement de deux lignes de champ actives sont écrites. Cependant, il est possible qu'une jonction se trouvant sur une seule ligne de champ soit involontairement écrite. Cette écriture parasite est due au fait que dans la situation où la jonction est à "demi adressée", la barrière d'énergie à franchir pour passer d'un état à l'autre état est diminuée par la présence du champ magnétique, laissant donc plus de chance à une fluctuation thermique d'effectuer cette commutation parasite.

Une amélioration significative de ce système a été apportée en 2003 par Motorola[39, 40]. Dans ce système appelé toggle-MRAM, la couche libre est un ferrimagnétique synthétique, c'est à dire un empilement FM1/Ru/FM2, où FM1 et FM2 sont deux couches ferromagnétiques couplées antiferromagnétiquement à travers l'espaceur de Ru. Le principe d'écriture est également différent du cas précédent : si un champ magnétique suffisamment important est appliqué, les aimantations FM1 et FM2 ne forment plus tout à fait un angle de  $180^\circ$  et vont avoir tendance à s'orienter selon la direction du champ. En

appliquant la combinaison de deux champs orthogonaux suivant une séquence précise, il est possible de retourner les deux aimantations, comme indiqué sur la figure 1.20. La complexité d'écriture de la couche libre limite considérablement le risque de retournement parasite, et la stabilité thermique de la jonction est améliorée par l'utilisation d'une couche ferrimagnétique synthétique comme couche libre[41].

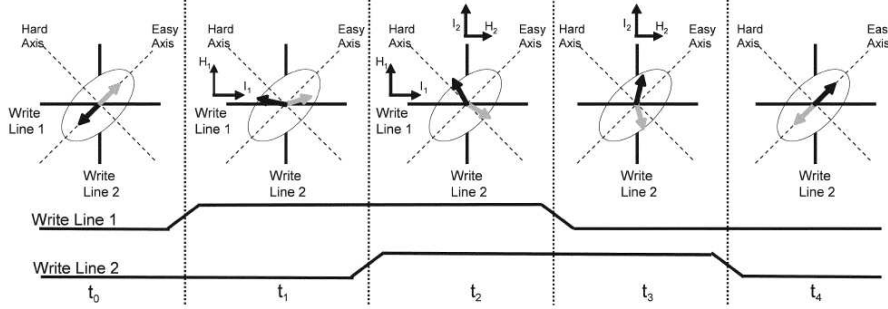


FIGURE 1.20 – Schéma d'écriture d'une cellule toggle-MRAM. D'après[41].

### 1.6.3 Les MRAM à écriture par couple de transfert de spin

Les MRAM à écriture par champ, même améliorées par le système toggle, présentent le défaut de nécessiter des lignes de champ occupant une surface importante diminuant la densité de stockage de l'ensemble. Le phénomène de couple de transfert de spin est un moyen de se passer du champ magnétique. Dans ce système, les électrons polarisés par la couche de référence vont permettre de commuter l'aimantation de la couche libre si la densité de courant est supérieure au courant critique (de l'ordre de  $10^7$  A/cm<sup>2</sup>), dans la configuration parallèle ou antiparallèle selon le sens du courant. L'avantage de ce système est que la ligne utilisée pour lire la jonction peut être utilisée pour l'écriture, cette simplification apportant une diminution de la taille d'un point mémoire comparé au système à écriture par champ, pour un diamètre de jonction donné. L'autre avantage de ce type d'écriture est que le couple de transfert de spin est proportionnel à la densité de courant appliquée à la jonction. Cela veut dire que l'énergie nécessaire à l'écriture ne dépend pas des dimensions latérales de la jonction, contrairement à l'écriture par champ qui est elle proportionnelle au courant.

Le principal défi qui empêche ce type de mémoire d'apparaître sur le marché est la séparation entre les niveaux des courants de lecture, écriture et claquage. En effet, il faut que ces trois distributions soient séparées de  $12\sigma$  (où  $\sigma$  est la largeur à mi-hauteur de la distribution concernée) pour pouvoir fabriquer un produit MRAM commercialisable.

### 1.6.4 Les MRAM à aimantation perpendiculaire

Les premières générations de MRAM utilisent des jonctions tunnel magnétiques à aimantation dans le plan des couches. Cette situation est favorable car l'énergie due au champ démagnétisant est minimale quand l'aimantation est dirigée dans la direction de plus grande dimension de l'échantillon. La barrière d'énergie permettant de n'avoir que deux états stables à champ nul provient d'une anisotropie de forme. Pour cela, la jonction tunnel magnétique est gravée en forme d'ellipse, ce qui induit une anisotropie uniaxiale d'axe parallèle au grand axe de l'ellipse. L'anisotropie de forme associée est relativement faible et ne permet pas de fabriquer des jonctions thermiquement stables en dessous des noeuds technologiques inférieurs à 100 nm. De plus, la diminution des tailles latérales d'un point mémoire rend plus compliquée la fabrication d'ellipses ayant un rapport de forme suffisant pour assurer une stabilité thermique correcte.

De ce point de vue, les matériaux à aimantation perpendiculaire au plan des couches présentent un grand intérêt. En effet, leur très forte anisotropie permet d'envisager la fabrication de piliers thermiquement stables à des tailles latérales inférieures à 22 nm. De plus, la forme latérale du pilier n'a plus d'importance d'un point de vue magnétostatique dans ce cas, ce qui simplifie grandement la fabrication des dispositifs : il devient alors possible de fabriquer des piliers circulaires.

Enfin, d'un point de vue d'une écriture par transfert de spin, la commutation d'une aimantation perpendiculaire au plan nécessite moins d'énergie que celle d'une aimantation planaire toutes choses étant égales par ailleurs. Les équations donnant le courant critique de commutation par transfert de spin peuvent se réécrire à partir de l'équation 1.15 :

$$J_{C,\parallel}^{P-AP} = \frac{A\alpha M_S t}{g(0)p} (H + H_{dip} + (H_{K\parallel} + 2\pi M_S)) \quad (1.16)$$

$$J_{C,\parallel}^{AP-P} = \frac{A\alpha M_S t}{g(\pi)p} (H + H_{dip} - (H_{K\parallel} + 2\pi M_S)) \quad (1.17)$$

pour le cas où l'aimantation est dans le plan des couches, et

$$J_{C,\perp}^{P-AP} = \frac{A\alpha M_S t}{g(0)p} (H + H_{dip} + (H_{K\perp} - 4\pi M_S)) \quad (1.18)$$

$$J_{C,\perp}^{AP-P} = \frac{A\alpha M_S t}{g(\pi)p} (H + H_{dip} - (H_{K\perp} - 4\pi M_S)) \quad (1.19)$$

pour le cas où l'aimantation est perpendiculaire au plan des couches[42].

Dans ces équations,  $\alpha$  est le coefficient d'amortissement de Gilbert,  $p$  la polarisation en spin du courant,  $g(\theta)$  une fonction dépendant de l'angle que forment les deux aimantations,  $t$  l'épaisseur de la couche magnétique.  $H_{dip}$  est le champ dipolaire rayonné par la couche de référence sur la couche de stockage,  $H$  le champ appliqué,  $H_{K\parallel}$  et  $H_{K\perp}$  sont respectivement les anisotropies uniaxiales parallèle et perpendiculaire, les hauteurs de barrières associées valant respectivement  $H_{K\parallel}M_S/2$  pour le cas planaire et  $(H_{K\perp} - 4\pi M_S)M_S/2$  pour le cas perpendiculaire. Enfin,  $A$  est une constante dépendant

du modèle de transport utilisé. Ces équations montrent que dans le cas planaire, en plus de l'énergie de barrière (fixée à  $50k_B T$ ), il est nécessaire de payer une énergie  $2\pi M_S$  pour renverser l'aimantation, alors que ce terme est inclus dans l'énergie de barrière dans le cas perpendiculaire. La différence entre les deux cas provient du fait que l'aimantation d'un système planaire doit osciller hors du plan avant de commuter, ce qui est défavorable d'un point de vue magnétostatique.

Les jonctions tunnel magnétiques à aimantation perpendiculaire permettent d'envisager une réduction de la consommation bien que le coefficient d'amortissement plus important dans ces matériaux que dans ceux utilisés dans les jonctions à aimantation planaire empêche pour le moment d'observer une diminution significative du courant critique de commutation[43, 44].

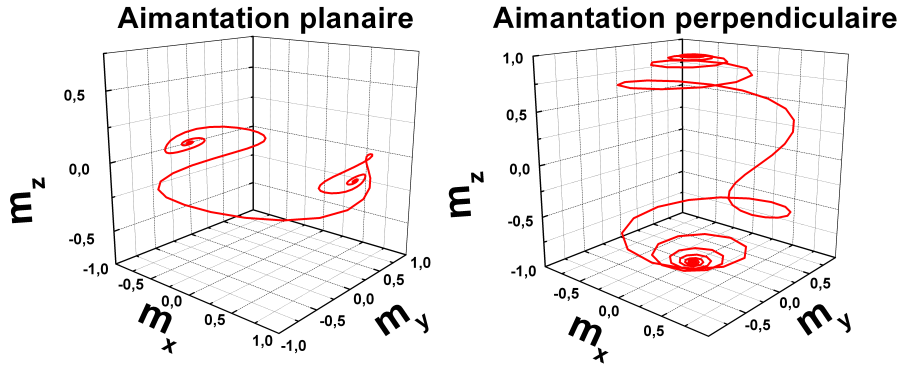


FIGURE 1.21 – A gauche : simulation de la trajectoire d'une aimantation à anisotropie planaire commutée par couple de transfert de spin. A droite : simulation de la trajectoire d'une aimantation à anisotropie perpendiculaire commutée par couple de transfert de spin. D'après [45].

### 1.6.5 Les MRAM assistées thermiquement (TA-MRAM)

Un autre moyen pour renforcer la stabilité d'une jonction tunnel est d'utiliser une couche de stockage piégée par échange avec un matériau antiferromagnétique [46, 47]. Ce couplage d'échange permet de bloquer l'aimantation dans une direction. La procédure pour obtenir cet échange consiste à élever la température de la jonction par un recuit au delà de la température de blocage de l'antiferromagnétique puis d'appliquer un champ servant à diriger l'aimantation de la couche de stockage dans la direction désirée pendant le refroidissement. Ce couplage se caractérise par un cycle d'hystérésis décalé par rapport au champ nul d'une valeur appelée champ d'échange. Si ce champ d'échange est plus grand que le champ coercitif, un seul état devient stable à champ nul et à température ambiante.

L'écriture d'un point mémoire se déroule par assistance thermique : une impulsion de courant est appliquée à la jonction tunnel magnétique. La relaxation des électrons chauds

passant à travers la barrière par effet tunnel va provoquer un échauffement de la jonction. Si la densité de courant appliquée est suffisamment élevée, la température dans la jonction peut dépasser la température de blocage de l'antiferromagnétique (le système étant conçu de façon à ce qu'elle se situe aux alentours de  $175^{\circ}\text{C}$  à  $220^{\circ}\text{C}$ ). Dans ce cas la couche est de nouveau libre. L'application d'un champ magnétique durant le refroidissement de la jonction, c'est à dire lorsque l'impulsion de courant est coupée, permet de changer le sens de l'aimantation, puis d'obtenir un échange inverse à celui qui été initialement établi[48, 49].

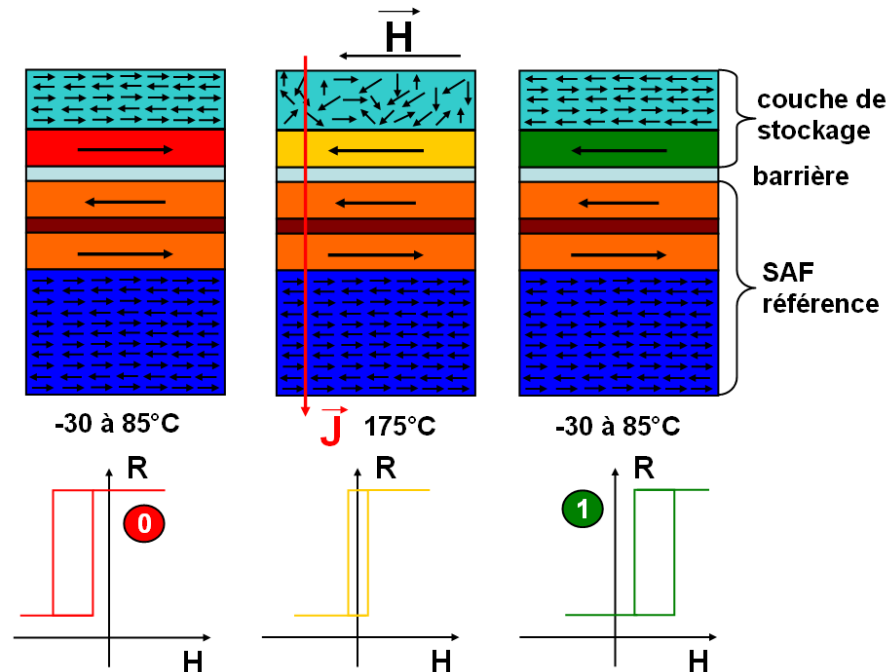


FIGURE 1.22 – Écriture d'une cellule TA-MRAM : Une jonction initialement dans l'état antiparallèle (à gauche) est chauffée au dessus de la température de blocage de l'antiferromagnétique de la couche de stockage par une impulsion de courant. L'application d'un champ magnétique pendant le refroidissement permet d'écrire la jonction dans l'état parallèle (au milieu), puis l'antiferromagnétique bloque cet état sur la gamme de température de repos (à droite).

Ces mémoires ont l'avantage d'être plus stables vis à vis des fluctuations thermiques que des systèmes à écriture par champ classique, de ne pas être sensibles aux champs magnétiques parasites en dehors de l'écriture et de ne nécessiter qu'une seule ligne de champ. Il est également possible d'utiliser l'impulsion de courant de chauffage comme moyen pour écrire la jonction par couple de transfert de spin[50].

## 1.7 L'assistance thermique dans les jonctions à aimantation perpendiculaire

Dans le but d'augmenter la densité de stockage des mémoires MRAM tout en diminuant au maximum la consommation électrique à l'écriture, il est envisagé de combiner l'écriture assistée thermiquement au couple de transfert de spin pour des jonctions tunnel magnétiques à aimantation perpendiculaire. Ce mode d'écriture relativement différent de celui d'assistance thermique dans les jonctions tunnel à aimantation planaire a été breveté par SPINTEC.

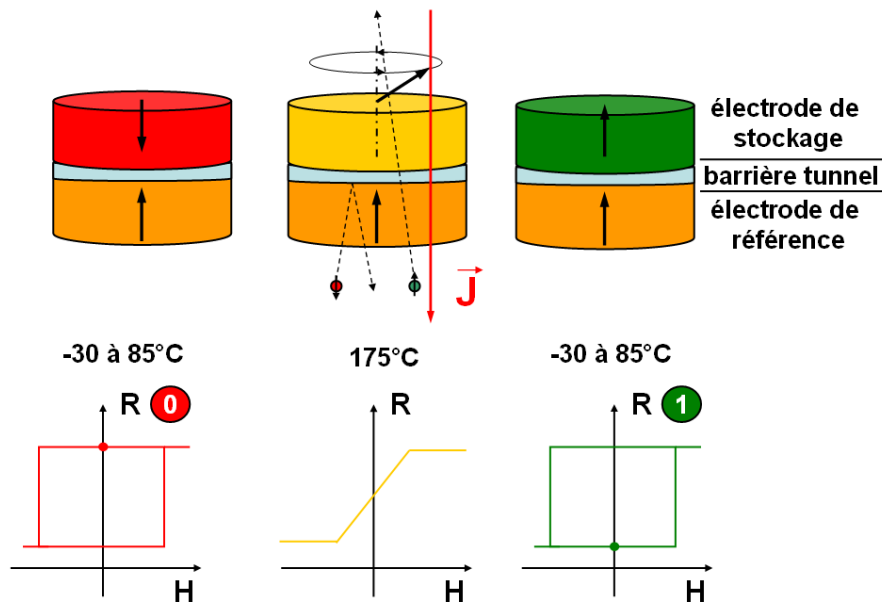


FIGURE 1.23 – Écriture STT assistée thermiquement d'une cellule MRAM à aimantation perpendiculaire : une jonction initialement dans l'état antiparallèle (à gauche) est chauffée au dessus de la température de basculement d'anisotropie de la couche de stockage. À cette température, l'aimantation de la couche de stockage est dans le plan des couches. Les électrons polarisés en spin par la couche de référence font précéder cette aimantation hors du plan, dans un hémisphère où l'autre selon le sens du courant (au milieu). Lors du refroidissement de la jonction, l'aimantation de la couche libre retourne hors du plan, dans la direction dans laquelle elle avait été préalablement tirée par le courant polarisé (à droite).

Le principe de base de ce nouveau mode d'écriture est d'utiliser le phénomène de réorientation d'aimantation avec la température qui sera plus spécifiquement abordé dans le chapitre 5. En bref, dans des matériaux à aimantation perpendiculaire, il existe

sous certaines conditions une température (appelée température de basculement d'anisotropie) pour laquelle l'anisotropie perpendiculaire est égale à l'anisotropie de forme planaire. En dessous de cette température, l'aimantation de la couche est hors du plan, et au delà elle est dans le plan des couches. Il est possible de tirer profit de cette réorientation d'aimantation pour diminuer le courant critique de commutation par transfert de spin. L'écriture d'un point mémoire s'effectue comme suit : une impulsion de courant est appliquée à la jonction tunnel magnétique, ce qui provoque une élévation de température jusqu'aux alentours de 175°C-220°C. A cette température, l'aimantation de la couche libre tombe dans le plan de la couche. Le second effet de l'impulsion de courant polarisée en spin est de faire précéder l'aimantation de la couche libre à anisotropie planaire autour de l'axe perpendiculaire aux couches. Cette aimantation est également légèrement tirée hors du plan par le couple de transfert de spin induit par les électrons polarisés en spin perpendiculairement au plan par la couche de référence, dans un hémisphère où l'autre suivant la direction du courant appliqué[51]. Il faut noter que dans cette situation l'efficacité du couple de transfert de spin est maximale car l'aimantation de la couche libre est perpendiculaire à la polarisation des électrons. Lorsque l'impulsion de courant est arrêtée, la jonction refroidit, l'aimantation de la couche de stockage retourne hors du plan dans la direction dans laquelle elle était tirée auparavant par couple de transfert de spin. Cette méthode permet en théorie d'abaisser le courant critique de commutation.

Pour pouvoir fonctionner, ce système doit vérifier plusieurs conditions :

- La stabilité thermique des deux électrodes doit vérifier les critères de stabilité thermique sur la gamme de température de veille, c'est à dire -30°C à 85°C (mais cela dépend des applications visées).
- L'électrode de stockage doit perdre son anisotropie perpendiculaire et basculer dans le plan à la température d'écriture qui doit se situer aux alentours de 175°C-220°C (selon la gamme de température de veille).
- L'électrode de référence doit garder une aimantation perpendiculaire à la température d'écriture pour pouvoir polariser les électrons hors du plan.
- Les jonctions doivent également vérifier les contraintes standards des MRAM en termes de magnétorésistance tunnel, résistance et distributions de tension de lecture, écriture et de claquage.

## 1.8 Objectifs de la thèse

L'électronique de spin semble donc particulièrement prometteuse pour les applications mémoires. Avec l'arrivée aux limites physiques des technologies tout silicium, les mémoires MRAM sont une des voies qui sont en développement pour réaliser de nouveaux dispositifs non-volatiles présentant une faible consommation et une forte capacité de stockage. Les défis à relever restent cependant importants tant au niveau de la conception de matériaux toujours plus performants que dans la compréhension des phénomènes du transfert de spin ou de l'anisotropie magnétique perpendiculaire.



Cette thèse s'inscrit dans ce contexte, et propose en particulier une méthode d'écriture par transfert de spin assisté thermiquement dans les jonctions tunnel magnétiques à aimantation perpendiculaire. Les deuxième et troisième chapitres présentent une étude de l'anisotropie magnétique perpendiculaire dans les multicouches métalliques cobalt/métal non magnétique et dans les alliages terre rare/métal de transition magnétique. L'optimisation de cette anisotropie permet de fabriquer des jonctions tunnels magnétiques à aimantation perpendiculaires présentées dans le chapitre 4. À cette occasion, la fabrication de la barrière tunnel et de structures optimisées pour diminuer le couplage dipolaire dans une jonction tunnel magnétique sont présentées. Le chapitre 5 est consacré à l'étude de la variation de l'anisotropie perpendiculaire en fonction de la température et à la fabrication d'électrodes à basculement d'anisotropie. Enfin, le dernier chapitre présente les avantages de l'utilisation de telles électrodes pour l'écriture de jonctions tunnel magnétiques à aimantation perpendiculaire.

***Le problème des unités :** dans la suite du manuscrit, sauf mention contraire, les unités utilisées sont les unités c.g.s.. Un tableau de conversion c.g.s./S.I. est disponible en annexe 2.*



# Bibliographie

- [1] V. Gehanno, thèse, Institut National Polytechnique de Grenoble (1997)
- [2] L. E. Nistor, Thèse, Université Joseph Fourier, Grenoble (2011)
- [3] H. Kurt, K. Rode, M. Venkatesan, P. Stamenov, and J. M. D. Coey, Phys. Rev. B **83**, 020405 (2011)
- [4] M. Chshiev, *présentation au laboratoire SPINTEC*, (2010)
- [5] L. Néel, C. R. Acad. Sci. **255**, 1545 (1962)
- [6] M. A. Ruderman and C. Kittel, Phys. Rev. **96**, 99-102 (1954)
- [7] T. Kasuya, Progress of theoretical physics **16**, 45-57 (1956)
- [8] K. Yosida, Phys. Rev. **106**, 893-898 (1957)
- [9] S. S. P. Parkin and D. Mauri, Phys. Rev. B. **44**, 7131-7134 (1991)
- [10] N. F. Mott, Pro. Roy. Soc. London Series A **156**, 368-382 (1936)
- [11] A. Fert and I. A. Campbell, Phys. Rev. Lett. **21**, 1190-1192 (1968)
- [12] P. M. Tedrow and R. Meservey, Phys. Rev. Lett. **26**, 192-195 (1971)
- [13] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich and J. Chazelas, Phys. Rev. Lett. **61**, 2472-2475 (1988)
- [14] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach and W. Zinn, Phys. Rev. B **39**, 4828-4830 (1989)
- [15] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit and D. Mauri, Phys. Rev. B **43**, 1297-1300 (1991)
- [16] M. Jullière, Phys. Lett. **54A**, 225-226 (1975)
- [17] A. Schuhl et D. Lacour, C. R. Physique **6**, 945-955 (2005)
- [18] M. B. Stearns, J. Magn. Mater. Magn. **5**, 167-171 (1977)
- [19] J. C. Slonczewski, Phys. Rev. B **39**, 6995-7002 (1989)
- [20] J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong and R. Meservey, Phys. Rev. Lett. **74**, 3273-3276 (1995)
- [21] T. Miyazaki and N. Tezuka, J. Magn. Mater. **139**, L231-L234 (1995)
- [22] H. X. Wei, Q. H. Qin, M. Ma, R. Sharif and X. F. Hana, J. Appl. Phys. **101**, 09B501 (2007)

- [23] R. C. Sousa, J. J. Sun, V. Soares, P. P. Freitas, A. Kling, M. F. da Silva and J. C. Soares, Appl. Phys. Lett. **73**, 3288-3290 (1998)
- [24] W. H. Butler, X.-G. Zhang, T. C. Schulthess and J. M. MacLaren, Phys. Rev. B **63**, 054416 (2001)
- [25] J. Callaway and C. S. Wang, Phys. Rev. B **16**, 2095 (1977)
- [26] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki and K. Ando, Nature Mater. **3**, 868-871 (2004)
- [27] S. S. P. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P. M. Rice, B. Hughes, M. Samant, S. H. Yang, **3**, 862-867 (2004)
- [28] S. Yuasa, T. Sato, E. Tamura, Y. Suzuki, H. Yamamori, K. Ando and T. Katayama, Europhys. Lett. **52**, 344 (2000)
- [29] S. Yuasa and D. D. Djayaprawira, J. Phys. D : Appl. Phys. **40**, R337-R354 (2007)
- [30] S. Ikeda, J. Hayakawa, Y. Ashizawa, Y. M. Lee, K. Miura, H. Hasegawa, M. Tsunoda, F. Matsukura, and H. Ohno, Appl. Phys. Lett. **93**, 082508 (2008)
- [31] J. C. Slonczewski, J. Magn. Magn. Matter. **159**, L1-L7 (1996)
- [32] L. Berger, Phys. Rev. B **54**, 9353-9358 (1996)
- [33] M. Tsoi, A. G. M. Jansen, J. Bass, W. C. Chiang, M. Seck, V. Tsoi and P. Wyder, Phys. Rev. Lett. **80**, 4281-4284 (1998)
- [34] J. A. Katine, F. J. Albert, R. A. Buhrman, E. B. Myers and D. C. Ralph, Phys. Rev. Lett. **84**, 3149-3152 (2000)
- [35] Y. Huai, F. Albert, P. Nguyen, M. Pakala and T. Valet, Appl. Phys. Lett. **84**, 3118-3120 (2004)
- [36] J. Z. Sun, Phys. Rev. B **62**, 570-578 (2000)
- [37] C. Papusoi, B. Delaët, B. Rodmacq, D. Houssameddine, J.-P. Michel, U. Ebels, R. C. Sousa, L. Buda-Prejbeanu and B. Dieny, Appl. Phys. Lett. **95**, 072506 (2009)
- [38] J. Hutchby and M. Garner, *Assessment of the Potential and Maturity of Selected Emerging Research Memory Technologies Workshop and ERD/ERM Working Group Meeting* (2010)  
disponible sur <http://www.itrs.net/Links/2010ITRS/Home2010.htm>
- [39] M. Durlam, D. Addie, J. Akerman, B. Butcher, P. Brown, J. Chan, M. DeHerrera, B. N. Engel, B. Feil and G. Grynkewich, 2003 International Electron Devices Meeting, Washington DC, (2003)
- [40] L. Savtchenko, B.N. Engel, N.D. Rizzo, M.F. DeHerrera and J.A. Janesky, US Patent 6 545 906 B1 (2003)
- [41] B. N. Engel, J. Akerman, B. Butcher, R. W. Dave, M. DeHerrera, M. Durlam, G. Grynkewich, J. Janesky, S. V. Pietambaram, N. D. Rizzo, J. M. Slaughter, K. Smith, J. J. Sun, and S. Tehrani, IEEE Trans. Magn. **41**, 132-136 (2005)

- [42] S. Mangin, D. Ravelosona, J. A. Katine, M. J. Carey, B. D. Terris and E. E. Fullerton, *Nature Mater.* **5**, 210-215 (2006)
- [43] S. Ikeda, K. Miura, H. Yamamoto, K. Mizunuma, H. D. Gan, M. Endo, S. Kanai, J. Hayakawa, F. Matsukura and H. Ohno, *Nature Mater.* **9**, 721-724 (2010)
- [44] S. Mizukami, E. P. Sajitha, D. Watanabe, F. Wu, T. Miyazaki, H. Naganuma, M. Oogane, and Y. Ando, *Appl. Phys. Lett.* **96**, 152502 (2010)
- [45] B. Lacoste. Je remercie Bertrand Lacoste pour ces simulations.
- [46] B. Dieny and O. Redon, US Patent App. 10/495,637 (2002)
- [47] J. Nozieres, B. Dieny, O. Redon, R. Sousa, and I. Prejbeanu, US Patent 7,411,817 (2006)
- [48] I. L. Prejbeanu, W. Kula, K. Ounadjela, R. C. Sousa, O. Redon, B. Dieny and J. P. Nozieres, *IEEE Trans. Magn.* **40**, 2625-2627 (2004)
- [49] M. Kerekes, R. C. Sousa, I. L. Prejbeanu, O. Redon, U. Ebels, C. Baraduc, B. Dieny, J. P. Nozières, P. P. Freitas and P. Xavier, *J. Appl. Phys.* **97**, 10P501 (2005)
- [50] J. Hérault, Thèse, Université Joseph Fourier (2010)
- [51] D. Houssameddine, U. Ebels, B. Delaët, B. Rodmacq, I. Firastrau, F. Ponthenier, M. Brunet, C. Thirion, J.-P. Michel, L. Prejbeanu-Buda, M.-C. Cyrille, O. Redon and B. Dieny, *Nature Mater.* **6**, 447-453 (2007)



# Chapitre 2

## Développement de multicouches (Co/Pt) et (Co/Pd)

Une multicouche (Co/NM) (où NM est un métal non magnétique) est un empilement où des couches minces de Co et de NM sont déposées alternativement. Dans de telles structures où l'épaisseur des couches (quelques plans atomiques) est de l'ordre de grandeur de certaines longueurs caractéristiques telles la longueur d'échange, le libre parcours moyen des électrons ou encore la longueur d'onde de Fermi, il devient possible de faire apparaître de nouvelles propriétés physiques impossibles à obtenir à partir de matériaux massifs. Dans ces empilements les effets d'interface deviennent mesurables, contrairement aux matériaux massifs où ils sont négligeables comparés aux contributions de volume. En jouant sur l'environnement local des atomes de cobalt aux interfaces, il devient possible de changer les propriétés physiques et en particulier magnétiques de la multicouche. Par exemple, de nouvelles phases cristallographiques ou de nouvelles directions d'anisotropie peuvent apparaître.

La découverte de l'anisotropie magnétique perpendiculaire dans des multicouches (Co/Pd) en 1985 par Carcia et al.[1], puis dans les multicouches (Co/Pt)[2] et (Co/Au)[3], a ouvert la voie à un domaine de recherche extrêmement riche et varié. Ces multicouches présentant une anisotropie perpendiculaire induite aux interfaces Co/NM ont non seulement un intérêt théorique en tant que systèmes modèles mais également un intérêt technologique puisqu'elles peuvent être utilisées dans le domaine du stockage de l'information. Leurs avantages sont nombreux :

- énergie d'anisotropie perpendiculaire importante (de l'ordre de  $10^7$  erg.cm<sup>-3</sup>), ce qui permet d'envisager la fabrication de dispositifs aux tailles latérales de l'ordre de la dizaine de nm thermiquement stables.
- grande souplesse d'ajustement des caractéristiques physiques : elles peuvent être modifiées en jouant sur les paramètres de croissance (pression du plasma, vitesse de dépôt, etc...), sur l'épaisseur des différentes couches et sur les traitements thermiques.
- fabrication possible par pulvérisation cathodique : elles sont donc adaptées à la fabrication à un niveau industriel.
- également fabricable par évaporation, épitaxie par jets moléculaires, électrodéposition

ou ablation laser, ce qui est également une autre façon de modifier la croissance de la structure.

Il devient évident que ces multicouches peuvent servir de brique de base à l'élaboration de jonctions tunnel magnétiques à aimantation perpendiculaire. Pour cela, il convient cependant de bien comprendre l'origine de l'anisotropie perpendiculaire dans ces systèmes et de maîtriser la fabrication de multicouches ayant une croissance compatible avec une barrière tunnel.

Dans ce chapitre, les différents phénomènes contribuant à l'anisotropie perpendiculaire seront exposés. Dans un second temps, ce chapitre sera consacré à l'étude de l'asymétrie des effets interfaciaux dans les tricouches NM/Co/NM, ainsi qu'à l'amélioration du système par rapport à l'état de l'art[4, 5]. L'optimisation de l'anisotropie perpendiculaire de multicouches (Co/Pt) et (Co/Pd) sera ensuite présentée. Cette étude permettra de mettre en relief les différences entre ces deux systèmes et de choisir le métal le plus adapté aux systèmes à aimantation perpendiculaire.

## 2.1 L'anisotropie magnétique perpendiculaire dans les multicouches (Co/NM)

Le modèle de base utilisé pour décrire l'anisotropie dans les multicouches (Co/NM) consiste en un calcul de l'énergie du système en séparant les termes de volume et les termes d'interface. Ce modèle empirique ne prend pas en compte la nature physique des phénomènes induisant l'anisotropie perpendiculaire mais permet de modéliser correctement ce système dans la plupart des situations. Pour simplifier le modèle, considérons tout d'abord une couche de cobalt d'épaisseur  $t_{Co}$  et d'aimantation à saturation  $M_S$  déposée entre deux couches de métal non magnétique, comme indiqué sur la figure 2.1. Ce modèle est extensible aux multicouches magnétiques comprenant  $n$  couches de cobalt. Il suffit de considérer en première approximation que les couches de cobalt sont indépendantes et obéissent aux lois présentées dans cette section.

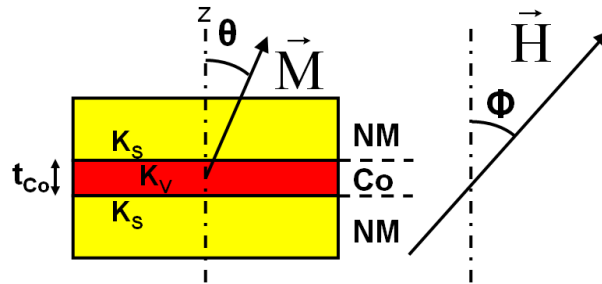


FIGURE 2.1 – Modélisation du système NM/Co/NM



En présence d'un champ magnétique extérieur  $H$ , l'énergie volumique du système vaut :

$$E = -HM_S \cos(\theta - \phi) - K^{eff} \cos^2(\theta) \quad (2.1)$$

La constante d'anisotropie  $K^{eff}$  est la barrière d'énergie à vaincre pour renverser l'aimantation du système. Par convention, elle est positive lorsque l'axe de facile aimantation est perpendiculaire au plan et négative dans le cas contraire. Elle peut elle-même être décomposée de façon phénoménologique en plusieurs termes :

$$K^{eff} = -2\pi M_S^2 + K_V + \frac{2K_S}{t_{Co}} \quad (2.2)$$

Le terme  $-2\pi M_S^2$  est l'énergie liée au champ démagnétisant dans une couche mince monodomaine. Le terme  $K_V$  décrit de façon empirique tous les effets liés au volume autres que ceux dus au champ démagnétisant, et enfin le terme  $K_S$  englobe tous les effets liés aux interfaces. Ici les deux interfaces sont considérées comme équivalentes, d'où le facteur 2 devant le terme  $K_S$ . Les phénomènes physiques induisant ces anisotropies sont présentées dans la suite.

### 2.1.1 Champ démagnétisant et anisotropie de forme

Dans un échantillon magnétique, chaque moment magnétique subit de la part des autres moments magnétiques une interaction dipolaire. Cette interaction est négligeable à courte distance comparée à l'interaction d'échange, mais devient prépondérante à longue distance. Il en résulte la création d'un champ dit démagnétisant qui s'oppose à l'aimantation qui le crée. De plus, si les pôles des moments magnétiques au sein de la matière se compensent, ce n'est plus le cas à la surface de l'échantillon. Par des considérations énergétiques, le champ démagnétisant  $\vec{H}_d$  créé va diriger l'aimantation de manière à éloigner le plus possible ces pôles non compensés. Il va donc avoir tendance à diriger l'aimantation dans l'axe de plus grande dimension de l'échantillon. L'énergie associée à ces interactions dipolaires vaut :

$$E_d = -2\pi \vec{H}_d \cdot \vec{M} \quad (2.3)$$

Le champ démagnétisant  $\vec{H}_d$  est calculé à partir de l'aimantation et de la forme de l'échantillon décrite par le tenseur  $\overline{N}_d$  :

$$\vec{H}_d = -\overline{N}_d \vec{M} \quad (2.4)$$

Dans le cas d'une couche mince où l'épaisseur de la couche est très inférieure aux dimensions latérales, le champ démagnétisant favorise la situation où l'aimantation est dans le plan de la couche. L'équation 2.3 se réduit dans le cas des films minces à  $E_d = -2\pi M_S^2 \cos^2(\theta)$ ,  $\theta$  étant l'angle entre la normale au plan et la direction de l'aimantation.

### 2.1.2 Anisotropie magnétocristalline

Dans les matériaux magnétiques cristallisés, l'environnement local vu par un moment magnétique va induire des axes d'anisotropie particuliers. Les orbitales atomiques d'un atome magnétique dans un cristal subissent des interactions électrostatiques dues à la distribution des charges de l'environnement. Ce phénomène peut être modélisé par un champ électrique dit champ cristallin. Dans un métal de transition magnétique tel que le cobalt, le nickel ou le fer, les moments orbitaux 3d interagissent fortement, les orbitales sont fortement liées aux axes cristallins (énergie de l'ordre de 1 eV). Le couplage spin-orbite qui lie moment magnétique orbital et moment magnétique de spin va lier le moment magnétique de spin, essentiel contributeur au magnétisme dans de tels métaux, aux axes cristallins. Sous un champ magnétique, l'énergie requise pour diriger les spins loin d'un de ces axes cristallins est égale à l'énergie nécessaire pour vaincre le couplage spin-orbite, le moment orbital n'étant quasiment pas affecté. Cette énergie est appelée anisotropie magnétocristalline.

Dans le cas d'un cristal à symétrie cubique, si l'aimantation est repérée par ses cosinus directeurs  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  et  $\alpha_3$ , l'énergie magnétocristalline peut s'exprimer comme :

$$E_{MC} = K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_1^2\alpha_3^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2) + K_2(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2) + \dots \quad (2.5)$$

où les  $K_i$  sont les constantes d'anisotropies d'ordre  $i$  dépendants de la température. Dans le cas d'un cristal à symétrie hexagonale d'axe  $c$ , l'aimantation formant un angle  $\Theta$  avec cet axe, cette énergie vaut :

$$E_{MC} = \sum_i K_{2i} \sin^{2i}(\Theta) \quad (2.6)$$

En pratique, il est souvent possible de négliger les termes de second ordre, et d'écrire l'énergie magnétocristalline comme dérivant d'une anisotropie uniaxiale :

$$E_{MC} = K_2 \sin^2(\Theta) \quad (2.7)$$

### 2.1.3 Effets des contraintes

Dans un empilement multicouche constitué de matériaux différents, il apparaît des contraintes mécaniques. Ces contraintes sont dues à la différence de paramètre de maille entre les différentes couches constituant le système. Pour minimiser l'énergie mécanique dans la multicouche, le système aura tendance à adopter un paramètre de maille intermédiaire entre les paramètres de maille naturels des différentes couches. Cette situation intervient lorsque les paramètres de maille des différents constituants ne sont pas trop éloignés (typiquement le désaccord ne doit pas excéder 2%). Ce régime de croissance est appelé croissance cohérente. Si le désaccord est trop important, il devient énergétiquement plus favorable de créer des dislocations dans la structure qui permettent à chaque couche de relaxer les contraintes et d'avoir un paramètre de maille proche de celui qu'elle aurait sans contrainte. De façon générale, il est possible de faire croître

une couche de façon cohérente jusqu'à une certaine épaisseur critique  $t_{crit}$  pour laquelle l'énergie élastique devient supérieure à l'énergie de formation d'une dislocation.

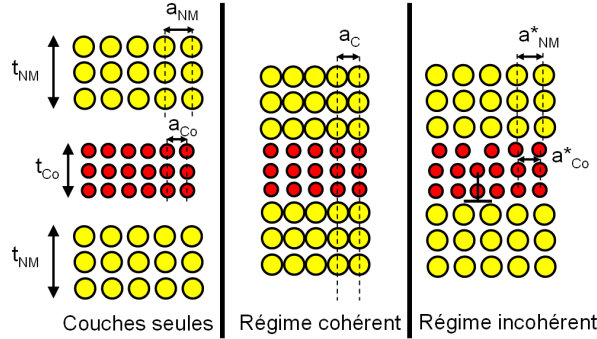


FIGURE 2.2 – Différents modes de croissance des couches minces : à gauche sont représentées les trois couches séparées ; au centre, représentation de la croissance cohérente : les couches adoptent un paramètre de maille  $a_C$  minimisant l'énergie élastique du système. À droite la croissance est incohérente, les différentes couches adoptent un paramètre de maille proche du système non contraint et des dislocations ( $\perp$ ) apparaissent.

Le magnétisme d'un matériau dépendant essentiellement des distances interatomique et de la direction de l'aimantation, à travers l'interaction d'échange d'Heisenberg et le champ cristallin, il devient possible de changer les propriétés magnétiques du matériau grâce aux contraintes. Ce couplage entre contraintes et propriétés magnétiques peut être modélisé par une énergie magnétoélastique  $E_{ME}$  :

$$E_{ME} = -K_{ME} \cos^2(\theta) \quad (2.8)$$

où la constante d'anisotropie magnétoélastique  $K_{ME}$  peut s'écrire :

$$K_{ME} = -\frac{3}{2} \lambda \sigma_{Co} = -\frac{3}{2} \lambda E_{Co} \epsilon_{Co} \quad (2.9)$$

où  $\sigma_{Co}$  sont les contraintes présentes dans la couche de cobalt,  $\lambda$  est la constante de couplage magnétoélastique,  $E_{Co}$  le module d'élasticité de la couche de cobalt et  $\epsilon_{Co}$  l'allongement relatif (ou déformation) de la maille de cobalt. Selon le signe de  $\lambda$  et de  $\epsilon_{Co}$ , cette contribution peut donner une anisotropie perpendiculaire ou planaire. Dans le cas de la croissance cohérente de la tricouche 2.1, la minimisation de l'énergie élastique ( $1/2tE\epsilon^2$ ) permet de déterminer le paramètre de maille de la structure et donne une constante d'anisotropie magnétoélastique qui vaut :

$$K_{ME} = \frac{3}{2} \lambda \frac{t_{NM} E_{NM} E_{Co}}{2t_{NM} E_{NM} + t_{Co} E_{Co}} \eta \quad (2.10)$$

où  $\eta$  est la différence relative de paramètre de maille entre la couche de cobalt et le métal non magnétique et  $E_{NM}$  le module de Young de la couche NM. Cette constante d'anisotropie a la dimension d'une énergie volumique, et sera donc contenue dans le  $K_V$  de l'équation 2.2.

Dans le cas d'une croissance incohérente, les contraintes résiduelles ne peuvent être calculées analytiquement que dans des cas particuliers. Par exemple, Chappert et Bruno[6] ont calculé que dans une couche de cobalt déposée sur un substrat rigide, la déformation résiduelle peut s'écrire :

$$\epsilon_{inc} = -\eta t_{crit}/t_{Co} \quad (2.11)$$

où  $t_{crit}$  est l'épaisseur critique à partir de laquelle une dislocation d'énergie  $1/2G_{Co}b^2$  apparaît.  $G_{Co}$  est le module de cisaillement du cobalt et  $b$  le module du vecteur de Burgers associé à cette dislocation. La valeur de  $t_{crit}$  a été calculée dans différents systèmes : Chappert et Bruno[6] pour une couche de cobalt déposée sur un substrat rigide, den Broeder[5] pour le cas d'une couche de cobalt déposée entre deux couches identiques et Van der Merwe[7, 8] dans le cas d'une multicouche symétrique infinie. Dans le cas d'une croissance incohérente, l'anisotropie magnétoélastique vaut :

$$K_{ME} = \frac{3}{2}\lambda E_{Co}\eta \frac{t_{crit}}{t_{Co}} \quad (2.12)$$

$$avec : t_{crit} = \frac{G_{Co}b}{8\eta E_{Co}} \quad (2.13)$$

Il faut noter que la dépendance en  $\eta$  s'annule en combinant les équations 2.12 et 2.13. Les contraintes résiduelles dans un système qui croît de façon incohérente créent donc une anisotropie interfaciale qui ne dépend plus directement des couches adjacentes au cobalt. Elle apparaît comme une caractéristique intrinsèque de la couche magnétique.

#### 2.1.4 Effets induits aux surfaces et interfaces

Dans les multicouches (Co/NM), les interfaces jouent un rôle particulièrement important puisqu'elles permettent de changer l'environnement local des atomes magnétiques et donc de changer radicalement les propriétés physiques du matériau. Néel a prédit[9] que cette symétrie réduite aux interfaces devait faire apparaître une anisotropie. Un atome de cobalt de surface va avoir un nombre de voisins magnétiques réduit, ce qui conduit à une modification des bandes 3d et à une séparation  $\Delta$  des niveaux d'énergie des orbitales hors du plan et des orbitales dans le plan. Bruno a calculé avec un modèle de liaisons fortes que l'anisotropie magnétique résultant du couplage spin-orbite est proportionnel à  $\Delta$ [10, 11] et à l'intensité du couplage spin-orbite. De plus, il a été montré théoriquement par Kyuno et al.[12] que l'hybridation des orbitales du cobalt avec les orbitales du matériau mis en contact aux interfaces modifie le remplissage des bandes du cobalt, ce qui peut induire une anisotropie supplémentaire. En particulier, l'hybridation des orbitales 3d du cobalt avec les orbitales du platine et de l'or produit une

anisotropie magnétique perpendiculaire interfaciale supérieure à  $1 \text{ erg.cm}^{-2}$  (figure 2.3). Cette anisotropie est d'autant plus grande que le couplage spin-orbite des atomes de platine ou d'or est important (de l'ordre de  $0,01 \text{ eV/atome}$  pour ces matériaux), et lève lui aussi la dégénérescence des orbitales atomiques, en favorisant celles hors du plan. Expérimentalement, Weller et al.[13] ont vérifié par des mesures de dichroïsme circulaire magnétique de rayons X que le moment orbital perpendiculaire des atomes de cobalt dans des multicouches (Co/Pt) et (Co/Pd) était augmenté d'environ  $0,15 \mu_B$  comparé au cobalt massif. Il faut noter que l'hybridation des orbitales atomiques dépend également des contraintes induites dans les couches[12].

En choisissant judicieusement le matériau non magnétique en contact avec le cobalt, il est donc possible de changer l'axe de facile aimantation d'une couche mince, et par exemple d'induire une anisotropie perpendiculaire.

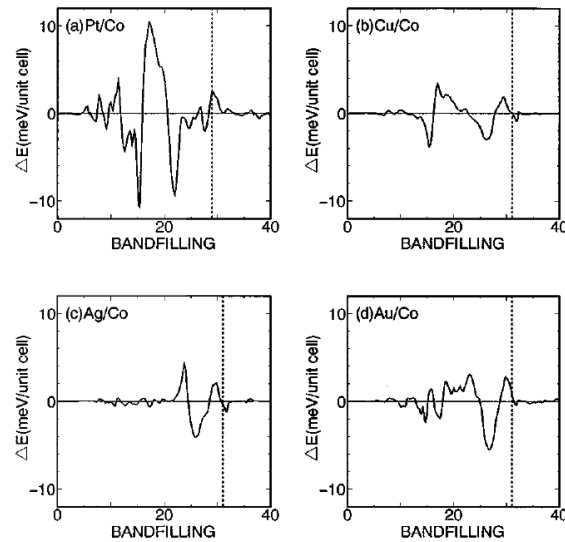


FIGURE 2.3 – Calcul de l'énergie d'anisotropie des systèmes (Co/Pt), (Co/Ag), (Co/Au) et (Co/Cu) par Kyuno et al[12]. Une énergie positive au niveau de Fermi (lignes en pointillés) donne une anisotropie perpendiculaire, et une anisotropie planaire dans le cas contraire.

### 2.1.5 Effets des rugosités et diffusions

En pratique, une multicouche présente certains défauts qu'il faut prendre en compte pour décrire totalement le système. En particulier, les phénomènes de rugosité et d'interdiffusions peuvent s'ajouter aux autres effets et modifier le comportement de la multicouche. La rugosité engendre des champs démagnétisants locaux qui vont créer une anisotropie d'interface de type dipolaire[6]. Cette anisotropie est toujours positive, apparaissant ainsi comme une anisotropie perpendiculaire interfaciale. Bruno et al. ont

calculé que pour une rugosité de 2 Å avec une longueur de corrélation de 50 Å, cette énergie est de l'ordre de 0,1 erg.cm<sup>-2</sup>. D'un autre côté, en considérant que les effets de contrainte ou d'hybridation des orbitales atomiques engendrent une anisotropie normale à la surface locale, la rugosité aura au contraire tendance à réduire l'anisotropie effective de l'ensemble par rapport à la normale au plan moyen.

L'interdiffusion entre deux métaux mis en contact dépend de la miscibilité des matériaux et des traitements thermiques subits par l'échantillon. Elle peut donner lieu à des changements importants des propriétés physiques du matériau. En particulier, les diffusions peuvent aboutir à la formation d'alliages présentant des axes d'anisotropie différents de ceux de la multicouche à interfaces parfaites, ou même détruire le magnétisme du matériau. Ces effets doivent être étudiés au cas par cas mais peuvent être qualitativement prédits en étudiant les diagrammes de phases binaires des différents éléments utilisés.

Tous les effets décrits ci-dessus peuvent être présents dans un échantillon. Ils dépendent de la composition de l'échantillon, mais également des traitements thermiques et de la façon dont l'échantillon a été fabriqué. Ainsi, deux échantillons ayant la même composition nominale mais n'ayant pas été fabriqués par la même méthode de dépôt (par exemple évaporation ou pulvérisation cathodique) peuvent avoir des comportements différents. Il est en général difficile de déterminer à partir des seules mesures magnétiques quelle est l'influence de chaque phénomène. Cependant, celles-ci permettent en général d'extraire les paramètres phénoménologique du modèle décrit par l'équation 2.2.

## 2.2 Détermination des contributions d'anisotropie de volume et d'interface

La détermination des constantes d'anisotropie volumique et surfacique peuvent se faire à partir de mesures magnétiques sur des échantillons type NM/Co/NM dont l'épaisseur de cobalt varie. En mesurant l'anisotropie effective des échantillons pour chaque épaisseur de cobalt, il est possible de remonter aux valeurs de  $K_V$  et  $K_S$  grâce à l'équation 2.2. En pratique, il est plus commode de la multiplier par  $t_{Co}$  :

$$K^{eff}t_{Co} = (K_V - 2\pi M_S^2)t_{Co} + 2K_S \quad (2.14)$$

Le graphe ainsi obtenu est une droite de pente  $K_V - 2\pi M_S^2$  et qui coupe l'axe des ordonnées en  $2K_S$ , comme le montre la figure 2.4. Elle permet également de mesurer l'épaisseur pour laquelle l'aimantation passe d'une configuration perpendiculaire au plan des couches à une configuration planaire. Cette épaisseur  $t_C$  appelée épaisseur critique ou épaisseur de basculement d'anisotropie est l'épaisseur pour laquelle l'anisotropie effective s'annule. Sur le graphe, il s'agit de la valeur de  $t_{Co}$  pour laquelle la droite  $K^{eff}t_{Co}$  intersecte l'axe des abscisses.

Le graphe obtenu en pratique peut être légèrement différent, en particulier lorsque le système croît de façon cohérente à faible épaisseur, puis devient incohérent à plus

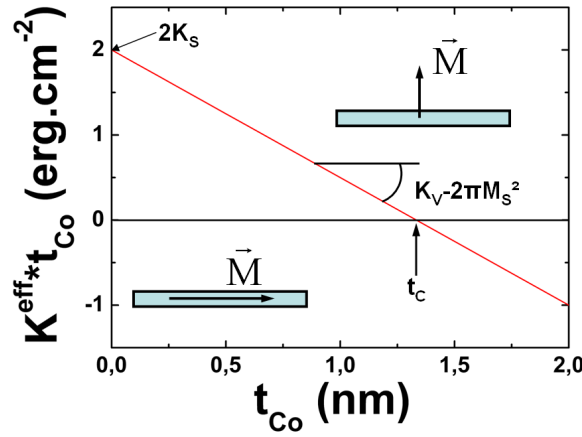


FIGURE 2.4 – Variation de  $K^{\text{eff}} t_{\text{Co}}$  en fonction de l'épaisseur de cobalt  $t_{\text{Co}}$  d'un système NM/Co/NM présentant une anisotropie interfaciale perpendiculaire.

forte épaisseur. C'est le cas par exemple du système Cu/Ni (figure 2.5). Dans ce cas, une rupture de pente apparaît au niveau de l'épaisseur critique  $t_{\text{crit}}$  à partir de laquelle le système devient incohérent : l'anisotropie volumique  $K_V$  change de valeur au delà de ce point particulier. Il est possible d'appliquer dans ce cas l'équation 2.14 en séparant les deux régimes.

De plus, lorsque les longueurs caractéristiques des diffusions et des rugosités sont de l'ordre de grandeur de l'épaisseur de la couche de Co, il apparaît des déviations par rapport à la loi donnée par l'équation 2.14. Enfin, le modèle décrivant la couche magnétique comme étant composée d'un volume plus deux interfaces perd sa pertinence lorsque l'épaisseur de cette couche est inférieure à trois plans atomiques.

Dans la suite de ce chapitre, les cycles magnétiques et le champ d'anisotropie des échantillons sont mesurés par effet Hall extraordinaire par la méthode décrite précédemment, tandis que des mesures VSM et SQUID sont utilisées pour déterminer l'aimantation à saturation des échantillons. La combinaison de ces mesures permet de déterminer les paramètres nécessaires au calcul des anisotropies volumique et surfacique.

### 2.3 Anisotropie perpendiculaire des tricouches Pt/Co/Pt et Pd/Co/Pd

Dans la suite, l'équation 2.14 sera utilisée pour déterminer l'anisotropie à l'interface Co/Pt et Co/Pd. Pour ce faire, l'anisotropie effective d'échantillons  $\text{Ta}_3/\text{Pt}(\text{Pd})_5/\text{Co}_{t_{\text{Co}}}/\text{Pt}(\text{Pd})_2$  est mesurée par EHE et VSM à température ambiante sur les échantillons bruts de dépôt, avec une épaisseur de cobalt variant de 0,2 à 3 nm.

Dans ces structures, la couche de tantale permet d'avoir une couche d'accroche qui



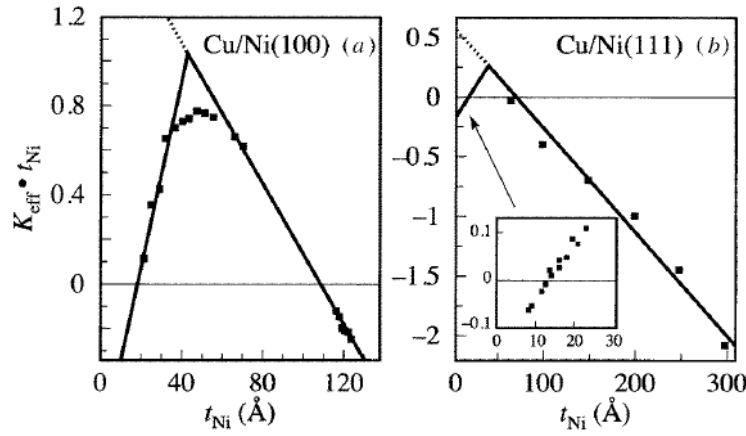


FIGURE 2.5 – Variation de  $K^{eff}t_{Co}$  en fonction de l'épaisseur de nickel  $t_{Ni}$  du système Cu/Ni/Cu présentant une croissance cohérente aux faibles épaisseurs, puis une croissance incohérente au delà de  $t_{crit}$ . Le changement de pente est ici particulièrement visible (d'après [14]).

donne une meilleure adhérence au dépôt que celle obtenue sur l'oxyde de silicium. De plus, elle donne une croissance de la couche de platine ou de palladium de meilleure qualité. En particulier, la mosaïcité de la couche tampon cubique face centrée (cfc) orientée dans la direction (111) sera réduite. Ceci résulte en une augmentation de l'anisotropie perpendiculaire de la couche de cobalt. Le platine et le palladium donneront à priori des propriétés relativement proches en terme de croissance. En effet, ces deux métaux possèdent une structure cfc (111), leur paramètre de maille ne diffèrent que de 0,7% ( $t_{Pt}=3,92$  Å et  $t_{Pd}=3,89$  Å). Les interdiffusions Co-Pt et Co-Pd doivent être relativement similaires d'après les diagrammes de phases binaires[15, 16], qui indiquent que de multiples alliages CoPt et CoPd sont stables à température ambiante. Les différences attendues entre ces deux métaux sont donc essentiellement dues à des effets électroniques : hybridations 3d(Co)-5d(Pt) et 3d(Co)-4d(Pd).

Dans la suite de cette section, tous les échantillons sont mesurés bruts de dépôt sur les couches continues. Le champ coercitif de ces couches varie de 30 à 150 Oe. Ce champ dépend de nombreux paramètres tels que l'aimantation de la couche, son anisotropie ou son épaisseur. Cependant, ce paramètre ne nous intéresse pas particulièrement ici, en particulier parce qu'il dépendra de la taille latérale du dispositif final.

La figure 2.6 montre les cycles d'hystérésis mesurés par effet Hall extraordinaire en champ perpendiculaire pour différentes épaisseurs de cobalt. Ces cycles présentent une réorientation d'aimantation classique lorsque l'épaisseur de cobalt augmente. L'épaisseur critique de basculement d'anisotropie vaut  $t_{C,Pt}=1,4$  nm pour le platine, et  $t_{C,Pd}=0,9$  nm pour le palladium. Ceci est cohérent avec les résultats de la littérature qui indiquent que l'anisotropie interfaciale Co/Pt est supérieure à celle Co/Pd[4, 5].

La figure 2.7 présente les mesures d'anisotropie effective et d'aimantation à sa-



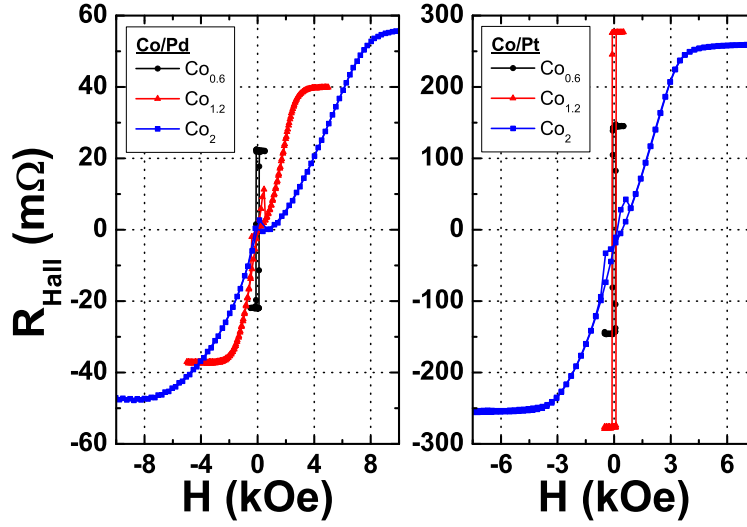


FIGURE 2.6 – Cycles d’hystérésis mesurés par EHE des structures Ta/Pd/Co/Pd (à gauche) et Ta/Pt/Co/Pt (à droite) pour différentes épaisseurs de Co, indiquées en nm. Les pics apparaissant sur les cycles des échantillons planaires sont dus à une contribution parasite de magnétorésistance anisotrope.

turation des échantillons en fonction de l’épaisseur de la couche de cobalt. Le calcul de  $K^{eff}t_{Co}$  est également présenté. Une régression linéaire est effectuée sur ces données, en écartant les épaisseurs de cobalt inférieures à 1 nm pour lesquelles le modèle n’est plus valide. La valeur d’anisotropie interfaciale mesurée pour une interface Co/Pt vaut  $K_{S,Pt}=0,9(\pm 0,05)$  erg.cm<sup>-2</sup> et celle pour une interface Co/Pd vaut  $K_{S,Pd}=0,55(\pm 0,05)$  erg.cm<sup>-2</sup>. Ces valeurs sont cohérentes avec celles mesurées par d’autres équipes[4, 5]. L’anisotropie volumique mesurée est de  $-1,2(\pm 0,1)10^7$  erg.cm<sup>-3</sup> dans les deux cas. Elle correspond essentiellement à l’anisotropie de forme  $-2\pi M_S^2$  de l’échantillon, le terme  $K_V$  déduit est deux ordres de grandeur inférieur. Les mesures ne sont donc pas assez précises pour déterminer sa valeur. L’aimantation à saturation (mesurée au VSM) pour cette gamme d’épaisseur de cobalt est constante,  $M_S=1430(\pm 50)$  emu.cm<sup>-3</sup>, proche de l’aimantation à saturation du cobalt massif.

Les valeurs mesurées d’anisotropie surfacique et d’épaisseur critique semblent indiquer que le système Co/Pt est supérieur en terme d’anisotropie perpendiculaire au système Co/Pd. Cependant, ces valeurs sont extrapolées à partir de mesures effectuée sur des épaisseurs de cobalt supérieures à 1 nm. Ces épaisseurs ne sont pas celles utilisées pour obtenir le maximum d’anisotropie effective. Dans ces structures, il est préférable de faire croître des couches de cobalt aussi fines que possible pour maximiser l’effet des interfaces donnant une anisotropie perpendiculaire par rapport aux effets volumiques donnant une anisotropie planaire.

Pour des épaisseurs de cobalt inférieures à 0,8 nm, les valeurs mesurées de  $K^{eff}t_{Co}$  pour la structure avec platine sont inférieures à celles prévues par le modèle extrapolé. Ceci

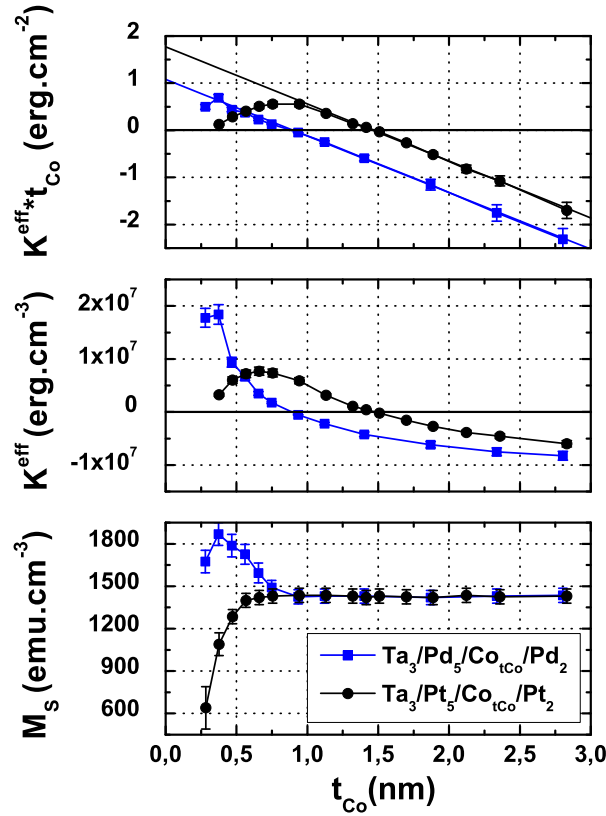


FIGURE 2.7 – De haut en bas : mesure des anisotropies d’interface et de volume à partir de l’équation 2.14; anisotropie effective  $K^{eff}$  des multicouches  $Co/Pt$  et  $Co/Pd$  en fonction de l’épaisseur de cobalt  $t_{Co}$ ; aimantation à saturation  $M_s$  des échantillons.

est corrélé avec une diminution de l’aimantation à saturation d’un facteur 2 entre une couche de 1 nm de cobalt et une couche de 0,3 nm. Ce comportement peut être soit lié au passage d’une croissance cohérente à une croissance incohérente aux alentours de 0,8 nm de cobalt comme décrit dans le travail de Jungblut et al.[14], soit à la formation d’alliages  $CoPt$  aux interfaces réduisant l’aimantation. Cette seconde hypothèse semble la plus probable étant donné la différence de paramètre de maille de 10% entre le cobalt et le platine qui empêche toute croissance cohérente. Pour définitivement écarter l’hypothèse d’un changement de croissance, une série d’échantillons où l’épaisseur de la couche tampon de platine est changée ont été déposés. Cette série d’échantillons  $Ta_3/Pt_{tPt}/Co_{0,4 \text{ et } 2}/Pt_2$  ne montre aucune différence d’anisotropie ou d’aimantation à saturation lorsque l’épaisseur  $t_{Pt}$  varie de 2 à 30 nm, pour les deux épaisseurs de cobalt testées. Or, ceci est en désaccord avec l’équation 2.10 qui prévoit une augmentation d’anisotropie magnétoélastique avec l’épaisseur de la couche de  $Pt$ . Il est donc plus raisonnable d’attribuer cette diminution d’anisotropie et d’aimantation (à température ambiante) aux faibles épaisseurs à la formation d’alliages  $CoPt$  à faible température de Curie.

Les structures en palladium ne présentent cet écart au modèle que pour des épaisseurs de cobalt inférieures à 0,3 nm ce qui semble indiquer que l'interdiffusion Co-Pt est supérieure à l'interdiffusion Co-Pd. Cette différence de diffusion est en cohérence avec le fait que les alliages CoPd ne sont que métastables[16] et auront donc plus de mal à se former que des alliages CoPt qui eux sont thermodynamiquement stables. De son côté, l'aimantation à saturation (mesurée par rapport au volume déposé de cobalt) augmente avec la diminution de l'épaisseur de cobalt contrairement à la structure avec platine. Cet effet est dû à l'hybridation des orbitales 3d du cobalt et 4d du palladium qui induit une polarisation magnétique des atomes de palladium[17, 18, 19]. Daalderop et al. ont calculé par des calculs ab-initio que cette polarisation était significative pour les 2 couches de palladium adjacentes à l'interface[20].

Cette polarisation magnétique du palladium rend cependant la mesure de l'anisotropie effective biaisée. En effet, le volume magnétique dans ce cas n'est plus égal au volume de Co mais est plus important. Cependant, il reste juste de dire que la structure  $\text{Ta}_3/\text{Pd}_5/\text{Co}_{0,4}/\text{Pd}_2$  est plus stable que la structure  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_5/\text{Co}_{0,4}/\text{Pt}_2$ . Pour avoir une anisotropie perpendiculaire maximale, la structure Co/Pd est donc meilleure que la structure Co/Pt. Il est possible de distinguer dans ces structures deux régimes :

- A forte épaisseur de cobalt ( $t_{\text{Co}} \geq 1$  nm), l'anisotropie surfacique Co/Pt étant supérieure à l'anisotropie surfacique Co/Pd, il est possible d'obtenir des couches de cobalt perpendiculaires plus épaisses avec du platine qu'avec du palladium.
- A faible épaisseur de cobalt ( $t_{\text{Co}} \leq 0,8$  nm), l'interdiffusion Co/Pt réduit l'anisotropie de la multicouche. Au contraire, le système Co/Pd ne présente pas cette réduction, et en dessous de 0,6 nm devient plus stable que le système Co/Pt.

Le platine est donc plus adapté pour des dispositifs nécessitant un volume magnétique important et une faible anisotropie perpendiculaire alors que le palladium est plus adapté dans les structures où l'anisotropie perpendiculaire doit être la plus forte possible.

## 2.4 Asymétrie d'anisotropie interfaciale entre interfaces supérieure et inférieure

### 2.4.1 Mise en évidence de l'asymétrie

Les études effectuées jusqu'à maintenant par différentes équipes de recherche considèrent que les deux interfaces d'une tricouche NM/Co/NM sont équivalentes. Cependant cette hypothèse n'a jamais été vérifiée. Il est possible que les propriétés physiques d'une interface diffèrent profondément suivant la séquence de dépôt. Une interface Co/NM résulte soit du dépôt de cobalt sur le métal non magnétique (interface dite "inférieure"), soit du dépôt du métal non magnétique sur du cobalt (interface dite "supérieure"). Les alliages formés par interdiffusion aux interfaces peuvent être différents dans les deux cas. Le graphique 2.7 ne permet cependant pas de séparer la contribution à l'anisotropie perpendiculaire de chaque interface.

Il est par contre possible d'estimer la contribution de chaque interface en remplaçant une des couches de platine par un autre métal, qui de préférence n'apporte pas d'anisotropie interfaciale. Cependant, le remplacement de la couche tampon de platine peut également induire des changements de texture ou de rugosité. Pour des raisons de simplicité, il est préférable de changer uniquement la couche supérieure pour étudier les effets du changement d'interface.

Les échantillons déposés pour étudier l'influence de chaque interface sont donc  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_5/-\text{Co}_{t\text{Co}}/\text{X}_1/\text{Pt}_2$ . L'épaisseur de cobalt varie de 0,3 à 3 nm, X est du tantale, du cuivre, de l'aluminium du magnésium ou du ruthénium. La couche de platine de couverture protège l'échantillon de l'oxydation. Cette couche de platine n'a pas d'effet sur le magnétisme de la couche de cobalt. L'anisotropie et l'aimantation mesurées ne sont pas changées si la couverture de platine est remplacée par du tantale ou de l'aluminium. Les résultats obtenus avec ces différentes couches sont résumés sur la figure 2.8 et comparés aux résultats obtenus dans l'étude précédente où la couche de couverture est en platine.

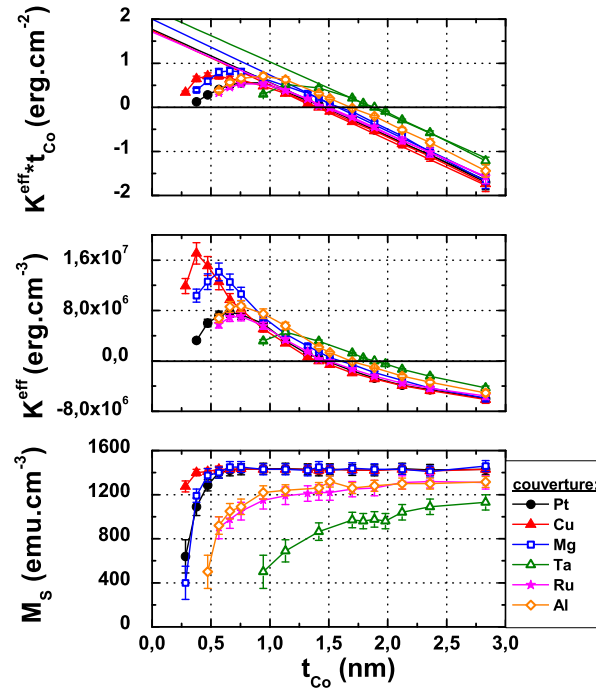


FIGURE 2.8 – De haut en bas : mesure des anisotropies d'interface et volumique pour différentes couches de couverture X dans la structure  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_5/\text{Co}_{t\text{Co}}/\text{X}_1/\text{Pt}_2$  ; anisotropie effective en fonction de l'épaisseur de cobalt pour les différentes couches de couvertures ; aimantation à saturation des échantillons.

Les différentes valeurs obtenues pour les constantes d'anisotropies sont résumées dans le tableau 2.1 :

Pour tous les matériaux testés, l'anisotropie volumique  $K_V$  est de deux ordres de

X	Pt	Cu	Mg
$K_{S,Pt} + K_{S,X}$ (erg.cm <sup>-2</sup> )	1,8(±0,1)	1,8(±0,1)	2,0(±0,1)
$K_V - 2\pi M_S^2$ (10 <sup>7</sup> erg.cm <sup>-3</sup> )	-1,2(±0,2)	-1,2(±0,2)	-1,2(±0,2)
$t_C$ (nm)	1,45(±0,05)	1,45(±0,05)	1,55(±0,05)
X	Al	Ru	Ta
$K_{S,Pt} + K_{S,X}$ (erg.cm <sup>-2</sup> )	2,0(±0,1)	1,7(±0,1)	2,2(±0,2)
$K_V - 2\pi M_S^2$ (10 <sup>7</sup> erg.cm <sup>-3</sup> )	-1,2(±0,2)	-1,2(±0,2)	-1,2(±0,2)
$t_C$ (nm)	1,70(±0,10)	1,45(±0,05)	2,00(±0,10)

TABLE 2.1 – Anisotropies surfaciques et volumiques et épaisseurs critiques mesurées à partir de la figure 2.8.

grandeurs plus faible que l'anisotropie de forme  $-2\pi M_S^2$ . Les anisotropies magnétocristalline ou magnétoélastique (d'origine cohérente) sont donc à chaque fois négligeables dans ces systèmes comparées aux anisotropies de forme et interfaciale. Les valeurs déduites d'après la figure 2.8 sont cependant biaisées pour le ruthénium, l'aluminium et le tantale. L'aimantation à saturation mesurée pour ces métaux varie avec l'épaisseur sur toute la gamme testée, indiquant la présence d'une couche de cobalt magnétiquement morte. Il faut prendre en compte cette couche morte pour obtenir les valeurs réelles des anisotropies. L'épaisseur de couche magnétiquement morte  $t_{morte}$  peut être facilement déduite de la courbe d'aimantation de la figure 2.8. Pour cela, il suffit de tracer l'évolution de l'aimantation multipliée par l'épaisseur de cobalt déposée en fonction de cette épaisseur (figure 2.9). Le résultat donne des droites dont la pente vaut l'aimantation à saturation du cobalt magnétique et qui coupent l'axe des abscisses en  $t_{morte}$ .

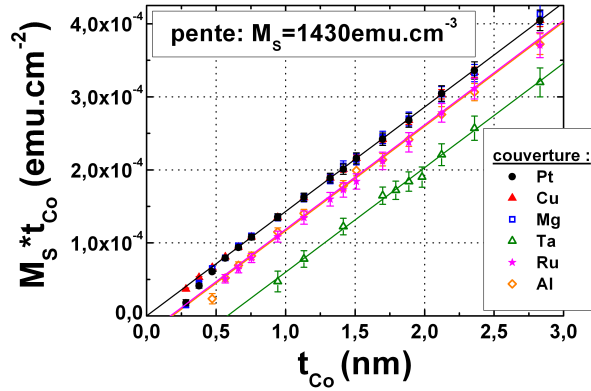


FIGURE 2.9 – Évolution de  $M_S t_{Co}$  en fonction de l'épaisseur de cobalt déposée  $t_{Co}$ . Les couvertures de tantale, aluminium et ruthénium donnent une couche magnétiquement morte.

Les pentes de la figure 2.9 montrent que toutes les couches X donnent la même aimantation à saturation. Cependant, les couches de tantale, aluminium et ruthénium

donnent une couche magnétiquement morte car les droites ne coupent pas l'axe des abscisses en zéro, contrairement aux couches de platine, cuivre et magnésium. Il est ensuite possible de calculer les valeurs corrigées d'anisotropie effective, volumique et surfacique en utilisant l'épaisseur de cobalt magnétique corrigée  $t_{Co}^{corr}$  qui correspond à l'épaisseur de cobalt déposée à laquelle a été retirée l'épaisseur de couche morte. Les graphes corrigés sont présentés en figure 2.10.

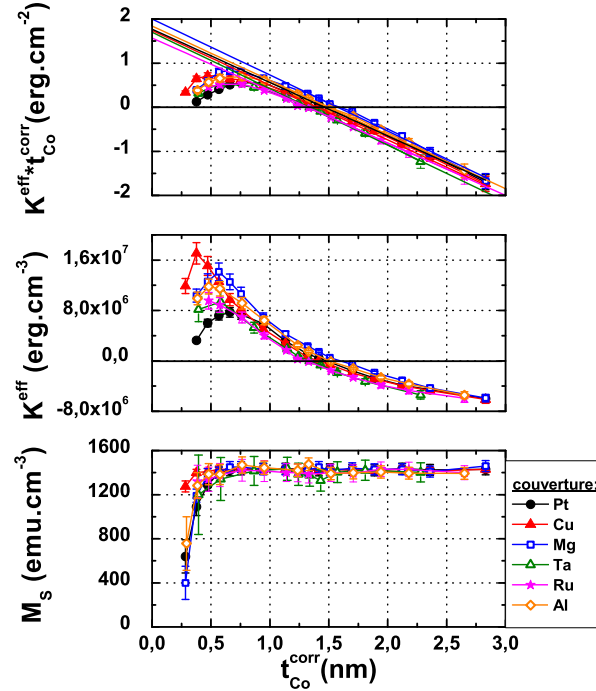


FIGURE 2.10 – Graphes de la figure 2.8 corrigés en retirant une épaisseur magnétiquement morte à  $t_{Co}$ .

Comme prévu, lorsque la correction est effectuée, l'aimantation à saturation est indépendante de l'épaisseur de cobalt, tant que celle-ci ne descend pas en dessous de 0,6 nm, et du matériau de couverture utilisé. Les valeurs d'anisotropies et d'épaisseurs de couches mortes sont résumées dans le tableau 2.2 :

Ces mesures montrent que l'anisotropie surfacique ne dépend pas vraiment du métal de couverture. Si, dans la structure Pt/Co/Pt, chaque interface donne une anisotropie surfacique équivalente de  $0,9 \text{ erg.cm}^{-2}$ , alors cela veut dire d'après ces mesures que le cuivre, l'aluminium, le ruthénium, le magnésium et le tantale donnent la même anisotropie. Cette hypothèse est contraire aux calculs théoriques et aux mesures effectuées sur des multicouches Co/X dans la littérature[4]. Comme tous ces matériaux ont des paramètres de maille, des couplages spin-orbite et des structures de bandes différentes, il est bien plus plausible que l'interface inférieure induise une anisotropie perpendiculaire significativement supérieure, presque un ordre de grandeur plus grande que l'anisotro-

X	Pt	Cu	Mg
$K_{S,Pt} + K_{S,X}$ (erg.cm <sup>-2</sup> )	1,8(±0,1)	1,8(±0,1)	2,0(±0,1)
$K_V - 2\pi M_S^2$ (10 <sup>7</sup> erg.cm <sup>-3</sup> )	-1,2(±0,2)	-1,2(±0,2)	-1,2(±0,2)
$t_C^{corr}$ (nm)	1,45(±0,10)	1,45(±0,10)	1,55(±0,10)
$t_{morte}$ (nm)	0,00	0,00	0,00
X	Al	Ru	Ta
$K_{S,Pt} + K_{S,X}$ (erg.cm <sup>-2</sup> )	1,8(±0,2)	1,6(±0,2)	1,7(±0,2)
$K_V - 2\pi M_S^2$ (10 <sup>7</sup> erg.cm <sup>-3</sup> )	-1,2(±0,2)	-1,2(±0,2)	-1,3(±0,2)
$t_C^{corr}$ (nm)	1,50(±0,20)	1,30(±0,20)	1,50(±0,20)
$t_{morte}$ (nm)	0,20(±0,02)	0,20(±0,02)	0,58(±0,05)

TABLE 2.2 – Anisotropies surfaciques et volumiques, épaisseurs critiques corrigées et épaisseurs de couche morte utilisées dans la figure 2.10.

pie perpendiculaire induite à l'interface supérieure, quelle que soit la couverture utilisée. Ceci peut s'expliquer par une diffusion différente entre l'interface supérieure et l'interface inférieure. Il est probable qu'il y ait moins de diffusion au niveau de l'interface inférieure qu'au niveau de l'interface supérieure. La pulvérisation d'atomes de cobalt sur la couche de platine ne semble pas donner lieu à un mélange, alors que la pulvérisation de platine sur du cobalt provoque une interdiffusion entre les deux couches. Il est possible que les atomes de platines pulvérisés arrivent sur la surface de l'échantillon avec plus d'énergie que les atomes de cobalt, et sont donc plus susceptibles de diffuser. Cette tendance peut être observée sur des mesures de sonde tomographique[35]. D'autre part il se peut que la nature de l'alliage qui se forme à chaque interface soit différente. Par exemple, il pourrait se former un alliage Co<sub>3</sub>Pt lorsque du cobalt est déposé sur du platine alors qu'il se formerait un alliage CoPt<sub>3</sub> lorsque du platine est déposé sur du cobalt. Enfin, il est possible que toute l'anisotropie perpendiculaire soit induite lors de la croissance sous contrainte de la couche de cobalt sur la couche tampon de platine et que le dépôt de la couche supérieure n'induisse pas de contrainte supplémentaire.

Il est possible de confirmer cette asymétrie d'anisotropie d'interface en changeant la couche tampon de platine pour examiner l'influence de la couche de couverture. Pour cela, le remplacement de la couche de platine inférieure par du cuivre semble approprié : de cette façon, il n'y a pas de diffusion à l'interface inférieure, et peu de contraintes seront induites à cette interface, car cobalt et cuivre possèdent des paramètres de maille très proches, contrairement au système cobalt-platine. Cependant, il convient de garder à l'esprit que des échantillons possédant des couches tampons différentes peuvent avoir une croissance différente et ne sont donc pas directement comparables. Les échantillons déposés sont Ta<sub>3</sub>/Cu<sub>5</sub>/Co<sub>tCo</sub>/Pt<sub>2</sub> et Ta<sub>3</sub>/Cu<sub>5</sub>/Co<sub>tCo</sub>/Cu<sub>2</sub>/Pt<sub>2</sub>. Les propriétés magnétiques sont étudiées de la même manière que précédemment. Il n'y a pas de couche magnétiquement morte dans ces systèmes. Les résultats sont résumés sur la figure 2.11.

Les résultats montrent encore une fois que la couche de couverture de platine apporte une anisotropie négligeable au système comparé à la couverture de cuivre, puisque la somme des anisotropies d'interface vaut 1,0(±0,1) erg.cm<sup>-2</sup> pour les couches de co-

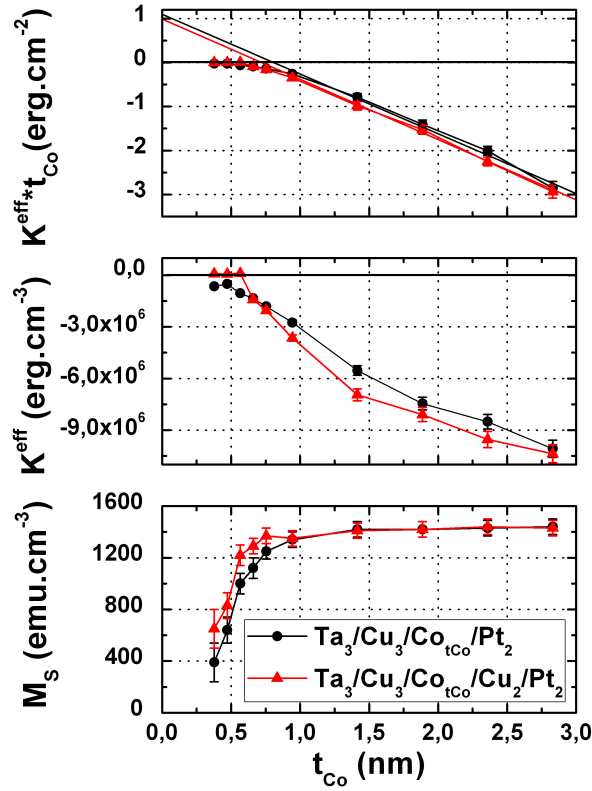


FIGURE 2.11 – Mesure des anisotropies d’interface et volumique (en haut), de l’anisotropie effective (au milieu) et de l’aimantation des couches Ta/Cu/Co/Cu/Pt (en rouge) et Ta/Cu/Co/Pt (en noir) en fonction de l’épaisseur de cobalt  $t_{Co}$ .

balt recouvertes de cuivre et  $1,1(\pm 0,1) \text{ erg.cm}^{-2}$  pour celles recouvertes de platine. Ces valeurs montrent que les contraintes ou les effets d’hybridations induits à l’interface supérieure sont négligeables, et confirment donc les mesures précédentes effectuées avec une couche tampon de platine. De manière similaire, la couverture de cuivre limite l’interdiffusion à l’interface inférieure, ce qui permet d’obtenir des couches de meilleure qualité à faible épaisseur de cobalt.

L’anisotropie d’interface de  $1,0(\pm 0,1) \text{ erg.cm}^{-2}$  (vraisemblablement essentiellement induite à l’interface inférieure) mesurée dans le système Cu/Co/Cu (111) est élevée comparée aux études effectuées par d’autres groupes. Kyuno et al. ont calculé qu’elle ne devait être que de  $0,12 \text{ erg.cm}^{-2}$ [12], tandis que England et al. ont mesuré dans ce genre de système fabriqué par pulvérisation cathodique une anisotropie interfaciale quasiment nulle[21]. Il est remarquable que la valeur d’anisotropie interfaciale Cu/Co soit égale à celle trouvée pour Pd/Co. Cela signifie qu’il est possible en théorie d’utiliser du cuivre à la place du palladium et obtenir une forte anisotropie perpendiculaire. Cependant, comme pour le cas du platine, l’anisotropie mesurée dévie de la loi linéaire aux faibles



épaisseurs de cobalt, cette diminution étant corrélée avec une baisse d'aimantation. Comme cuivre et cobalt ne peuvent se mélanger, il est vraisemblable que cet effet soit dû à la rugosité de la couche tampon de cuivre, et à une croissance du cobalt en îlots. Cependant, il est possible de fabriquer des échantillons à aimantation hors du plan avec seulement des couches de cuivre, puisque l'échantillon avec 0,6 nm de cobalt possède une anisotropie effective de  $1,0(\pm 0,1)10^5 \text{ erg.cm}^{-3}$ ; est 100% rémanent, et a un champ coercitif de 5 Oe.

Il est possible d'étudier les effets de diffusion en réalisant des mesures d'aimantation en fonction de la température. Ces mesures sont réalisées en saturant l'échantillon à 10 K avec un champ de 20 kOe, puis en mesurant l'aimantation rémanente dans la direction perpendiculaire au plan des couches en fonction de la température. Les mesures effectuées jusqu'à 400 K ne modifient la structure de l'échantillon. Dans ces mesures, l'aimantation est ramenée au volume de cobalt déposé, et ne prend donc pas en compte l'épaisseur de couche morte. La contribution des impuretés magnétiques du substrat à basses températures a été soustraite. La perte d'aimantation indiquée par les flèches sur la figure 2.12 est liée à l'apparition de domaines magnétiques perpendiculaires donnant une aimantation globale nulle. Avant cette température, l'aimantation rémanente est égale à l'aimantation à saturation. En écartant les valeurs au delà de la température de nucléation, ces courbes peuvent être en première approximation modélisées par une loi d'aimantation dérivée du modèle d'excitation des ondes de spin :

$$M_S(T) = M_S(0) \left( 1 - B \left( \frac{T}{T_C} \right)^{3/2} \right) \quad (2.15)$$

où  $B$ ,  $M_S(0)$  et  $T_C$  sont les paramètres ajustables. Les valeurs de  $T_C$  extrapolées sont cependant à prendre avec précaution. Elles sont extraites d'un modèle utilisé pour des matériaux massifs, qui bien que présentant une validité satisfaisante pour des couches minces dans certains cas[22, 23], peut donner des écarts relativement importants dans d'autres. Des expressions dérivées du modèle du champ moléculaire de la forme  $M_S(T) = M_S(0)(1 - (T/T_C))^\beta$  peuvent être également utilisées, mais là encore les résultats obtenus sont relativement peu fiables lorsqu'à la fois  $\beta$  et  $T_C$  sont inconnus[25]. La meilleure méthode serait de mesurer la susceptibilité magnétique des échantillons et d'en déduire la température de Curie. Cependant, cela nécessite de faire des mesures au-delà de cette température de Curie, c'est à dire faire un recuit qui provoque des diffusions changeant la nature de l'échantillon.

Il est possible de classer les matériaux de couverture en trois groupes qui permettent d'expliquer les variations d'aimantation et d'anisotropie en fonction de l'épaisseur de cobalt déposée et de la température :

**Cas du cuivre** Le cuivre est un métal possédant une structure cfc (111) et un paramètre de maille très proche de celui du cobalt (différence de 1,6%). De plus, le diagramme de phase binaire Co/Cu indique que ces deux métaux ont une miscibilité inférieure à 0,1%[26]. Du fait de l'immiscibilité de ces deux métaux, il n'y a pas d'in-

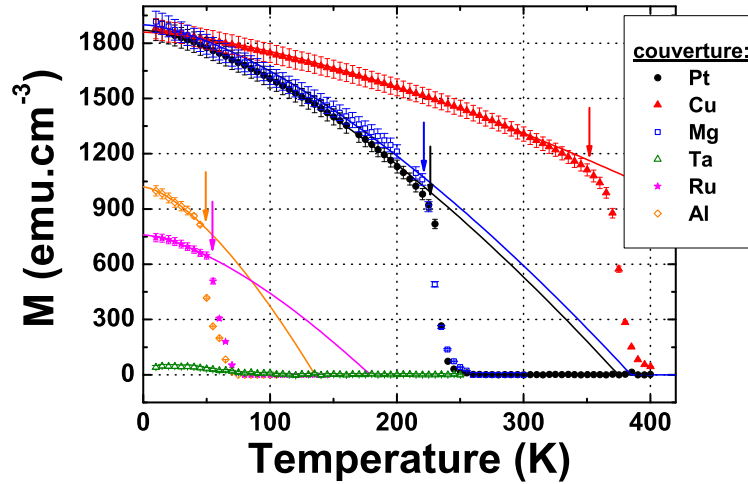


FIGURE 2.12 – Mesure de l’aimantation rémanente d’une couche de cobalt d’épaisseur nominale de 0,3 nm pour des structures avec différentes couches de couverture. Les pertes d’aimantation indiquées par les flèches sont dues à l’apparition de domaines magnétiques perpendiculaires. Les ajustements de l’équation 2.15 sont représentés en traits pleins.

terdiffusion à l’interface supérieure, et la couche de 0,3 nm doit vraisemblablement être du cobalt pur. Le modèle de l’équation 2.14 est donc valable à de plus faibles épaisseurs de cobalt que dans le cas d’une couverture de platine. L’anisotropie effective maximale obtenue est 2 fois supérieure à celle de la structure Pt/Co/Pt car il est possible de faire croître des couches de cobalt plus fines sans être limité par les interdiffusions dont les effets se font sentir en dessous de 0,8 nm de cobalt. La température de Curie extrapolée est la plus importante de toutes les couches, valant aux alentours de  $675(\pm 30)$  K. Cependant, cette valeur est à prendre avec précaution car dépendante du modèle utilisé, comme expliqué précédemment. L’aimantation à 0 K donne un moment magnétique par atome de cobalt de  $2,2(\pm 0,2) \mu_B$ , bien supérieur à la valeur théorique de  $1,7 \mu_B$ . Cet effet peut éventuellement être dû à une polarisation magnétique du platine (qui n’est cependant pas mesurable à température ambiante dans ces empilements) et/ou à une densité atomique plus importante que celle calculée avec le paramètre de maille du cobalt massif et une maille cfc et/ou à une augmentation du moment du cobalt dû aux effets de taille finie. Pour ce dernier effet, Bruno a calculé qu’une monocouche de cobalt cfc (111) présente un moment par atome de  $1,9 \mu_B$ [10].

**Cas du platine et du magnésium** Magnésium et platine sont des matériaux miscibles avec le cobalt. Les alliages  $\text{CoPt}_3$  et  $\text{Co}_2\text{Mg}$  massifs sont magnétiques, mais possèdent des températures de Curie plus faibles que le cobalt massif (typiquement aux alentours de 470 K pour  $\text{CoPt}_3$ [27] et 320 K pour  $\text{Co}_2\text{Mg}$ [28], à comparer aux 1390 K du cobalt). Lorsque l’épaisseur de cobalt est supérieure à 1 nm, l’influence de la présence de cet alliage est négligeable. Non seulement la couche de cobalt non allié donne une

contribution bien plus importante que l'alliage, mais elle permet en plus par couplage d'échange d'augmenter la température de Curie de l'alliage, et augmente donc d'autant son aimantation (cet effet est décrit dans le chapitre 5). Par contre, lorsque l'épaisseur de cobalt est inférieure à 0,8 nm, l'influence de l'alliage devient mesurable.

Les mesures d'aimantation rémanente effectuées au SQUID à basse température sur une couche de 0,3 nm de cobalt couverte par du platine ou du magnésium présentées en figure 2.12 montrent que tous les atomes de cobalt répondent magnétiquement à basse température puisque les aimantations  $M_S(0)$  extrapolées à 0 K sont identiques à celle mesurée sur une couche recouverte par du cuivre. Il n'y a donc pas de couche magnétiquement morte dans l'alliage qui se forme à l'interface supérieure. La température de Curie des deux systèmes alliés ( $370(\pm 20)$  K) est par contre plus faible que dans le cas d'une couche de 0,3 nm de cobalt pur, et l'aimantation mesurée à température ambiante est donc plus faible.

L'écart des courbes  $K^{eff}t_{Co}(t_{Co})$  à faible épaisseur par rapport à l'équation 2.14 s'explique donc par la présence de cet alliage magnétique. Il semble par ailleurs que la couverture de magnésium donne une anisotropie interfaciale supérieure à celle du platine, bien que cet effet reste à la limite de l'erreur de mesure. Ceci peut éventuellement être dû à une légère oxydation de la couche de magnésium donnant une contribution d'anisotropie perpendiculaire.

**Cas du ruthénium, aluminium et tantale** Ces trois matériaux sont miscibles avec le cobalt, et les différents alliages qui se forment avec ces matériaux ne sont pas magnétiques[15, 29, 30]. Dans ces cas, l'alliage formé à l'interface supérieure donne une couche magnétiquement morte qu'il faut prendre en compte dans le calcul des anisotropies et de l'aimantation. L'aimantation mesurée à basse température est réduite comparée aux cas précédents. Dans le cas du ruthénium ou de l'aluminium, il reste une certaine quantité de cobalt pur, puisque l'épaisseur de couche morte mesurée est inférieure à l'épaisseur de la couche de cobalt déposée. Dans le cas du tantale, la faible aimantation observée peut s'expliquer par la présence d'agrégats de cobalt qui ne se sont pas totalement alliés à la couche de couverture. Dans tous les cas, la température de Curie extrapolée est plus faible que dans les cas précédents car le volume de cobalt magnétique est plus faible.

## 2.4.2 Remplacement du platine par du palladium

Cet effet d'asymétrie se retrouve également dans le cas où les couches de platine sont remplacées par du palladium.

La figure 2.13 montre que de nouveau, l'extrapolation des valeurs de  $K^{eff}t_{Co}$  pour les épaisseurs de cobalt supérieures à 1 nm donne des anisotropies surfaciques et volumiques indépendantes de la nature de la couche de couverture. Ceci montre de nouveau l'asymétrie d'anisotropie interfaciale entre interface supérieure et interface inférieure. Cependant, contrairement au cas d'une couche tampon de platine, l'aimantation à saturation et l'anisotropie effective mesurées sont inférieures avec la couche de couverture

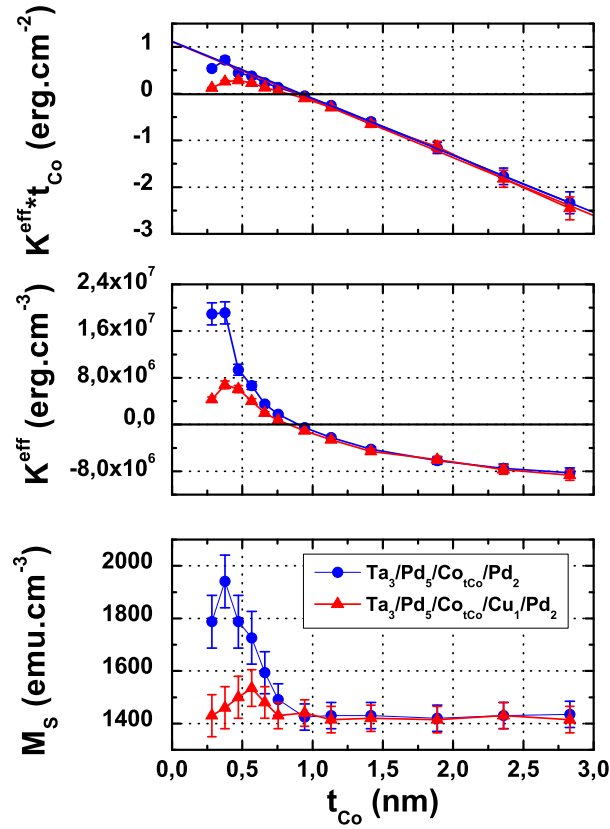


FIGURE 2.13 – De haut en bas : Mesure des anisotropies d’interface et volumique avec couche tampon de palladium et couche de couverture en palladium ou cuivre ; anisotropie effective en fonction de l’épaisseur de cobalt ; aimantation à saturation des échantillons.

de cuivre comparées au cas d’une couverture de palladium. De même, une déviation de la loi 2.14 apparaît en dessous de 0,6 nm avec du cuivre alors qu’avec du palladium elle n’apparaissait qu’en dessous de 0,3 nm. Ceci met en exergue l’importance de l’augmentation du volume magnétique avec la polarisation du palladium qui améliore la stabilité de la multicouche. Cela montre également que la validité de la loi linéaire dans le cas des faibles épaisseurs ( $t_{Co} \leq 0,6$  nm) n’est que fortuite, puisque le volume de palladium magnétique n’est pas pris en compte dans le calcul.

Cette étude met également en relief les différences de comportement magnétique entre les alliages CoPt et CoPd qui se forment à l’interface supérieure. Dans le premier cas, l’alliage diminue l’aimantation à saturation du système et donc la stabilité de la multicouche. Au contraire, dans le second cas, la polarisation magnétique du palladium augmente la température de Curie de la couche de cobalt et assure une bonne stabilité à température ambiante[31]. Il faut noter que des mesures et calculs effectués par différents groupes de recherche ont montré que le platine pouvait également se polariser magnétiquement, mais cette polarisation est inférieure à celle du palladium[32], et n’est

pas détectable avec les mesures d'aimantation présentées ici.

### 2.4.3 Mesure de l'anisotropie d'interface de différents métaux

Les sous-sections précédentes ayant démontré que l'anisotropie induite à l'interface supérieure est très inférieure à celle induite à l'interface supérieure. Cette anisotropie induite à l'interface supérieure peut être estimée à  $0,2\text{-}0,3 \text{ erg.cm}^{-2}$  au maximum, en supposant que conformément à la littérature l'aluminium, le tantale ou le magnésium induisent au maximum  $0,25 \text{ erg.cm}^{-2}$  [4, 5]. Il est possible d'estimer l'anisotropie induite à une interface NM/Co inférieure pour différents métaux NM, sous réserve que l'hypothèse énoncée précédemment soit vérifiée. Ainsi, de la même manière que précédemment, l'anisotropie interfaciale d'échantillons  $\text{Ta}_3/\text{Y}_5/\text{Co}_{t_{\text{Co}}}/\text{Cu}_2/\text{Pt}_2$  (avec  $\text{Y}=\text{Ru}$ ,  $\text{Ta}$ ,  $\text{Mg}$  et  $\text{Al}$ ) a été mesurée en faisant varier l'épaisseur de cobalt. Ces résultats peuvent être comparés sur la figure 2.14 avec les couches tampons de platine, de cuivre ou de palladium.

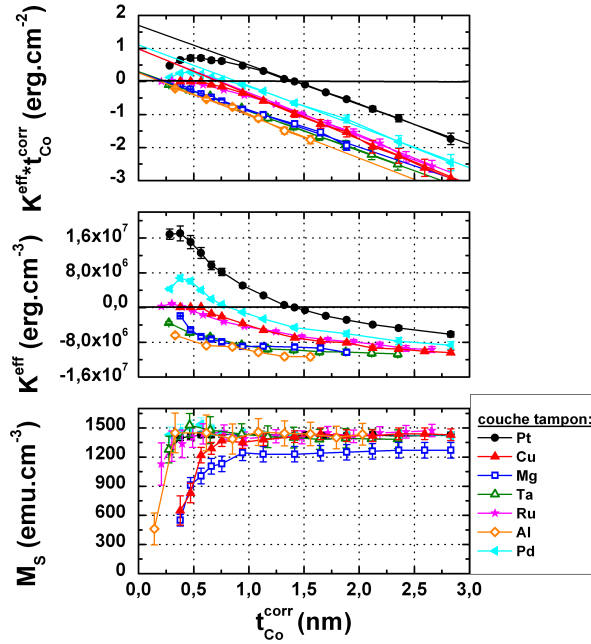


FIGURE 2.14 – Mesure des anisotropies d'interface et volumique (en haut), de l'anisotropie effective (au milieu) et de l'aimantation (en bas) des couches  $\text{Ta}/\text{Y}/\text{Co}/\text{Cu}/\text{Pt}$  ( $\text{Y} = \text{Pt}$ ,  $\text{Pd}$ ,  $\text{Cu}$ ,  $\text{Ru}$ ,  $\text{Mg}$ ,  $\text{Al}$ ,  $\text{Ta}$ ) en fonction de l'épaisseur de cobalt  $t_{\text{Co}}$ .

Ici encore, l'épaisseur des couches de cobalt a été corrigée d'une couche morte de  $0,18(\pm 0,02) \text{ nm}$  pour le ruthénium,  $0,48(\pm 0,04) \text{ nm}$  pour le tantale et  $0,80(\pm 0,06) \text{ nm}$  pour l'aluminium. Le tableau 2.3 résume les mesures effectuées sur ces couches.

Y	Pt	Pd	Cu	Mg
$K_{S,Y} + K_{S,Cu}^{sup}$ (erg.cm <sup>-2</sup> )	1,8(±0,1)	1,1(±0,1)	1,0(±0,1)	0,3(±0,1)
$K_V - 2\pi M_S^2$ (10 <sup>7</sup> erg.cm <sup>-3</sup> )	-1,2(±0,1)	-1,2(±0,1)	-1,3(±0,1)	-1,1(±0,1)
$t_C^{corr}$ (nm)	1,45(±0,10)	0,85(±0,10)	0,60(±0,05)	-
$t_{morte}$ (nm)	0,00	0,00	0,00	0,00

Y	Al	Ru	Ta
$K_{S,Y} + K_{S,Cu}^{sup}$ (erg.cm <sup>-2</sup> )	0,3(±0,1)	1,0(±0,1)	0,3(±0,1)
$K_V - 2\pi M_S^2$ (10 <sup>7</sup> erg.cm <sup>-3</sup> )	-1,3(±0,2)	-1,3(±0,2)	-1,3(±0,2)
$t_C^{corr}$ (nm)	-	0,55(±0,05)	-
$t_{morte}$ (nm)	0,80(±0,06)	0,18(±0,02)	0,48(±0,04)

TABLE 2.3 – Anisotropies surfaciques et volumiques, épaisseurs critiques corrigées et épaisseurs de couche morte mesurées avec différentes couches tampon Y. L'anisotropie interfaciale induite à l'interface supérieure Co/Cu  $K_{S,Cu}^{sup}$  est estimée valoir entre 0 et 0,3erg.cm<sup>-2</sup>.

Il est difficile de comparer directement ces différentes couches tampons, puisqu'elles possèdent des rugosités différentes, et il est fort possible que la croissance du cobalt ne soit pas identique dans tous les cas. Cependant, il est clair que le tantale, l'aluminium et le magnésium n'induisent pas d'anisotropie perpendiculaire significative, ces résultats étant en accord avec les travaux effectués par d'autre équipes (voir par exemple les références [4, 5] pour avoir un résumé des différentes anisotropies mesurées). Au contraire, une anisotropie interfaciale de 1,0(±0,1) erg.cm<sup>-2</sup> apparaît avec une couche tampon de cuivre ou de ruthénium. Si la valeur d'anisotropie mesurée pour le ruthénium est en accord avec les résultats de Dinia et al.[33], l'anisotropie mesurée pour l'interface Cu/Co est supérieure à celles qui sont indiquées dans la littérature[21, 4]. Pour ces deux métaux, l'anisotropie interfaciale est quasiment identique à celle apportée par le palladium. Dans les deux cas, l'anisotropie chute à faible épaisseur, vraisemblablement à cause d'effets de rugosité pour le cuivre et d'interdiffusion pour le ruthénium. Il serait cependant possible d'envisager la fabrication de multicouches Co/Cu à anisotropie perpendiculaire ou de remplacer les épaisses couches tampon de platine ou palladium par du ruthénium, si des conditions de dépôts optimisées permettaient de réduire ces défauts. Ces substitutions auraient pour intérêt principal de diminuer le coût des matières premières nécessaires à la fabrication de systèmes à anisotropie perpendiculaire.

En résumé, cette section montre que l'interface inférieure des multicouches NM/Co apporte l'essentiel de l'anisotropie perpendiculaire. L'origine de cette asymétrie d'anisotropie interfaciale n'est cependant que partiellement comprise. La diffusion asymétrique entre interfaces peut expliquer en partie cet effet. L'hybridation des orbitales est vraisemblablement différente à une interface diffuse, et cette interdiffusion supprime en grande partie l'anisotropie des liaisons Co-NM. Les effets magnéto-élastiques sont a priori également différents entre les deux interfaces, la croissance d'un métal magnétique sur une couche de cobalt n'induit apparemment aucune contrainte, toute l'anisotropie perpendi-

culaire étant créée lors de la croissance du cobalt sur une couche tampon judicieusement choisie. Il est cependant difficile de dire à partir des mesures effectuées dans cette section quelle est l'influence des deux phénomènes.

## 2.5 Effet de l'interdiffusion Co-Pt à l'interface supérieure

### 2.5.1 Effet de l'insertion de cuivre dans les tricouches Pt/Co/Pt

Dans la section précédente, il a été montré que l'insertion d'une couche de cuivre permettait d'augmenter l'anisotropie effective d'une couche de cobalt dans les structures Pt/Co/Pt. Ceci revêt un intérêt technologique particulièrement important pour assurer une stabilité thermique suffisante lorsque les dimensions latérales d'un point mémoire sont réduites. Cependant, le système décrit précédemment ne peut être utilisé tel quel. Il serait préférable de diminuer suffisamment l'épaisseur de cuivre pour pouvoir coupler magnétiquement la couche de cobalt à une couche de CoFeB plus épaisse à travers l'espaceur Cu/Pt, et ainsi réaliser une électrode magnétique perpendiculaire de jonction tunnel magnétique. Pour cela, l'influence de l'épaisseur de la couche de couverture de cuivre a été étudié grâce à la structure Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>5</sub>/Co<sub>0,5</sub>/Cu<sub>tCu</sub>/Pt<sub>2</sub>.

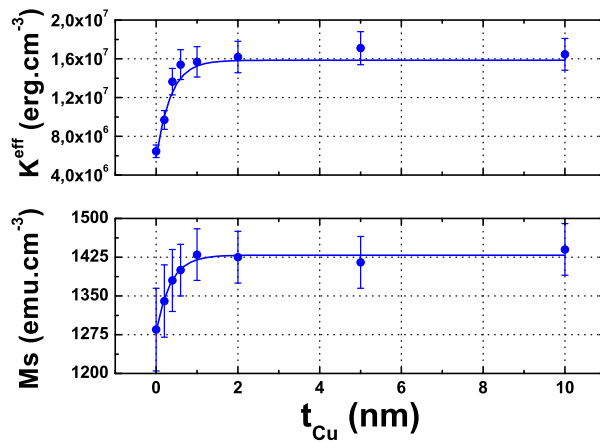


FIGURE 2.15 – Anisotropie effective (en haut) et aimantation à saturation (en bas) de la structure Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>5</sub>/Co<sub>0,5</sub>/Cu<sub>tCu</sub>/Pt<sub>2</sub> en fonction de l'épaisseur  $t_{Cu}$  de la couche de couverture de cuivre. Les traits sont des guides pour les yeux.

Les mesures présentées sur la figure 2.15 montrent une claire corrélation entre aimantation et anisotropie effective. Ces deux grandeurs augmentent avec  $t_{Cu}$  jusqu'à atteindre une saturation aux alentours de  $t_{Cu} \approx 0,8-1$  nm. Cet effet peut être expliqué par l'interdiffusion entre cuivre et platine. En effet, cuivre et platine se mélangent de façon similaire au système cobalt-platine d'après les diagrammes de phases binaires des



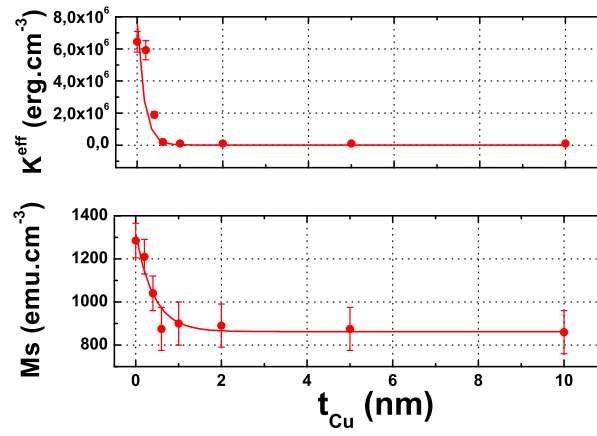


FIGURE 2.16 – Anisotropie effective (en haut) et aimantation à saturation (en bas) de la structure  $Ta_3/Pt_5/Cu_{t_{Cu}}/Co_{0,5}/Pt_2$  en fonction de l'épaisseur  $t_{Cu}$  de la couche tampon de cuivre. Les traits sont des guides pour les yeux.

deux alliages[34]. Si la couverture de cuivre n'est pas suffisamment épaisse, il peut se former un alliage  $CoCuPt$ , néfaste pour l'anisotropie perpendiculaire. Un bon compromis entre propriétés de couplage et augmentation d'anisotropie peut être obtenu avec  $t_{Cu}=0,4$  nm. Pour cette valeur d'épaisseur de couverture de cuivre, les couches de cobalt de moins de 0,5 nm deviennent moins anisotropes qu'avec la couverture de cuivre de 1 nm, mais l'augmentation d'anisotropie par rapport aux couches sans couverture de cuivre reste de l'ordre de 70% (figure 2.17) en terme d'anisotropie maximale.

Enfin, il est possible de vérifier que l'interface inférieure est essentielle pour obtenir l'anisotropie perpendiculaire en insérant une couche de cuivre d'épaisseur variable entre la couche tampon de platine et la couche de cobalt de 0,5 nm. La figure 2.16 montre que l'aimantation et l'anisotropie effective sont de nouveau fortement corrélées dans la structure  $Ta_3/Pt_5/Cu_{t_{Cu}}/Co_{0,5}/Pt_2$ . Cette fois-ci, lorsque  $t_{Cu}$  augmente ces deux valeurs diminuent jusqu'à des valeurs limites atteintes aux alentours de  $t_{Cu} \approx 0,6-0,8$  nm. Ceci peut de nouveau s'expliquer par l'interdiffusion  $Cu/Pt$  qui permet, lorsque l'épaisseur de cuivre déposée est inférieure à 0,6 nm, de conserver une partie des liaisons  $Co-Pt$ . La diminution d'aimantation constatée lorsque le cobalt est déposé sur du cuivre peut être dû à une augmentation de rugosité de la couche tampon.

Il faut noter que les échantillons avec épaisseur de cuivre supérieure à 0,8 nm ne présentent de rémanence dans aucune direction de champ appliquée, mais présentent une susceptibilité magnétique supérieure dans la direction perpendiculaire au plan des couches.



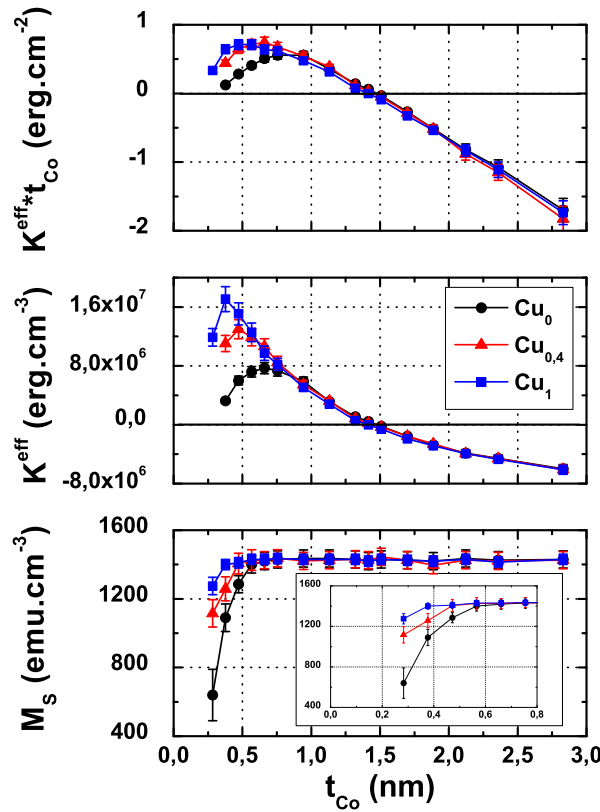


FIGURE 2.17 – Mesure des anisotropies d'interface et volumique (en haut), anisotropie effective (au milieu) et aimantation à saturation (en bas) en fonction de l'épaisseur de cobalt de la structure  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_5/\text{Co}_{t_{\text{Co}}}/\text{Cu}_{t_{\text{Cu}}}/\text{Pt}_2$ , avec  $t_{\text{Cu}}=0$  ; 0,4 et 1 nm.

### 2.5.2 Influence de l'épaisseur de la couche de platine de couverture sur l'anisotropie

Les sections précédentes ont montré les effets néfastes de la diffusion du cobalt dans la couche de platine supérieure. Il est possible d'estimer la longueur caractéristique de diffusion du cobalt dans le platine en faisant varier l'épaisseur de la couche de couverture de platine dans une tricouche Pt/Co/Pt. Cependant, une couche de couverture trop fine risque de ne pas protéger suffisamment la couche de cobalt de l'oxydation et biaiser ainsi les résultats. Pour éviter cela, une bicouche Cu/Pt a été rajoutée. La couche de cuivre bloque la diffusion du cobalt, et en première approximation seule la couche de platine directement déposée sur le cobalt peut former un alliage. Ceci n'est vrai que si la couche de cuivre ne "repompe" pas le platine de l'alliage CoPt. La structure étudiée est donc  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_5/\text{Co}_{0,3 \text{ et } 0,5}/\text{Pt}_{t_{\text{Pt}}}/\text{Cu}_2/\text{Pt}_2$ .

Les résultats présentés en figure 2.18 montrent une dégradation des propriétés magnétiques de la couche de cobalt avec l'augmentation de  $t_{\text{Pt}}$ , excepté pour la couche de

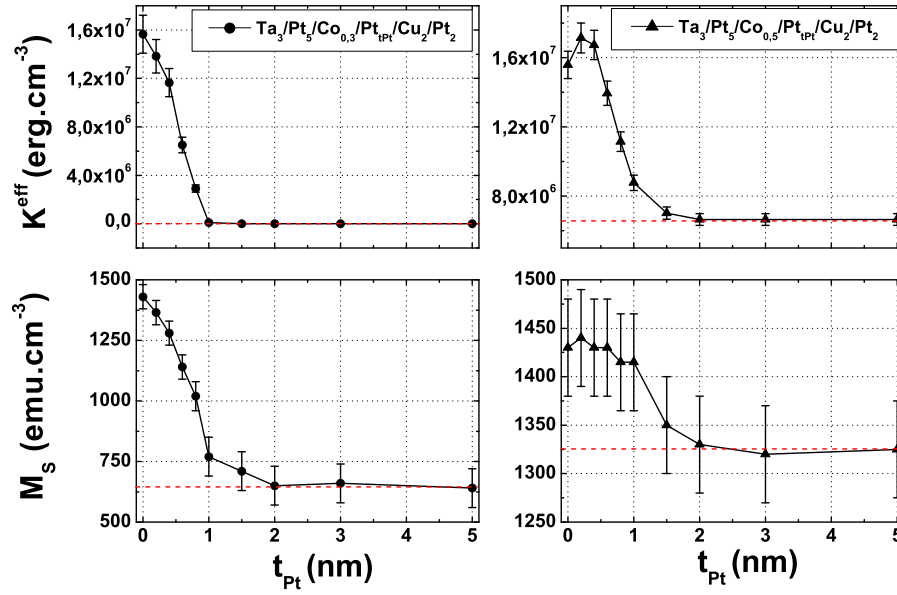


FIGURE 2.18 – Anisotropie effective (en haut) et aimantation à saturation (en bas) des couche de 0,3 nm (à gauche) et 0,5 nm (à droite) de cobalt en fonction de l'épaisseur  $t_{\text{Pt}}$  de la couche de couverture de platine. Les traits pointillés rouges sont les valeurs mesurées pour les structures Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>5</sub>/Co<sub>0,5</sub> et 0,3/Pt<sub>2</sub> présentées sur la figure 2.7.

0,5 nm de cobalt où une couche de couverture de platine de 0,2 à 0,4 nm d'épaisseur semble donner une anisotropie effective environ 10% supérieure au cas où une couverture de cuivre seule est utilisée, mais cette augmentation est à la limite de l'erreur de mesure. Cette dégradation s'arrête aux alentours de  $t_{\text{Pt}} \approx 1,5\text{--}2$  nm, où les valeurs obtenues sont identiques aux valeurs mesurées sur les échantillons Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>5</sub>/Co<sub>0,5</sub> et 0,3/Pt<sub>2</sub>. La longueur de diffusion caractéristique Co/Pt mesurée est donc de  $1,5(\pm 0,3)$  nm. La diffusion mesurée ici est comparable à celle mesurée par sonde tomographique dans la référence[35]. Cette valeur est un minimum en considérant la possible diffusion du platine dans le cuivre qui réduirait le mélange Co/Pt. Pour des valeurs supérieures à 1 nm de platine de couverture, il est possible de vérifier a posteriori que l'effet de la couverture Cu/Pt n'a pas d'influence : aucune différence d'anisotropie effective ou d'aimantation n'a été mesurée sur les échantillons Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>5</sub>/Co<sub>0,5</sub>/Pt <sub>$t_{\text{Pt}}$</sub>  avec  $t_{\text{Pt}}=1$  et 1,5 nm. La longueur de diffusion mesurée est donc valide, et l'oxydation du cobalt est négligeable voire inexistante. Cependant, pour les cas où l'épaisseur de platine de couverture est inférieure à 1 nm, rien ne permet d'affirmer que la présence de la couche de cuivre ne modifie pas l'anisotropie effective. Il est également notable que l'utilisation d'une couche de 2 nm de cuivre de couverture permette d'augmenter l'anisotropie et l'aimantation de la couche de 0,3 nm de cobalt par rapport à une couche de 1 nm, alors que cela ne change rien pour une couche de 0,5 nm de cobalt. Il semble donc que quelques atomes de platine parviennent à diffuser à travers 1 nm de cuivre, mais que cet effet n'est visible que pour

une couche magnétique d'épaisseur inférieure à 0,5 nm.

Pour le cas d'une multicouche de la forme (Co/Pt)<sub>n</sub>, cette étude montre que pour avoir une anisotropie maximale, il est préférable de travailler avec des épaisseurs d'espaceurs de platine les plus fines possibles (de l'ordre de 0,2 à 0,4 nm). Ainsi, l'interdiffusion Co-Pt qui apparaît à l'interface supérieure sera réduite ce qui permet d'obtenir des couches plus stables.

## 2.6 De la tricouche NM/Co/NM à la multicouche magnétique (Co/NM)<sub>n</sub>

Si la tricouche NM/Co/NM est un système modèle pour étudier les effets d'anisotropie surfacique, elle n'est en revanche pas adaptée pour les applications. En effet, il est nécessaire pour le dispositif final de disposer de structures ayant un volume magnétique suffisamment important pour assurer la stabilité thermique du système. Or l'anisotropie effective de ces systèmes est maximale pour des couches de cobalt de l'ordre de 0,5 nm, ce qui est insuffisant pour obtenir une stabilité  $K^{eff}V$  satisfaisante pour des piliers de diamètre inférieur à 30 nm, même lorsque  $K^{eff}$  est de l'ordre de  $10^7$  erg.cm<sup>-3</sup>. Pour résoudre ce problème, il est possible d'empiler n répétitions de bicouches Co/NM, avec une épaisseur de cobalt optimisée pour donner le maximum d'anisotropie. De cette façon, la structure obtenue possède à la fois une forte anisotropie et un volume magnétique suffisant pour assurer une bonne stabilité thermique lorsque la taille latérale des dispositifs est réduite à quelques dizaines de nanomètres.

Il est possible en première approximation de considérer les couches de cobalt comme étant indépendantes les unes des autres, l'anisotropie sera donc maximale pour la valeur  $t_{Co}$  déterminée sur la figure 2.7. En réalité, il existe un couplage (type RKKY ou direct par trou d'épingle) à travers chaque espaceur de platine ou de palladium qui peut changer le magnétisme de l'ensemble. Ce couplage va dépendre de l'épaisseur et de la nature de l'espaceur. Il faut donc, en plus des phénomènes d'interdiffusion dépendants de l'épaisseur de l'espaceur, prendre en compte ce couplage intercouche pour optimiser l'anisotropie effective des multicouches.

Dans la suite, l'optimisation des multicouches (Co/Pd) et l'amélioration des multicouches (Co/Pt) sont présentées. Les structures sont recuites à une température  $T_A$ . Ce traitement thermique n'est a priori pas bénéfique pour ces systèmes métalliques car il augmente l'interdiffusion entre les couches. Cependant, pour le dispositif final, il est nécessaire pour augmenter la magnéto-résistance tunnel. Les multicouches développées doivent donc être compatibles avec un recuit à 300 voire 350°C.

### 2.6.1 Comparaison entre les multicouches (Co/Pt)<sub>n</sub> et (Co/Pd)<sub>n</sub>

L'optimisation de l'anisotropie effective d'une monocouche de cobalt a été décrite précédemment. Il a été démontré en particulier que l'utilisation de palladium donnait les meilleurs résultats. Il est possible d'étendre ce travail au cas de multicouches (Co/Pd

ou Pt)<sub>n</sub>. De nombreuses études ont déjà été menées à SPINTEC sur ces multicouches, et la structure Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>5</sub>/(Co<sub>0,5</sub>/Pt<sub>0,4</sub>)<sub>5</sub>/Pt<sub>2</sub> a été choisie comme système optimal en termes d'anisotropie perpendiculaire et de résistance au recuit. Ces épaisseurs de cobalt et d'espaceur de platine sont par ailleurs cohérentes avec les mesures présentées en figure 2.7 et 2.18. Il reste donc à optimiser les multicouches avec palladium. Pour ce faire, des échantillons Ta<sub>3</sub>/Pd<sub>5</sub>/(Co<sub>tCo</sub>/Pd<sub>tPd</sub>)<sub>5</sub>/Pd<sub>2</sub> ont été déposés. L'épaisseur de cobalt déposée varie entre 0,15 et 0,5 nm, celle de palladium entre 0,2 et 0,8 nm. Ces échantillons sont comparés à la structure Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>5</sub>/(Co<sub>tCo</sub>/Pt<sub>0,4</sub>)<sub>5</sub>/Pt<sub>2</sub> avec  $t_{Co}$  variant de 0,15 à 0,8 nm, utilisée comme référence. Ces séries d'échantillons sont mesurées brutes de dépôt et recuites à 300°C 30 minutes.

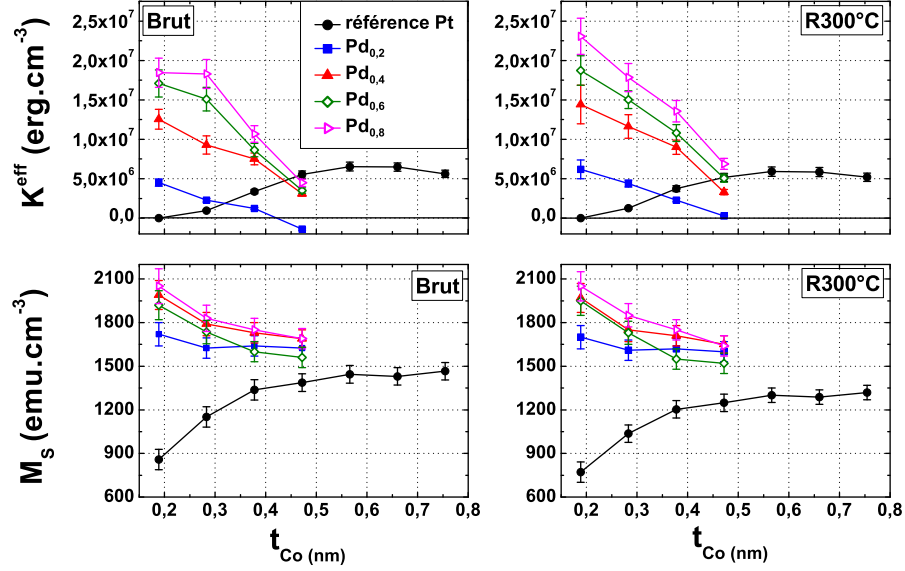


FIGURE 2.19 – Mesures des anisotropies effectives (en haut) et de l'aimantation (en bas) de multicouches (Co/Pd)<sub>n</sub> pour différentes épaisseurs d'espaceurs. Ces multicouches sont comparées à une multicouche standard (Co/Pt)<sub>n</sub>. Les échantillons sont mesurés bruts (à gauche) et recuits à 300°C (à droite)

Les résultats présentés en figure 2.19 montrent que dès que l'épaisseur de l'espaceur des multicouches (Co/Pd)<sub>n</sub> est supérieure à 0,2 nm, l'anisotropie effective maximale obtenue est supérieure à l'anisotropie des multicouches (Co/Pt)<sub>n</sub>. Cette anisotropie ainsi que l'aimantation à saturation augmentent avec l'épaisseur de l'espaceur de palladium et avec l'inverse de l'épaisseur de cobalt. De nouveau, la polarisation magnétique du palladium joue un rôle important sur la stabilité de la multicouche. Ces deux systèmes présentent également des résistances au recuit différentes. Si l'anisotropie perpendiculaire et l'aimantation du système (Co/Pt)<sub>n</sub> sont diminuées par ce recuit, elles sont au contraire stables dans le cas des multicouches (Co/Pd)<sub>n</sub>.

L'influence de la température de recuit a été étudiée jusqu'à 400°C sur des systèmes

types pouvant servir de base pour fabriquer une électrode inférieure ou supérieure. Les multicouches pouvant être utilisées en électrode inférieure et étudiées ici sont  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_5/-(\text{Co}_{0,5}/\text{Pt}_{0,4})_5/\text{Pt}_2$  et  $\text{Ta}_3/\text{Pd}_5/(\text{Co}_{0,3}/\text{Pd}_{0,4})_5/\text{Pd}_2$ . Dans le dispositif final, la couche  $\text{Pt}_2$  ou  $\text{Pd}_2$  qui sert de couverture contre l'oxydation serait remplacée par une couche de Co-FeB en contact avec une barrière tunnel. Les multicouches pouvant quant à elles être utilisées pour une électrode supérieure sont  $(\text{Pt}_{1,8}/\text{Co}_{0,6})_5/\text{Pt}_2$  et  $(\text{Pd}_{1,2}/\text{Co}_{0,3})_5/\text{Pd}_2$ . Dans une jonction tunnel magnétique, elles seraient déposées par dessus une couche de CoFeB elle-même déposée sur une barrière tunnel. Les épaisseurs d'espaceur utilisées ici sont optimisées pour obtenir un compromis entre le couplage entre couches de cobalt et l'anisotropie effective de la multicouche.

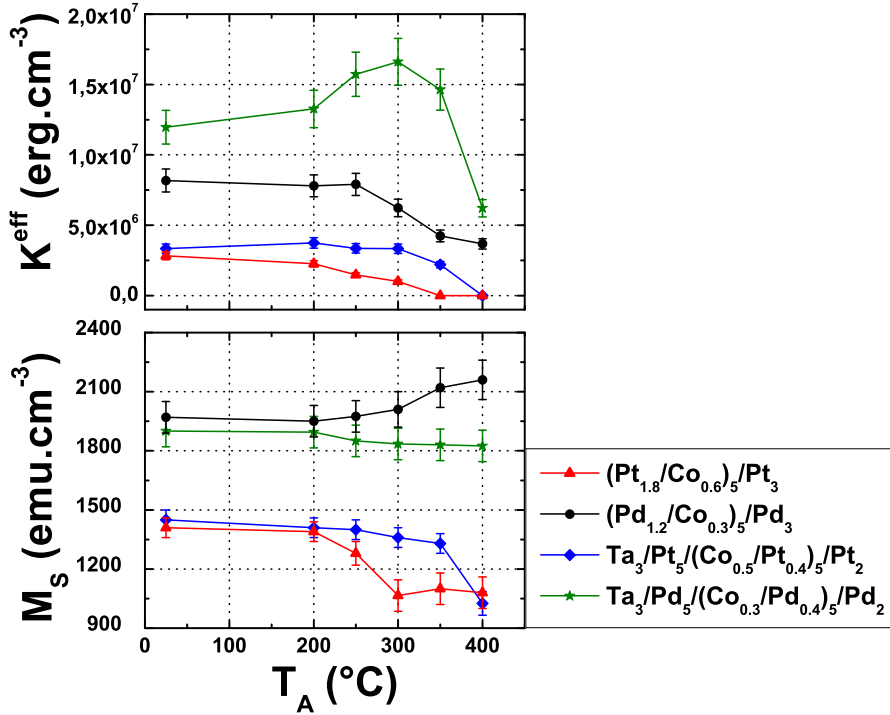


FIGURE 2.20 – Mesures des anisotropies effectives (en haut) et aimantation à saturation (en bas) de multicouches types en fonction de la température de recuit  $T_A$ .

Les structures avec les couches tampons de tantale et de platine ou palladium de 5 nm présentent des anisotropies plus élevées que les structures électrode supérieure sur toute la gamme de températures de recuit testée. Ceci peut s'expliquer par une meilleure texture (111) obtenue avec ces couches tampons que sans[36]. Les multicouches  $(\text{Co}/\text{Pd})_n$  sont également toujours plus anisotropes que les multicouches  $(\text{Co}/\text{Pt})_n$ . De plus, elles restent perpendiculaires au moins jusqu'à 400°C, ce qui n'est pas le cas pour les couches avec platine. Une fois recuites à 350°C pour la structure électrode supérieure, 400°C pour la structure électrode inférieure, ces dernières présentent plusieurs axes d'ano-

troupe révélées par des mesures VSM. Ces mesures présentées en figure 2.21 montrent que l'aimantation de la couche (Pt<sub>1,8</sub>/Co<sub>0,6</sub>)<sub>5</sub>/Pt<sub>2</sub> recuite à 400°C présente de la rémanence et de la coercivité dans le plan et hors du plan des couches, contrairement aux couches avec palladium pour lesquelles la courbe d'aimantation en champ planaire est caractéristique d'un axe difficile, sans rémanence ni coercivité.

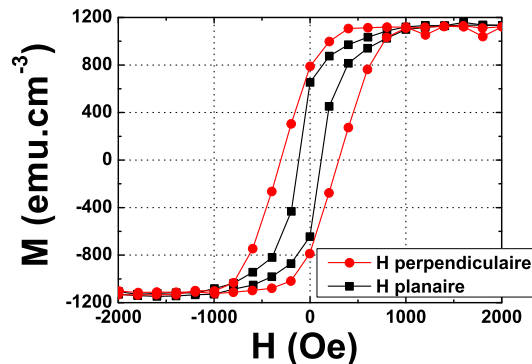


FIGURE 2.21 – Cycles d'hystérésis de la multicouche (Pt<sub>1,8</sub>/Co<sub>0,6</sub>)<sub>5</sub>/Pt<sub>2</sub> recuite à 400°C en champs perpendiculaire et planaire.

Ce type de cycles peut s'expliquer par une interdiffusion Co-Pt si importante que la structure se transforme en alliage et il n'est alors plus possible de définir d'interface. Ces alliages CoPt peuvent être polycristallins et complètement désordonnés. Tout axe de mesure est alors l'axe d'anisotropie de certains grains, ce qui donne un cycle ouvert. L'interdiffusion Co-Pd semble également inférieure dans ces structures, et si elle apparaît, elle a en tout cas moins de conséquence sur l'anisotropie des multicouches que peut l'avoir celle Co-Pt. Cependant, l'augmentation d'aimantation de la multicouche (Pd<sub>1,2</sub>/Co<sub>0,3</sub>)<sub>5</sub> montre qu'il y a un volume de palladium polarisé plus important, donc plus de liaison Co-Pd, ce qui met en relief la diffusion du cobalt dans les couches de palladium. Là encore, le système (Co/Pd)<sub>n</sub> possède une meilleure anisotropie effective (et donc une meilleure stabilité) et cela pour toute température de recuit dans la gamme 25-400°C. Ce système est donc à privilégier pour la fabrication de jonctions tunnel magnétiques à aimantation perpendiculaire.

### 2.6.2 Développement de multicouches (Co/Cu/Pt)<sub>n</sub>

Un moyen d'augmenter l'anisotropie perpendiculaire d'une tricolore Pt/Co/Pt est de la recouvrir d'une couche de cuivre. Cette couverture peut également être utilisée dans le cas des multicouches (Co/Pt)<sub>n</sub>, où chaque couche de cobalt sera recouverte d'une couche de cuivre. L'espaceur non magnétique ne sera alors plus constitué seulement de platine mais d'une bicouche Cu/Pt. Dans le but d'optimiser l'épaisseur de cuivre de l'espaceur, un des critères peut être de conserver une épaisseur d'espaceur constante et

de faire varier le rapport épaisseur de cuivre/épaisseur de platine. La structure déposée est  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_{1,2}/(\text{Co}_{0,6}/\text{Cu}_{t\text{Cu}}/\text{Pt}_{1,2-t\text{Cu}})_5/\text{Pt}_2$ . Les mesures sont effectuées brutes de dépôt.

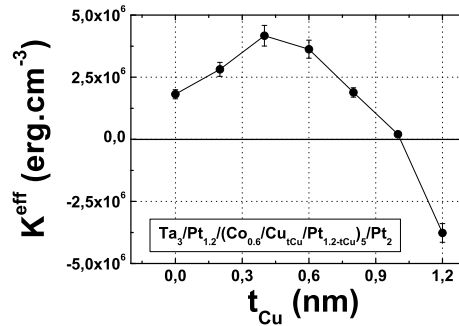


FIGURE 2.22 – Variation de l'anisotropie effective de la multicouche  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_{1,2}/(\text{Co}_{0,6}/\text{Cu}_{t\text{Cu}}/\text{Pt}_{1,2-t\text{Cu}})_5/\text{Pt}_2$ . L'anisotropie perpendiculaire de cette structure est optimale pour  $t_{\text{Cu}}=0,4 \text{ nm}$ .

Les résultats présentés en figure 2.22 indiquent que la valeur optimale d'anisotropie est atteinte pour 0,4 nm de cuivre. Elle permet d'avoir un bon compromis entre la protection contre la diffusion CoPt aux interfaces supérieures et l'apport d'anisotropie perpendiculaire à l'interface inférieure Pt/Co. Lorsque les espaceurs sont uniquement constitués de cuivre, la multicouche redevient planaire puisque la seule interface Pt/Co provenant de la couche tampon devient insuffisante pour conserver l'anisotropie perpendiculaire.

Pour être intéressante pour des jonctions tunnel magnétiques, il faut que la structure avec insertions de cuivre garde une anisotropie perpendiculaire supérieure à la structure standard même après recuit. La structure  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_5/(\text{Co}_{t\text{Co}}/\text{Cu}_{0,4}/\text{Pt}_{0,4})_5/\text{Cu}_2/\text{Pt}_2$  a donc été recuite à différentes températures pendant 30 minutes et comparée à la même structure sans espaceur de cuivre<sup>1</sup> (figure 2.23).

Les échantillons bruts de dépôt montrent que l'anisotropie effective maximale de la structure avec cuivre est obtenue pour une épaisseur de cobalt plus fine que dans la structure standard, en accord avec le graphe 2.17. Cette épaisseur optimale de cobalt ne varie pas avec le recuit sur la gamme de température testée. De même, la multicouche avec cuivre garde une anisotropie effective supérieure à la multicouche standard, même pour un recuit à 350°C (figure 2.23). Cependant, au delà de 300°C, l'anisotropie des deux structures se dégrade rapidement, et semble converger vers la même valeur, ce qui semble indiquer la formation d'un alliage désordonné dans lequel la présence de cuivre influe moins sur l'anisotropie de la multicouche.

1. La couche de 2 nm de couverture de cuivre qui permet de bloquer la diffusion du cobalt dans le platine de couverture est tout de même conservé.



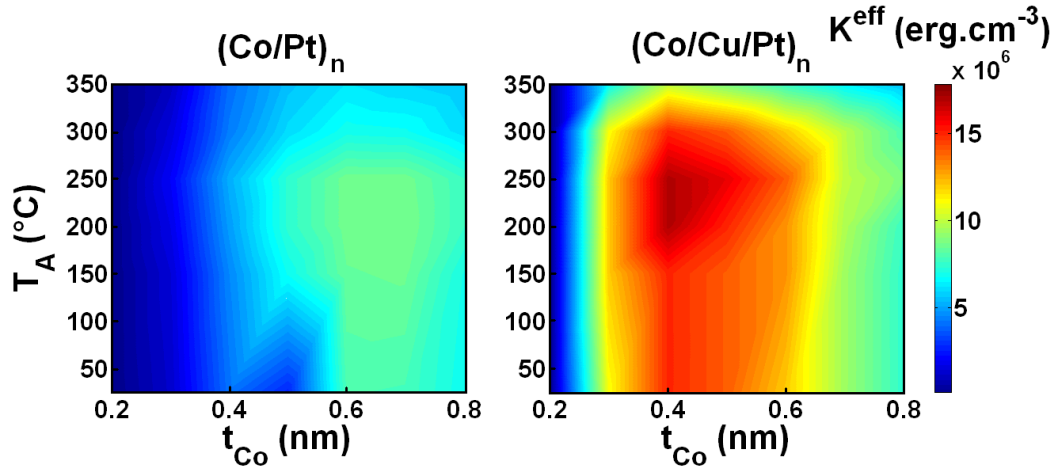


FIGURE 2.23 – Anisotropie effective de multicouches  $(\text{Co/Pt})_n$  (à gauche)  $(\text{Co/Cu/Pt})_n$  (à droite) en fonction de l'épaisseur de cobalt et de la température de recuite  $T_A$ . Les erreurs de mesures sont comprises entre 6 et 10% de la valeur nominale.

En conclusion, cette section démontre les avantages de l'insertion d'une couche de cuivre dans les multicouches  $(\text{Co/Pt})$ . L'anisotropie de multicouches  $(\text{Co/Cu/Pt})$  peut être doublée comparée à une structure classique  $(\text{Co/Pt})$ . Cependant, l'anisotropie effective obtenue dans ce système amélioré reste inférieure à l'anisotropie obtenue avec les multicouches  $(\text{Co/Pd})$ , qui présentent de surcroît une meilleure résistance au recuit.

## 2.7 Conclusion

Les études présentées dans ce chapitre ont montré que l'anisotropie interfaciale dans les multicouches  $(\text{Co/Pt})$  et  $(\text{Co/Pd})$  est asymétrique. L'anisotropie induite à l'interface inférieure est au moins un ordre de grandeur supérieur à celle induite à l'interface supérieure. Les interdiffusions présentes aux interfaces supérieures dégradent fortement l'anisotropie des multicouches  $(\text{Co/Pt})$ . Elles peuvent être réduites par l'insertion d'une ou deux couches atomiques de cuivre, et des multicouches  $(\text{Co/Cu/Pt})$  ont ainsi été développées. Cependant, ces multicouches ne sont pas aussi performantes que les structures  $(\text{Co/Pd})$  qui présentent une anisotropie effective plus grande et une meilleure tenue au recuit. D'une part la diffusion Co-Pd semble inférieure à la diffusion Co-Pt, ce qui permet de déposer des couches de cobalt plus fines, et d'autre part, la polarisation magnétique du palladium participe à la stabilité de la structure. Ces matériaux pourront être utilisés en tant qu'électrode de référence ou de stockage en jouant sur les différents paramètres pour ajuster l'anisotropie et la coercivité des couches.



# Bibliographie

- [1] P. F. Carcia, A. D. Meinhaldt and A. Suna, Appl. Phys. Lett. **47**, 178-180 (1985)
- [2] P. F. Carcia, J. Appl. Phys. **63**, 5066-5073 (1988)
- [3] F. J. A. den Broeder, D. Kuiper, A. P. van de Mosselaar and W. Hoving, Phys. Rev. Lett. **60**, 2769-2772 (1988)
- [4] M. T. Johnson, P. J. H. Bloemen, F. J. A. den Broeder and J. J. de Vries, Rep. Prog. Phys. **59**, 1409-1458 (1996)
- [5] F. J. A. den Broeder, W. Hoving and P. J. H. Bloemen, J. Magn. Magn. Mater. **93**, 562-570 (1991)
- [6] C. Chappert and P. Bruno, J. Appl. Phys. **64**, 5736-5741 (1988)
- [7] J. H. Van der Merwe and W. A. Jesser, J. Appl. Phys. **63**, 1510-1517 (1988)
- [8] J. H. Van der Merwe and W. A. Jesser, J. Appl. Phys. **63**, 1928-1935 (1988)
- [9] L. Néel, J. Phys. Rad. **15**, 225 (1954)
- [10] P. Bruno, Thèse, Université Paris Sud, Orsay (1989)
- [11] P. Bruno, Phys. Rev. B **39**, 865-868 (1989)
- [12] K. Kyuno, F.-G. Ha, R. Yamamoto and S. Asano, J. Appl. Phys. **79**, 7084-7089 (1996)
- [13] D. Weller, Y. Wu, J. Stöhr, M. G. Samant, B. D. Hermsmeier and C. Chappert, Phys. Rev. B **49**, 12888-12896 (1994)
- [14] R. Jungblut, M. T. Johnson, J. aan de Stegge, A. Reinders and F. J. A. den Broeder, J. Appl. Phys. **75**, 6424-6426 (1994)
- [15] R. M. Bozorth, Ferromagnetism, *D. Van Nostrand Company Inc*(1951)
- [16] K. Ishida and T. Nishizawa, Bulletin of Alloy Phase Diagrams **12**, 83-87 (1991)
- [17] R. M. Bozorth, P. A. Wolff, D. D. Davis, V. B. Compton and J. H. Wernick, Phys. Rev. **122**, 1157 (1961)
- [18] O. Rader, E. Vescovo, J. Redinger, S. Blügel, C. Carbone, W. Eberhardt and W. Gudat, Phys. Rev. Lett. **72**, 2247-2251 (1994)
- [19] J. Carrey, A. E. Berkowitz, W. F. Egelhoff Jr., D. J. Smith, Appl. Phys. Lett. **83**, 5259 (2003)

- [20] G. H. O. Daalderop, P. J. Kelly and M. F. H. Schuurmans, Phys. Rev. B **42**, 7270-7272 (1990)
- [21] C. D. England, W. R. Bennet and C. M. Falco, J. Appl. Phys. **64**, 5757-5759 (1988)
- [22] P. Bruno, Phys. Rev. B **43**, 6015 (1991)
- [23] Z. Q. Qiu, J. E. Mattson, C. H. Sowers, U. Welp and S. D. Bader, Phys. Rev. B **45**, 2252 (1992)
- [24] G. Lugert and G. Bayreuther, Phys. Rev. B **38**, 11068 (1988)
- [25] G. Bayreuther, F. Bensch and V. Kottler, J. Appl. Phys. **79**, 4509-4514 (1996)
- [26] T. Nishizawa and K. Ishida, Bulletin of Alloy Phase Diagrams **5**, 161-165 (1984)
- [27] S. Polesya, S. Mankovsky, O. Sipr, W. Meindl, C. Strunk and H. Ebert, Phys. Rev. B **82**, 214409 (2010)
- [28] A. A. Nayeab-Hashemi and J.B. Clark, Bulletin of Alloy Phase Diagrams **8**, 352-354 (1987)
- [29] A. J. Mc Alister, Bulletin of Alloy Phase Diagrams **10**, 646-649 (1989)
- [30] H. Okamoto, Journal of Phase Equilibria and Diffusion **25**, 571-572 (2004)
- [31] H. J. Choi, R. K. Kawakami, E. J. Escorcia-Aparicio, Z. Q. Qiu, J. Pearson, J. S. Jiang, D. Li and S. D. Bader, Phys. Rev. B **53**, 1947-1950 (1999)
- [32] V. S. Stepanyuk, W. Hergert, K. Wildberger, R. Zeller and P. H. Dederichs, Phys. Rev. Lett. **82**, 2121-2125 (1996)
- [33] A. Dinia, K. Ounadjela, A. Arbaoui, G. Suran, D. Muller and P. Panissod, J. Magn. Magn. Matter **104**, 1871-1872 (1992)
- [34] M. Hansen, Construction of Binary Alloys, *New York : McGraw-Hill*, 617 (1958)
- [35] A. Zarefy, L. Lechevallier, R. Lardé, H. Chiron, J.-M. Le Breton, V. Baltz, B. Rodmacq and B. Dieny, J. Appl. Phys. D **43**, 215004 (2010)
- [36] S. L. Pang, P. F. Carcia, D. Coulman and A. J. McGhie, Appl. Phys. Lett. **59**, 2898-2900 (1991)

# Chapitre 3

## Développement de multicouches (Co/Tb)

Les alliages RE-TM résultent du mélange d'une terre rare (RE pour "rare-earth") et d'un métal de transition ferromagnétique (TM pour "transition metal"). Le magnétisme de ces deux composés diffère profondément. Ainsi, les électrons 3d délocalisés des métaux de transition donnent un magnétisme de bande où les interactions entre atomes sont importantes mais les anisotropies relativement faibles, alors que le magnétisme des terres rares est porté par les électrons 4f localisés, fortement anisotropes mais avec des interactions plus faibles.

Ces matériaux ont été très étudiés dans le passé, en particulier parce qu'ils présentent des propriétés physiques qui les rendent particulièrement intéressants dans le domaine du stockage de l'information. Ils présentent par exemple une forte rotation Kerr ( $\theta_K$  de l'ordre de  $0,25^\circ$ [1] dans des structures optimisées) et un fort angle de Hall (environ  $3\%$ [2]). De plus, les grandeurs physiques telles que l'aimantation, la température de Curie ou la coercivité de ces alliages peuvent être facilement ajustées en changeant la composition du matériau. Enfin, il est possible de fabriquer ces alliages par pulvérisation cathodique, ce qui a permis le développement et la vente de disques magnéto-optiques à base d'alliage RE-TM. Dans le cadre des jonctions tunnel magnétiques, leur intérêt provient du fait que leur croissance ne nécessite pas de couche tampon pour obtenir l'anisotropie perpendiculaire, et leur coût est bien inférieur à ceux composés de métaux nobles comme le platine et le palladium (typiquement, une cible de palladium de 70 mm de diamètre coûte 9 000 euros, alors que la cible équivalente de terbium ne coûte que 4 000 euros).

Ce chapitre présente en premier lieu quelques généralités sur les alliages ferrimagnétiques RE-TM, puis la fabrication d'alliages adaptés aux jonctions tunnel magnétiques sera présentée. Ce chapitre sera plus axé sur l'optimisation des propriétés magnétiques que sur l'étude des propriétés physiques donnant l'anisotropie perpendiculaire.

## 3.1 Alliages TbCo

### 3.1.1 Ferrimagnétisme des alliages TbCo

Les alliages TbCo sont des matériaux ferrimagnétiques. Dans ces matériaux, il existe trois types de liaisons : Co-Co, Tb-Tb et Tb-Co. Dans le cas d'une liaison Co-Co ou Tb-Tb, l'intégrale d'échange est positive, ce qui donne un couplage ferromagnétique. Dans le cas d'une liaison Co-Tb, l'intégrale d'échange est négative, le couplage est antiferromagnétique. Il faut noter que, dans le cas d'un magnétisme dû à des électrons délocalisés comme ceux du cobalt, le couplage entre les moments magnétiques est relativement fort (de l'ordre de 0,01 à 0,1 eV) alors que dans le cas d'un magnétisme créé par des électrons localisés comme ceux du terbium, il est un ordre de grandeur plus faible. Dans ce cas, la forte localisation des électrons 4f empêche tout couplage direct entre spins. Seule l'interaction RKKY entre électrons de conduction (5d, 6s) polarisés par les moments magnétiques de chaque atome permet de garder une interaction d'échange entre les différents spins.

Il est commode de modéliser le système par deux réseaux de spins possédant chacun leur propre aimantation et température de Curie, l'aimantation totale valant la somme de ces deux sous-réseaux :

$$\vec{M}_{tot} = \vec{M}_{Co} + \vec{M}_{Tb} \quad (3.1)$$

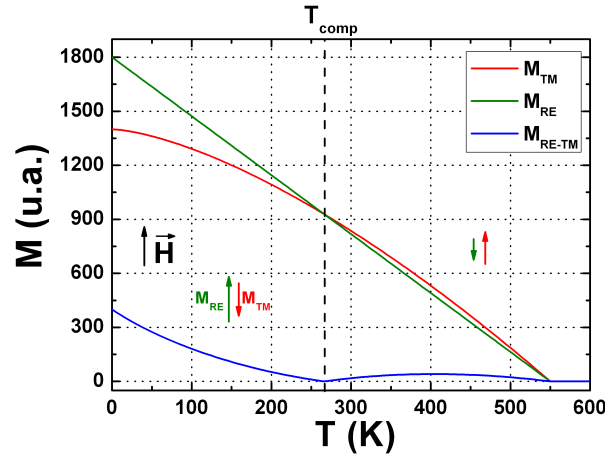


FIGURE 3.1 – Aimantation calculée du sous-réseau du métal de transition (en rouge), du sous-réseau de la terre rare (en vert) et de l'alliage (en bleu) en fonction de la température.

Comme les deux sous-réseaux du système sont alignés antiferromagnétiquement, l'aimantation rémanente du système est égale à la différence de l'aimantation de chaque sous-réseau (figure 3.1). En présence d'un champ extérieur et si le couplage antiferromagnétique RE-TM est suffisamment fort, le réseau dont la somme de l'énergie Zeeman

et de l'énergie d'anisotropie est la plus importante s'aligne parallèlement au champ, l'autre réseau s'alignant antiparallèlement. Des situations intermédiaires peuvent apparaître lorsque l'interaction n'est plus assez forte pour coupler rigidement les deux sous-réseaux, l'aimantation de chaque sous-réseau étant inclinée par rapport au champ. Si le réseau de cobalt (resp. terbium) s'aligne parallèlement au champ, alors l'alliage est dit riche en cobalt (resp. terbium). Dans le cas où à température nulle l'aimantation du réseau de terbium est plus importante que l'aimantation du réseau de cobalt, il existe une température pour laquelle l'aimantation totale du système s'annule. Cette température est appelée température de compensation, elle dépend de la composition de l'alliage. Si l'alliage est riche en cobalt à température nulle, il n'existe pas de température de compensation. En effet, l'aimantation du réseau de terbium diminue plus rapidement que celle du réseau de cobalt.

### 3.1.2 Anisotropie des alliages RE-TM

Les phénomènes physiques induisant des anisotropies décrits dans le chapitre précédent restent valables. Cependant, il convient de s'attarder sur l'influence de chacun pour un alliage CoTb. Tout d'abord l'anisotropie de forme aura en général une plus faible influence que dans le cas d'un matériau ferromagnétique. Cette énergie vaut toujours  $-2\pi M_S^2$ , mais comme les deux sous-réseaux du système se compensent au moins partiellement, l'aimantation est souvent un ordre de grandeur plus faible que dans le cas du cobalt massif, et l'énergie due au champ démagnétisant est donc deux ordres de grandeur plus petite, devenant négligeable comparée aux effets magnétocristallins ou magnétoélastiques.

Les mécanismes donnant une énergie magnétocristalline sont relativement différents dans le cas des terres rares de ce qu'ils sont dans les métaux de transition. Pour rappel, l'énergie magnétocristalline d'un métal de transition est l'énergie nécessaire pour vaincre le couplage spin-orbite, le moment orbital étant bloqué. Au contraire, dans une terre rare, le couplage spin-orbite, de l'ordre de 1 eV, lie de façon rigide moment orbital et moment de spin (en première approximation). Le moment orbital n'est pas bloqué, car l'effet du champ cristallin sur les électrons 4f (environ 0,01 eV/atome) est écranté par les électrons des couches supérieures (5d, 6s). C'est donc la distribution des électrons 4f qui est déplacée d'un axe facile vers un axe difficile par une action extérieure. L'axe de facile aimantation d'une terre rare est donc celui qui minimise la somme de l'énergie d'interaction électrostatique due au champ cristallin et de l'énergie d'échange. Si les alliages TbCo étaient totalement amorphes, il n'y aurait aucune anisotropie car le champ cristallin ne présenterait pas de direction préférentielle. Cependant, le désordre atomique n'est pas complet, et en particulier la distribution des paires RE-TM est anisotrope. L'anisotropie du champ électrique cristallin des atomes de terbium et de cette distribution de paires donnent une anisotropie magnétique perpendiculaire au plan des couches[3].

Les effets de contraintes peuvent également jouer un rôle important sur l'anisotropie des alliages TbCo[4], en particulier parce que les paramètres de la maille naturelle (hexa-

gonale compacte) des deux éléments diffèrent d'environ 40% ( $a_{Tb}=3,6$  Å,  $c_{Tb}=5,69$  Å,  $a_{Co}=2,5$  Å,  $c_{Tb}=4,06$  Å). La microstructure de l'alliage peut également avoir une influence sur les propriétés magnétiques, en particulier lorsque la croissance du matériau est colonnaire[5]. Enfin, les interactions dipolaires entre spins alignés antiparallèlement donnent une anisotropie perpendiculaire lorsqu'elles sont non-compensées (c'est à dire au niveau des surfaces des couches)[6]. Cette anisotropie apparaît comme une anisotropie surfacique et dépend de la quantité de dipôles alignés antiparallèlement, donc de la concentration de l'alliage.

Cette anisotropie peut être modélisée en généralisant le modèle décrit par l'équation 2.1. En considérant deux réseaux couplés antiferromagnétiquement, formant respectivement un angle  $\theta_{Co}$  et  $\theta_{Tb}$  par rapport à la normale et un angle  $\phi_{Co}$  et  $\phi_{Tb}$  par rapport au champ, l'énergie du système s'écrit :

$$E = -HM_{Co}\cos(\phi_{Co}) - HM_{Tb}\cos(\phi_{Tb}) - K_{Co}\cos^2(\theta_{Co}) - K_{Tb}\cos^2(\theta_{Tb}) - \lambda M_{Co}M_{Tb}\cos(\theta_{Co} - \theta_{Tb}) \quad (3.2)$$

où  $K_{Co}$  et  $K_{Tb}$  sont les anisotropies effectives de chaque sous-réseau dans un modèle d'anisotropie uniaxiale, et  $\lambda$  est la constante de couplage entre les deux sous-réseaux. Dans le cas d'alliages où l'élément 3d est du fer ou du cobalt, il est possible de négliger l'anisotropie du sous-réseau de cet élément[7]. Une dernière simplification peut être effectuée lorsque l'énergie de couplage des sous-réseaux est très supérieure aux autres termes : dans ce cas, les deux aimantations sont rigidement liées, et il est possible de modéliser l'ensemble par une aimantation unique pour laquelle l'équation 2.1 peut s'appliquer. L'approximation des deux sous-réseaux rigidement couplés peut en général s'appliquer dans la suite de ce chapitre. Par conséquent, le calcul de l'anisotropie effective par mesure du champ d'anisotropie et de l'aimantation peut en théorie être utilisé. Malheureusement, comme l'aimantation totale de l'alliage est de l'ordre de  $100 \text{ emu.cm}^{-3}$  (voire inférieure), une anisotropie effective de l'ordre de  $5 \cdot 10^6 \text{ erg.cm}^{-3}$  (voire supérieure[8]) implique que le champ d'anisotropie doit être de l'ordre de 100 kOe. Cette valeur ne peut être générée par des sources de champ conventionnelles, et l'extrapolation des courbes à partir des mesures effectuées jusqu'à 20 kOe donnent des incertitudes importantes (de l'ordre de 100%).

## 3.2 Méthodes de fabrication d'alliages RE-TM

La fabrication d'alliages binaires par pulvérisation cathodique peut se faire de trois façons différentes, chacune possédant ses propres avantages et inconvénients. Ces trois méthodes sont présentées en figure 3.2 dans le cas d'un alliage TbCo.

La première méthode consiste à utiliser directement une cible constituée de l'alliage désiré. Cette méthode a l'avantage de n'utiliser qu'une seule cathode dans la chambre de dépôt. Cependant, elle est moins souple d'utilisation que celles présentées par la suite.

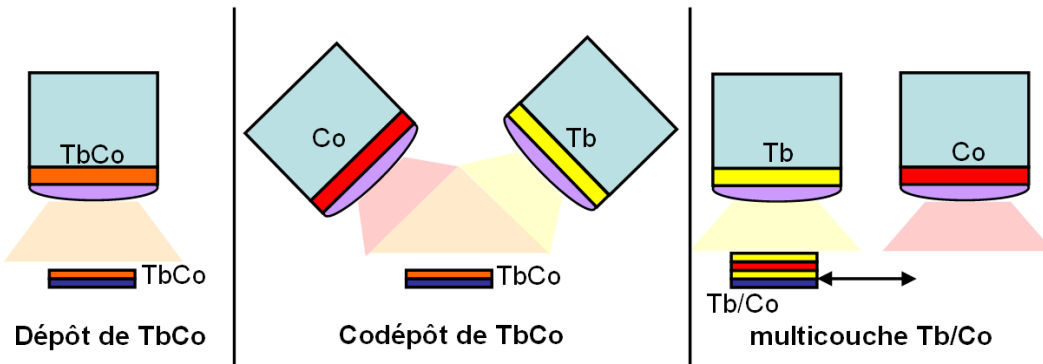


FIGURE 3.2 – A gauche : dépôt à partir d’une cible de TbCo. Au milieu : codépôt à partir de deux cibles convergentes terbium et cobalt. A droite : dépôt alterné de couches de terbium et de cobalt.

Son principal défaut est la difficulté d’obtenir la composition désirée. En effet, les rendements de pulvérisation des éléments de l’alliage sont différents, et le dépôt obtenu aura une composition différente de la cible. Un moyen de changer la composition déposée est de changer la pression du plasma d’argon[9], ce qui change également les vitesses de dépôt de chaque élément. Cependant cela peut également changer la qualité du dépôt[10]. Il est également possible de changer la distance substrat-cible, si la machine le permet (ce qui n’est en général pas le cas), ou de poser sur la cible des pastilles[11] d’un des éléments, de tailles inférieures à la cible, pour augmenter la proportion de ce matériau dans le dépôt (cette méthode ne permet pas de contrôler précisément la composition). La seconde méthode consiste à faire du codépôt, c’est-à-dire de pulvériser en même temps sur le substrat les deux éléments à partir de cibles convergentes. Cette méthode est pratique car elle permet en ajustant la vitesse de dépôt de chacune des cibles et de faire varier la composition de l’alliage de façon précise. Cependant, cette méthode nécessite d’avoir une machine de dépôt conçue à cet effet, ce qui n’est pas le cas de la machine de dépôt de SPINTEC, et elle peut donner de forts gradients de composition. La dernière méthode consiste à utiliser deux cibles non convergentes et de faire une multicouche comprenant les deux éléments, à la manière de la fabrication des multicouches métalliques (Co/NM) décrites dans le chapitre précédent. Cette méthode ne donne pas à proprement parler un alliage, sauf dans le cas où les diffusions entre les éléments se font sur une distance plus importante que l’épaisseur des couches. Cette diffusion peut être facilitée par un recuit. Brut de dépôt, la longueur typique de diffusion a été évaluée à 1 nm dans le cas des multicouches (Co/Tb)[12]. De même que dans le cas précédent, il est aisé d’ajuster la composition de l’alliage en faisant varier le rapport des épaisseurs de chaque couche, mais le dépôt sera plus long car il est nécessaire de déplacer le substrat entre deux couches. Cette méthode a été choisie pour la suite de cette étude.

*Note de fabrication* : le terbium est un matériau très réactif<sup>1</sup>. Même sous vide, il capte toutes les impuretés résiduelles de la chambre de dépôt, ce qui nuit à la qualité de l'alliage obtenu ainsi qu'à la reproductibilité des propriétés des couches obtenues. Pour éviter ce problème, la cible de terbium est décapée 2 minutes juste avant le dépôt de la multicouche.

### 3.3 Développement de multicouches (Co/Tb)

#### 3.3.1 Ajustement de la composition

Un des paramètres les plus importants à contrôler dans les alliages (ou multicouches) ferrimagnétique est la composition du dépôt. En effet, c'est elle qui va permettre d'ajuster le champ coercitif, la température de Curie et l'aimantation du matériau. Dans le cas d'un dépôt multicouche, l'effet de la composition est étudié en faisant varier l'épaisseur relative des deux matériaux tout en gardant une épaisseur constante. La série d'échantillons déposés est  $Ta_3/(Tb_x/Co_{1-x})_{10}/Cu_2/Pt_2$ ,  $x$  variant de 0,3 à 0,5 nm. La concentration atomique peut être estimée à partir des densités atomiques respectives du cobalt et du terbium massif : pour  $x=0,4$  nm, l'alliage contient environ 20% de terbium. La couche de tantale est utilisée comme couche promotrice d'adhérence, et la couverture Cu/Pt protège l'échantillon de l'oxydation.

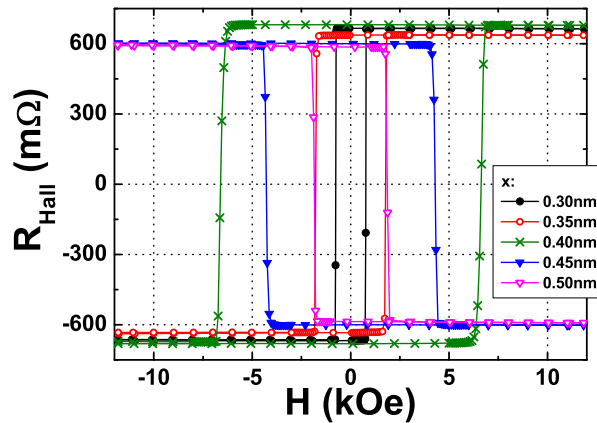


FIGURE 3.3 – Cycles d'hystérésis mesurés par effet Hall extraordinaire des échantillons  $Ta_3/(Tb_x/Co_{1-x})_{10}/Cu_2/Pt_2$  recuits à 250°C, le champ est appliqué hors du plan des couches.

Les mesures d'effet Hall extraordinaire effectuées sur cette série d'échantillons montrent que toutes les concentrations utilisées ici donnent une anisotropie perpendiculaire. Le champ coercitif varie de façon non monotone avec la concentration, et passe par un

1. Certains diraient même "oxydo-friand"



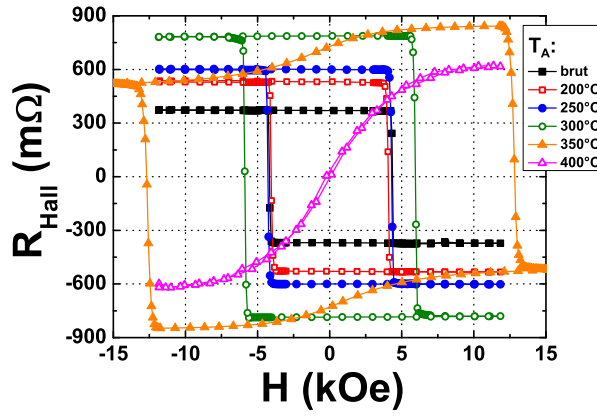


FIGURE 3.4 – Cycles d'hystérésis de l'échantillon  $\text{Ta}_3/(\text{Tb}_{0,45}/\text{Co}_{0,55})_{10}/\text{Cu}_2/\text{Pt}_2$  mesurés pour différentes températures de recuit  $T_A$ .

maximum pour  $x=0,425$  nm. Il faut également remarquer que les échantillons avec  $x < 0,425$  nm présentent des cycles normaux, alors que ceux avec  $x > 0,425$  nm présentent des cycles inversés. Cet effet peut être expliqué par un modèle simple dans lequel chacun des éléments contribue à la résistivité de Hall, avec une tension de Hall associée positive pour le cobalt et négative pour le terbium. Comme les atomes de cobalt et ceux de terbium sont couplés antiferromagnétiquement, les contributions des deux sous-réseaux s'ajoutent, donnant un cycle normal pour les alliages riches en cobalt et un cycle inversé pour ceux riches en terbium[13]. Les mesures d'effet Hall extraordinaire permettent donc de connaître directement le réseau dominant d'un échantillon.

Il est également important de contrôler la tenue au recuit de tels alliages pour les applications à base de jonctions tunnel magnétiques. Pour cela, les échantillons sont recuits pendant 10 minutes à différentes températures  $T_A$ . La figure 3.4 montre qu'il est possible de recuire jusqu'à 300°C l'échantillon avec 0,45 nm de terbium tout en conservant un cycle parfaitement carré. A partir de 350°C, une composante d'aimantation planaire apparaît sur le cycle, et à 400°C, l'aimantation de l'échantillon devient totalement planaire. Cet effet a été expliqué par la relaxation de contraintes et/ou la cristallisation de l'alliage[14], par un réarrangement des spins en ordre spérimagnétique[15, 16, 17] lorsque le couplage  $\lambda$  devient trop faible et enfin par une perte de l'anisotropie de la répartition des paires Co-Tb de l'alliage[18] due aux interdiffusions.

Enfin, l'évolution du champ coercitif et de l'aimantation des différents échantillons en fonction de la concentration et de la température de recuit est tracée en figure 3.5. Le champ coercitif mesuré est inversement proportionnel à l'aimantation (l'énergie  $M_S H_C$  est une constante), et dépend donc directement de la composition. Dans certains cas, si la composition est suffisamment proche de la compensation à température ambiante, le champ coercitif est plus grand que 17 kOe et est donc trop grand pour être mesuré

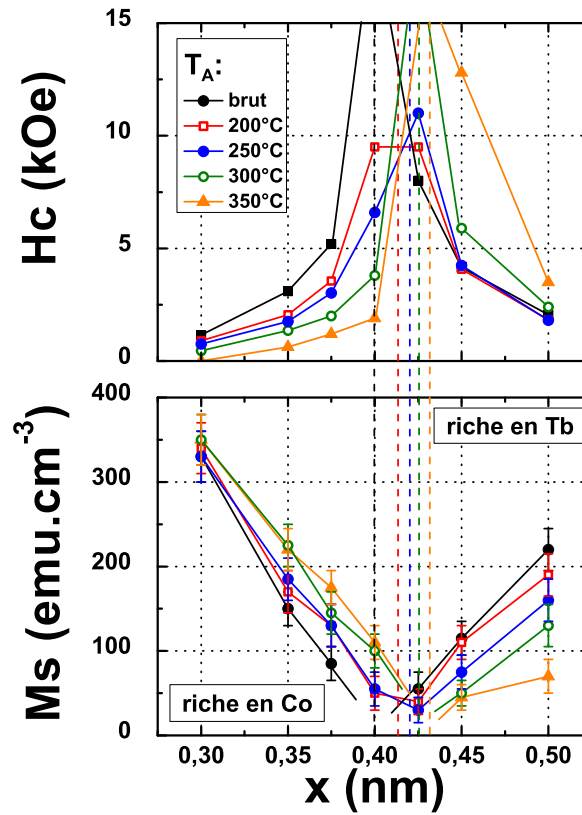


FIGURE 3.5 – Champ coercitif (en haut) et aimantation (en bas) de la multicouche (Tb/Co) en fonction de la composition et de la température de recuit. Les lignes pointillées indiquent la composition donnant la compensation à température ambiante. À gauche de cette ligne, les échantillons sont riches en cobalt, les cycles d’effet Hall extraordinaires sont normaux, alors qu’à droite les dépôts sont riches en terbium et les cycles sont inversés.

sur le banc de mesure d’effet Hall extraordinaire. La composition donnant la compensation à température ambiante varie avec la température de recuit et dérive vers les fortes concentrations en terbium. Cet effet est donc dû à une perte d’aimantation du sous-réseau de terbium, soit par diffusion des atomes vers les couches tampons ou de couverture, par oxydation du terbium, ou encore par agglomération du terbium en bulles présentant une température de Curie plus faible que lorsque ces atomes sont directement en contact avec les atomes de cobalt. Il devra en tout cas être pris en compte pour obtenir le champ coercitif le plus grand possible après recuit.

L’anisotropie de telles couches est difficile à mesurer, comme expliqué précédemment. Cependant, elle est estimée, grâce aux mesures d’effet Hall effectuées dans le plan, à  $3\text{--}7 \cdot 10^6 \text{ erg.cm}^{-3}$  pour les échantillons bruts, et semble diminuer de façon monotone avec la température de recuit. Pour une température de recuit de 300°C, elle peut être

estimée à  $1\text{--}4 \cdot 10^6 \text{ erg.cm}^{-3}$ .

### 3.3.2 Influence de l'épaisseur totale de la multicouche

L'épaisseur totale de la multicouche est également un paramètre important. Pour une électrode magnétique de référence dans les jonctions tunnel, elle peut être relativement épaisse, tant que cela ne pose pas de problème de rugosité ou de gravure des piliers. Pour une électrode de stockage, l'épaisseur totale doit être la plus faible possible (typiquement inférieure à 2 nm) pour pouvoir commuter son aimantation par couple de transfert de spin. Les échantillons déposés pour étudier ce paramètre sont donc  $\text{Ta}_3/(\text{Tb}_{0,45}/\text{Co}_{0,55})_n/\text{Cu}_2/\text{Pt}_2$ , où  $n$  varie de 1 à 20 (l'échantillon avec une seule répétition n'est pas magnétique à température ambiante). L'épaisseur de la multicouche varie donc de 2 à 20 nm et la composition déposée est constante. Ces échantillons sont recuits à différentes températures  $T_A$  pendant 10 minutes.

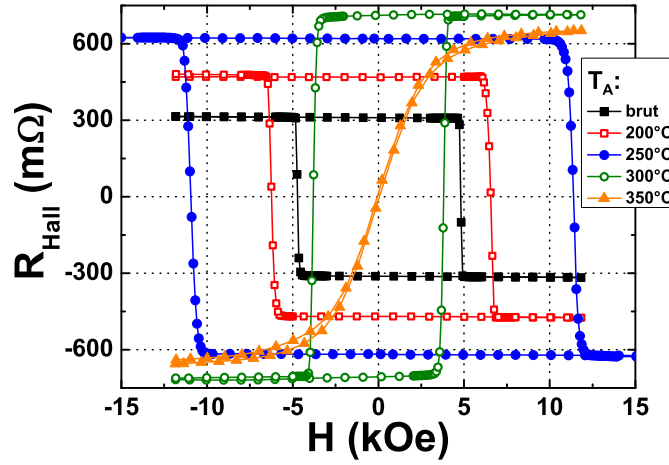


FIGURE 3.6 – Cycles d'hystérésis de l'échantillon  $\text{Ta}_3/(\text{Tb}_{0,45}/\text{Co}_{0,55})_5/\text{Cu}_2/\text{Pt}_2$  en fonction de la température de recuit  $T_A$ .

Les cycles d'hystérésis présentés en figure 3.6 montrent que lorsque la température de recuit augmente, la composition de l'alliage s'appauvrit en terbium, et la résistance de Hall change même de signe. L'alliage qui au départ est riche en terbium devient riche en cobalt après recuit à  $300^\circ\text{C}$ .

L'évolution du champ coercitif en fonction du nombre de répétitions et de la température de recuit est présentée en figure 3.7. La coercivité des couches brutes de dépôt est indépendante du nombre de répétitions de la multicouche, à la reproductibilité près des dépôts. Cependant, lorsque les échantillons sont recuits, l'appauvrissement en terbium déjà décrit précédemment apparaît. Cet appauvrissement est d'autant plus important que l'échantillon est fin. Il est possible de définir une épaisseur de compensation, qui dépend de la température de recuit, pour laquelle l'échantillon présente une aimanta-

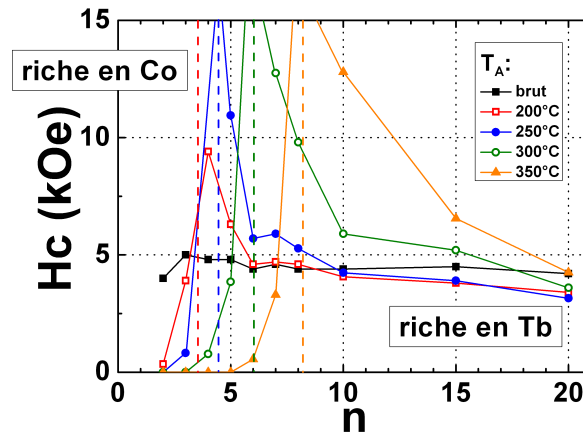


FIGURE 3.7 – Évolution du champ coercitif en fonction de l'épaisseur de la multicouche et de la température de recuit  $T_A$ . Les lignes en pointillés indiquent l'épaisseur pour laquelle la multicouche est compensée à température ambiante, en fonction de la température de recuit.

tion nulle à température ambiante. Cette épaisseur augmente avec la température de recuit. Cela montre que l'effet principal du recuit est la diffusion des atomes de terbium vers la couche tampon et celles de couverture, conduisant à une perte d'aimantation du sous-réseau de terbium. Il est également possible que le recuit provoque l'oxydation du terbium par diffusion d'atomes d'oxygène, bien que les 2 nm de platine de couverture devraient en théorie protéger l'échantillon.

Cette étude montre l'importance des diffusions dans la composition finale de l'échantillon. Il faut noter que la résistance au recuit des couches dépend directement de l'épaisseur totale de l'échantillon. Ces alliages sont donc a priori plus adaptés pour des électrodes de référence, car un échantillon d'épaisseur inférieure à 4 nm n'est plus perpendiculaire après recuit à 250°C.

### 3.3.3 Influence de l'épaisseur de la bicouche Co/Tb

Enfin, le dernier paramètre qui peut être modifié dans ces multicouches est l'épaisseur de chaque bicouche. Lorsque les couches déposées sont suffisamment fines, les interdiffusions mélangent les espèces et le dépôt obtenu est un alliage amorphe. Si elles sont suffisamment épaisses, le système obtenu est une multicouche avec des interfaces diffuses. Dans ce second cas, une anisotropie d'interface de environ  $0,5 \text{ erg.cm}^{-2}$  a été mesurée par Ertl. et al[12].

Il est important d'étudier ce paramètre pour obtenir le matériau ayant le plus d'anisotropie et la meilleure résistance au recuit. Les échantillons déposés ont donc la même composition initiale (22,5% atomique de Tb) et la même épaisseur :  $\text{Ta}_3/(\text{Tb}_{0,275}/\text{Co}_{0,225})_{20}/\text{Cu}_2/\text{Pt}_2$ ,  $\text{Ta}_3/(\text{Tb}_{0,45}/\text{Co}_{0,55})_{10}/\text{Cu}_2/\text{Pt}_2$  et  $\text{Ta}_3/(\text{Tb}_{0,9}/\text{Co}_{1,1})_5/\text{Cu}_2/\text{Pt}_2$ .

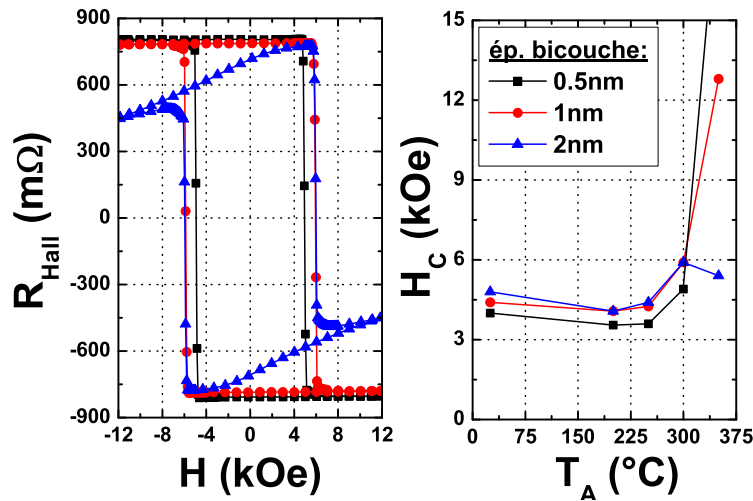


FIGURE 3.8 – A gauche : Cycles d’hystérésis des échantillons recuits à 300°C avec différentes épaisseurs de bicouche. A droite : évolution du champ coercitif en fonction de la température de recuit.

Ces trois échantillons présentent des caractéristiques quasi-identiques en termes de champ coercitif et d’aimantation pour des recuits inférieurs à 300°C. À partir de 300°C, l’échantillon  $\text{Ta}_3/(\text{Tb}_{0.9}/\text{Co}_{1.1})_5/\text{Cu}_2/\text{Pt}_2$  présente un cycle magnétique caractéristique du spérismagnétisme (situation où chaque sous-réseau a une aimantation inclinée par rapport à la normale), alors que les deux autres restent parfaitement carrés. Cet effet peut s’expliquer par la présence d’atomes paramagnétique au centre de chaque couche de terbium qui provoque un découplage des différentes couches[12].

Pour les applications jonctions tunnel magnétiques, il est nécessaire de garder une aimantation perpendiculaire au plan des couches. Pour cela, il est préférable de fabriquer des multicouches dans lesquelles chaque couche est la plus fine possible. Cependant, plus les couches sont fines, plus le nombre de couches à déposer pour obtenir une épaisseur donnée est important, ce qui rallonge d’autant le temps de fabrication. Un bon compromis est obtenu avec une bicouche d’épaisseur de 1 nm, et il faut alors répéter au moins 4 fois cette bicouche pour obtenir une aimantation perpendiculaire après recuit.

### 3.4 Caractérisation structurale

Ces études magnétiques ne permettent pas de connaître la nature exacte de ces multicouches. En particulier, la structure cristalline n’est pas connue, de même que la répartition des atomes dans la multicouche. Les mesures de rayons X peuvent permettre de répondre à ces questions. Les mesures de diffraction aux grands angles permettent de sonder la structure cristallographique, tandis que les mesures de réflectivité aux petits angles permettent de mesurer la qualité des interfaces, et donc de déterminer si le dépôt

est sous forme d'une multicouche ou d'un alliage. Les mesures de diffraction sont effectuées sur l'échantillon  $\text{Ta}_3/(\text{Tb}_{0,45}/\text{Co}_{0,55})_{10}/\text{Cu}_2/\text{Pt}_2$  recuit à différentes températures, et les mesures de réflectivité sur  $(\text{Tb}_{0,45}/\text{Co}_{0,55})_{10}/\text{MgO}_3$ . Dans ce dernier cas, la couche tampon a été enlevée et la couche de couverture simplifiée pour diminuer les réflexions parasites. Les résultats sont présentés en figure 3.9.

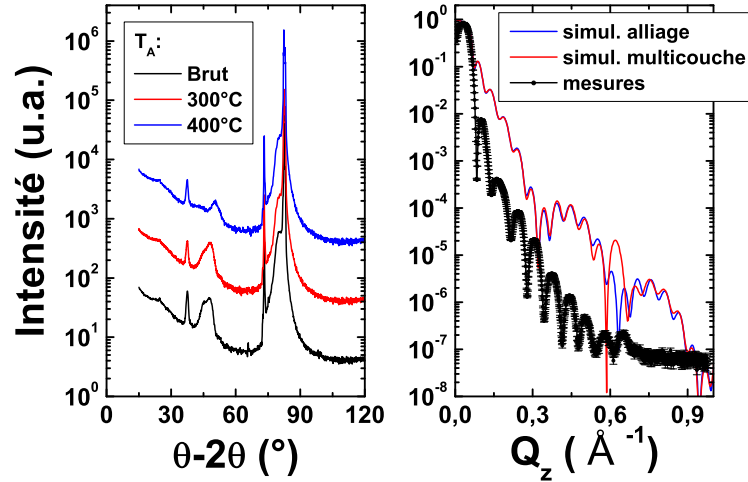


FIGURE 3.9 – A gauche : pics de diffraction mesurés sur les échantillons  $\text{Ta}_3/(\text{Tb}_{0,45}/\text{Co}_{0,55})_{10}/\text{Cu}_2/\text{Pt}_2$ . Les pics mesurés proviennent du substrat ou des couches tampons et de couverture, le TbCo ne donnant aucun signal. A droite : mesure de réflectivité de l'échantillon  $(\text{Tb}_{0,45}/\text{Co}_{0,55})_{10}/\text{MgO}_3$  brut de dépôt (en noir), simulation de la structure alliage (en bleu) et de la structure multicouche (en rouge).

Les mesures de diffraction ne montrent pas de pics caractéristiques des différentes phases cristallographiques du TbCo, même sur l'échantillon recuit à 400°C. L'alliage semble rester amorphe sur toute cette gamme de température. Les pics mesurés sont ceux du substrat de silicium (100) (à 37,2°, 73,2° et 82,4°), et des couches de cuivre et de platine (111) (double pic de 46 à 48°). Les pics dus à la couche de couverture apparaissent par ailleurs de moins en moins intenses avec la température de recuit, ce qui pourrait s'expliquer par l'incorporation d'atomes de terbium amorphisant la couche de couverture. Des mesures de résistivité des couches de terbium peuvent compléter ces mesures. L'évolution de la résistivité  $\rho$  et de l'angle de Hall  $\alpha_H$  des couches  $\text{Ta}_3/(\text{Tb}_x/\text{Co}_{1-x})_{10}/\text{Cu}_2/\text{Pt}_2$  avec la température de recuit est présentée en figure 3.10. Pour toute température de recuit, l'augmentation de la concentration en terbium provoque une augmentation de la résistivité, ce qui est un résultat classique[2]. Le recuit augmente la résistivité et l'angle de Hall de ces couches jusqu'à 300°C. Ceci peut s'expliquer par la diffusion du terbium dans la couche de cuivre, augmentant la résistivité de cette dernière, et diminuant donc le court-circuit associé à cette couche. Au delà de 350°C, la résistivité des échantillons et l'angle de Hall associé diminuent, ce qui indique une

possible cristallisation de l'alliage. Le fait que cette cristallisation n'a pas été détectée par ces mesures de rayons X indique que la taille des grains cristallisés est probablement de l'ordre de quelques nm, et que ces grains sont décorrélés cristallographiquement. La température de cristallisation autour de 350°C est concomitante avec la diminution d'anisotropie observée, et proche de celle observée par d'autres équipes[14].

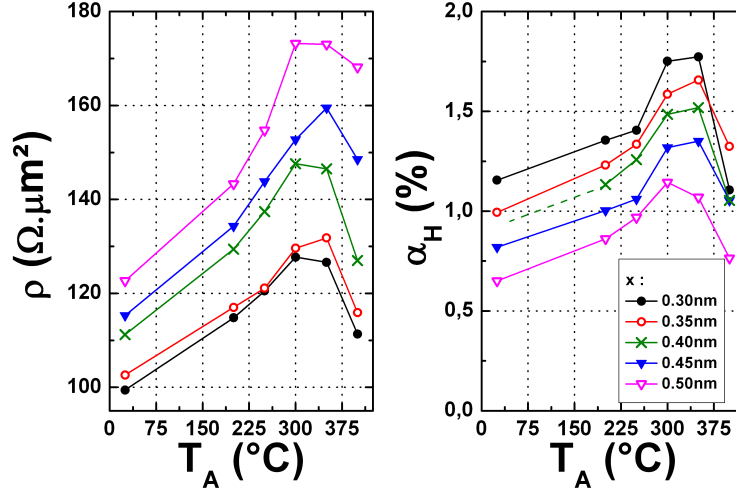


FIGURE 3.10 – Évolution de la résistivité  $\rho$  (à gauche) et de l'angle de Hall  $\alpha_H$  (à droite) des couches de CoTb pour différentes concentrations  $x$  en fonction de la température de recuit  $T_A$ .

Les mesures de réflectivité montrent des franges de Kiessig caractéristiques de réflexions multiples aux interfaces. Les spectres simulés sur le logiciel Parratt32[19] de la couche parfaitement alliée et de la multicouche aux interfaces parfaites, dans les deux cas calculés avec une rugosité de 0,2 nm et les densités des matériaux massifs, sont très proches l'un de l'autre. Les oscillations haute fréquence sont dues à l'interférence entre l'onde réfléchie par l'interface  $SiO_2$  et l'interface inférieure du  $MgO$ , celles de moyenne fréquence à l'interférence des ondes réfléchies aux interfaces du  $MgO$ . Enfin, les interférences dues aux réflexions aux interfaces d'une couche simple de cobalt ou de terbium n'apparaissent que pour  $Q_z=0,6 \text{ \AA}^{-1}$ . La différence entre les deux structures n'apparaît qu'à ce niveau. Malheureusement, l'échantillon déposé présente une rugosité trop importante, et les interférences s'amortissent donc trop rapidement pour savoir si la structure est en multicouche ou en alliage. Cependant, au vu des mesures magnétiques, du caractère amorphe du matériau et de la diminution des pics de diffraction du cuivre et du platine, la longueur caractéristique d'interdiffusion semble plus importante que l'épaisseur des couches, et il est fort probable que l'échantillon soit sous forme d'alliage. L'ajustement numérique effectué avec Parratt32 permet de déterminer de façon relativement précise les épaisseurs des couches. La couche de TbCo mesurée ici est plutôt épaisse de  $9(\pm 0,4) \text{ nm}$ , l'alliage formé est donc plus compact que l'épaisseur nominale

déposée (10 nm). Les paramètres de rugosité ou de densité n'ont pas pu être ajustés de façon fiable par cette méthode.

## 3.5 Conclusion

Les alliages CoTb sont des matériaux très intéressants pour les jonctions tunnel magnétiques car ils permettent d'obtenir des structures à forte coercivité et faible aimantation en ajustant la composition du dépôt. Ces alliages peuvent être fabriqués par dépôt alterné de couches de cobalt et de terbium, chaque couche devant être la plus fine possible (typiquement de l'ordre de 0,5 nm) pour obtenir un alliage amorphe possédant une bonne tenue au recuit. La composition doit être ajustée en fonction de la température de recuit et de l'épaisseur totale de la multicouche pour compenser la diffusion et l'oxydation du terbium qui changent la composition effective de l'alliage. Cependant il a été possible d'obtenir des structures présentant des cycles parfaitement carrés avec une coercivité supérieure à 15 kOe même après recuit à 300°C. Ces alliages seront plus adaptés à la fabrication d'électrodes de référence qu'à celles de stockage, car une épaisseur d'au moins 4 nm est nécessaire pour obtenir l'anisotropie perpendiculaire après recuit. Cette épaisseur est trop importante pour la commutation par couple de transfert de spin. De plus, l'amortissement de Gilbert de ces couches est important à cause de la présence des lourds atomes de terbium qui ont un fort couplage spin-orbite. Ceci diminue encore l'efficacité du couple de transfert de spin et rend donc ces structures difficilement commutables par courant.



# Bibliographie

- [1] T. Tokunaga, M. Harada, M. Ohkoshi, S. Honda and T. Kusuda, IEEE Trans. Magn. **22**, 940-942 (1986)
- [2] T. W. Kim and R. J. Gambino, J. Appl. Phys. **87**, 1869-1873 (2000)
- [3] D. Givors and J.-P. Nozières, Semiconductors and rare-earth based materials, *World Scientific*, 147-197 (1991)
- [4] S.-C. N. Cheng, Mark H. Kryder and M. C. A. Mathur, IEEE Trans. Magn. **25**, 4018-4020 (1989)
- [5] T. Mizoguchi and G. S. Cargill, J. Appl. Phys. **50**, 3570-3582 (1979)
- [6] H. Fu, M. Mansuripur and P. Meystre, Phys. Rev. Lett. **66**, 1086-1089 (1991)
- [7] M.D. Kuz'min, J. Magn. Magn. Mater. **323**, 1068-1082 (2011)
- [8] D. Raasch, J. Appl. Phys. **80**, 2964-2967 (1996)
- [9] P. C. Kuo and C.-M. Kuo, J. Appl. Phys. **84**, 3317-3321 (1998)
- [10] M. Murakami and M. Birukawa, J. Magn. Magn. Mater. **320**, 608-611 (2008)
- [11] X. Liu, A. Morisako, H. Sakurai, Y. Sakurai, M. Itou and A. Koizumi, J. Magn. Magn. Mater. **310**, 1744-1746 (2007)
- [12] L. Ertl, G. Endl and H. Hoffmann, J. Magn. Magn. Mater. **113**, 227-237 (1992)
- [13] T. R. McGuire, R. J. Gambino and R. C. Taylor, J. Appl. Phys. **48**, 2965-2970 (1977)
- [14] M. L. Soltani, Jour. Non-Crystalline Sol. **353**, 2074-2078 (2007)
- [15] J. M. D. Coey and P. W. Readman, Nature **246**, 476-478 (1973)
- [16] J. M. D. Coey, J. Chappert, J. P. Rebouillat and T. S. Wang, Phys. Rev. Lett. **36**, 1061-1064 (1973)
- [17] M. L. Soltani, Jour. of Alloys and Compounds **323-324**, 422-426 (2001)
- [18] T. C. Hufnagel, S. Brennan, P. Zschack and B. M. Clemens, Phys. Rev. B **53**, 12024-12030 (1996)
- [19] <http://parratt32.software.informer.com/>



## Chapitre 4

# Fabrication de jonctions tunnel à aimantation perpendiculaire

Les jonctions tunnel magnétiques à aimantation perpendiculaire sont présentées comme les briques de base des futures mémoires MRAM. La forte anisotropie des matériaux à aimantation perpendiculaire permet d'envisager la fabrication de jonctions de diamètre inférieur à 22 nm thermiquement stables, et l'utilisation de l'écriture par transfert de spin permet d'envisager une simplification importante de la structure des cellules MRAM. Ces améliorations doivent conduire à la fabrication de mémoires à forte densité de stockage, faible consommation et à lecture/écriture rapide.

Jusqu'aux années 2008, peu de résultats ont été publiés sur ce type de jonctions. Il faut néanmoins citer le travail de Nishimura et al.[1] qui ont obtenu une magnétorésistance de 55% à température ambiante dans des jonctions tunnel magnétiques dans lesquelles les électrodes magnétiques de CoFe sont tirées hors du plan par des alliages TbFeCo et GdFeCo, la barrière tunnel étant fabriquée en alumine. La première démonstration de retournement par courant polarisé en spin dans les jonctions à aimantation perpendiculaire a été réalisée par Nakayama et al.[2] dans des jonctions utilisant des alliages TbFeCo et une barrière de MgO. Cependant, la magnétorésistance reste dans ce système relativement faible (de l'ordre de 10%) comparée aux systèmes à aimantation planaire classiques. Une importante étape a été franchie quand Ikeda et al.[3] ont démontré que des systèmes Ta/CoFeB/MgO/CoFeB/Ta permettaient d'obtenir une magnétorésistance supérieure à 100% et une densité de courant d'écriture de l'ordre de  $4 \cdot 10^6$  A/cm<sup>2</sup>. L'anisotropie induite à l'interface CoFeB/MgO permet de tirer hors du plan les aimantations, mais elle reste cependant insuffisante pour fabriquer des points mémoires de diamètre inférieur à 50 nm thermiquement stables. De nombreuses autres études présentent des structures utilisant des multicouches métalliques[4, 5], des alliages L1<sub>0</sub>[6], des alliages terre rare/métal de transition[1, 7], ou une combinaison de ces matériaux[8]. Ces matériaux présentent une plus grande stabilité thermique, mais également un amortissement de Gilbert bien plus grand[9, 10], ce qui rend l'écriture de ces jonctions par couple de transfert de spin plus difficile à réaliser.

L'objectif de ce chapitre est de montrer les étapes clés dans la fabrication d'une jonction

tunnel magnétique. Tout d'abord une présentation rapide de la fabrication et de l'optimisation de barrières tunnel obtenues par oxydation naturelle d'une couche métallique sera faite, puis un modèle simple permettant de décrire l'anisotropie de multicouches métalliques pouvant servir d'électrode magnétique sera exposé. Ensuite, l'avantage de l'utilisation de structures antiferromagnétiques synthétiques rayonnant peu de champ en tant qu'électrode de référence sera démontré. Enfin, la dernière partie sera consacrée à la fabrication et à la caractérisation de jonctions tunnel à aimantation perpendiculaire.

## 4.1 Fabrication de la barrière tunnel

La barrière tunnel est l'élément permettant de découpler les deux couches magnétiques d'une jonction tunnel. Elle joue un rôle important dans les caractéristiques électriques de la jonction. Non seulement elle détermine la résistance de l'empilement mais la magnétorésistance tunnel sera également fortement reliée à sa qualité. Il existe plusieurs méthodes pour fabriquer la barrière tunnel : il est possible de déposer l'oxyde directement à partir d'une cible céramique par pulvérisation cathodique radiofréquence ou par oxydation plasma ou naturelle d'une couche métallique. Dans la suite, les barrières sont fabriquées par oxydation naturelle.

Pour cette méthode, il convient pour des conditions de pression et de durée d'oxydation données d'ajuster l'épaisseur métallique à oxyder afin d'obtenir une barrière homogène, sans trou d'épingle, et parfaitement oxydée. En effet, si l'épaisseur de la couche métallique déposée est trop importante, la barrière est sous oxydée, seule la partie supérieure de la couche métallique devient un oxyde, et l'interface inférieure est de type métal magnétique/métal non magnétique. Les électrons sont diffusés à cette interface et peuvent perdre leur polarisation en spin, ce qui diminue la magnétorésistance tunnel. Au contraire, si la couche métallique est trop fine, la barrière peut être suroxydée et une partie de l'électrode magnétique inférieure est alors oxydée, ce qui réduit également la magnétorésistance tunnel. Dans un cas extrême, si la barrière est trop fine, des trous d'épingle peuvent apparaître et diminuent de façon dramatique la magnétorésistance tunnel et la résistance de l'empilement. Il faut noter qu'un recuit après dépôt permet d'homogénéiser la structure de la barrière. La diffusion thermiquement activée des espèces permet de repomper l'oxygène dans la barrière et de lisser les interfaces, ce qui conduit à une augmentation du signal magnétorésistif[11, 12]. De plus, ce recuit est nécessaire pour cristalliser la barrière MgO et les électrodes magnétiques et obtenir un filtrage des états de symétrie  $\Delta_1$ .

Il existe plusieurs méthodes pour contrôler la qualité d'une barrière. La première est de mesurer directement le signal magnétorésistif d'une jonction tunnel et de trouver les conditions donnant la magnétorésistance tunnel la plus grande. La seconde est de contrôler l'anisotropie perpendiculaire induite à l'interface métal magnétique/oxyde[13] par les liaisons Co-O ou Fe-O[14]. Bien que ce point continue d'être une source de débats, il semble que les conditions donnant une anisotropie perpendiculaire maximale correspondent à une barrière tunnel parfaitement oxydée[15] et donnant une magnéto-

résistance tunnel maximale[16].

### 4.1.1 Mesures CIPT

Les mesures de magnétorésistance tunnel sont habituellement effectuées en appliquant un courant perpendiculaire au plan des couches. C'est dans cette direction que les électrons doivent circuler pour passer par effet tunnel à travers la barrière d'oxyde. Pour pouvoir mesurer le signal magnétorésistif, il est nécessaire de fabriquer des piliers de taille micro voir nanométrique. En effet, pour pouvoir mesurer la résistance d'un empilement, il est nécessaire d'avoir une résistance valant au moins une dizaine d'Ohms. La résistance d'un empilement vaut  $R = \rho t / S$ , où  $\rho$  est la résistivité de la structure et  $S$  la section du pilier. La résistivité des matériaux utilisés (la barrière tunnel étant la principale contributrice) donne donc des conditions sur le rapport  $t/S$ . Cette fabrication nécessite de longues étapes de gravure/lithographie/isolation des électrodes, etc..., cette fabrication pouvant engendrer des défauts changeant les caractéristiques électriques de la jonction indépendamment des matériaux utilisés. Pour éviter ces étapes, une méthode a été développée par Worledge et al.[17]. Cette méthode dite CIPT (pour "Current In-Plane Tunneling") permet de mesurer de façon rapide la magnétorésistance tunnel (TMR) et le produit aire-résistance (RA) de la jonction sur des couches continues. Le principe est de mesurer par une méthode "quatre pointes alignées" la résistance de l'empilement en fonction de la distance entre les pointes lorsque le courant passe dans le plan des couches. Un modèle simple permet alors de remonter aux valeurs des résistances de l'empilement lorsque le courant est appliqué perpendiculairement au plan des couches. L'empilement est modélisé par quatre résistances : la résistance de la couche supérieure  $R_T$ , la résistance de la couche inférieure  $R_B$  et deux fois la résistance de la barrière  $RA/t$  (figure 4.1). L'application d'un champ magnétique permet de modifier l'état de la jonction tunnel et ainsi de mesurer la magnétorésistance tunnel lorsque le courant est appliqué dans le plan des couches, puis de remonter à la magnétorésistance de l'empilement lorsque le courant est appliqué perpendiculairement au plan des couches.

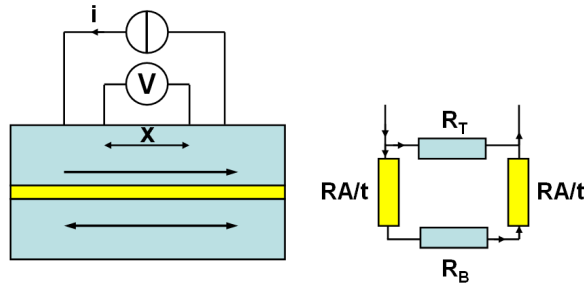


FIGURE 4.1 – Méthode de mesure CIPT et modèle utilisé par Worledge pour calculer la résistance de l'empilement.

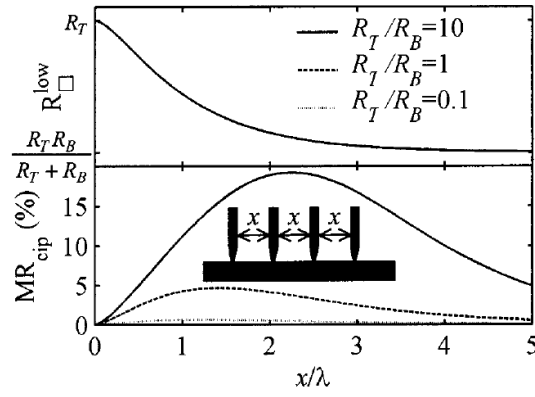


FIGURE 4.2 – Résistance (en haut) et magnétorésistance mesurée avec un courant appliqué dans le plan des couches (en bas) en fonction de la distance de mesure normalisée entre pointes  $x/\lambda$ . D'après [17].

L'utilisation de cette méthode nécessite cependant quelques aménagements. En particulier, le rapport des résistivités des couches inférieure et supérieure doit être ajusté en fonction de la résistivité de la barrière et de la distance entre les pointes pour pouvoir mesurer correctement le signal magnétorésistif. Dans le cas de barrière de  $RA$  compris entre 10 et 50  $\Omega \cdot \text{cm}^2$ , une couche tampon de 60 nm de cuivre nitruré est déposée avant la jonction tunnel. De plus, pour obtenir un bon contact entre les pointes et l'empilement, il est nécessaire de déposer une couche de ruthénium à la fin de l'empilement.

La société CAPRES a développé un appareil utilisant ce principe de mesure pour la caractérisation rapide de jonctions tunnel magnétiques. C'est cet appareil qui est principalement utilisé dans la suite pour étudier électriquement les jonctions tunnel magnétiques en couche continue.

#### 4.1.2 Étude du degré d'oxydation de la barrière

Pour étudier les effets du degré d'oxydation de la barrière, il est possible de déposer sur une plaque de silicium de 100 mm de diamètre une jonction tunnel magnétique standard, à aimantation planaire. Cette jonction est  $\text{Ta}_3/\text{CuN}_{60}/\text{Ta}_5/\text{CoFeB}_4/\text{Al}_{t\text{AlOxnat}}/-\text{CoFeB}_3/\text{Ru}_{0.9}/\text{Co}_2/\text{IrMn}_7/\text{Cu}_3/\text{Ru}_7$ . Un décalage de 100 mm entre l'axe de la cible et l'axe du substrat est imposé pendant le dépôt de la couche d'aluminium, de telle sorte que l'épaisseur de cette couche métallique varie sur la plaque. La variation de l'épaisseur en fonction de la position est connue grâce à des mesures de réflectivité sur un échantillon témoin. Cette méthode permet de faire varier l'épaisseur de la barrière tout en s'affranchissant des problèmes de reproductibilité. La jonction est recuite à 240°C pendant 90 minutes sous 2,3 kOe de champ pour piéger la couche de référence supérieure avec l'IrMn.

Le cycle magnétique caractéristique obtenu pour une telle jonction est présenté en fi-

gure 4.3. Ce cycle montre que la couche de référence est bien piégée par échange avec l'IrMn et que le couplage à travers le ruthénium est antiferromagnétique. Les sauts d'aimantation proches du champ nul correspondent au renversement de la couche libre de 4 nm de CoFeB. Ce cycle est décalé par rapport au champ nul de  $H_{coupl}$  à cause du couplage à travers la barrière dû essentiellement au couplage peau d'orange et aux trous d'épingles. Ce couplage varie avec l'épaisseur de la barrière.

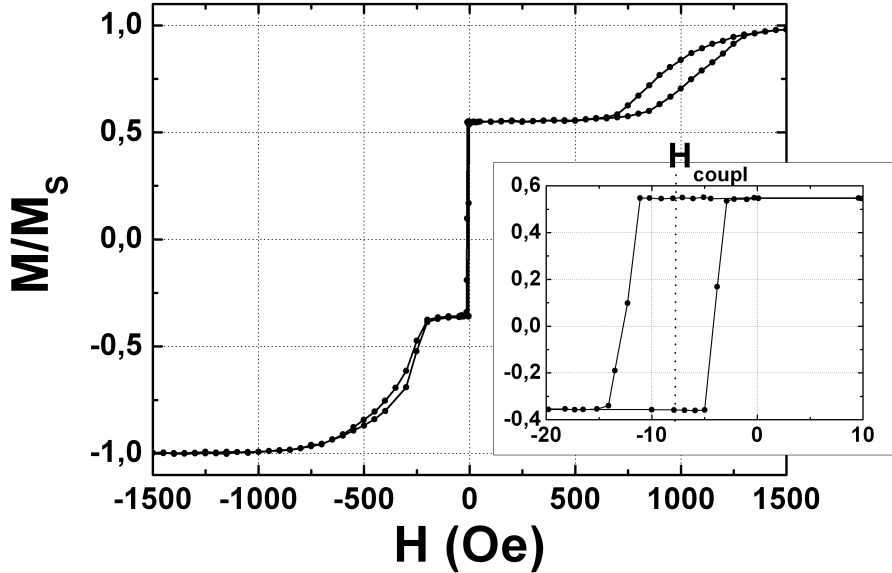


FIGURE 4.3 – Cycle magnétique mesuré au VSM d'une jonction tunnel magnétique plane. Dans l'insert : renversement de la couche libre.

La figure 4.4 présente les résultats des mesures CIPT effectuées à Crocus Technology<sup>1</sup> sur cet échantillon. Le produit aire-résistance de l'empilement augmente avec l'épaisseur de la barrière, tandis que le couplage ferromagnétique à travers la barrière diminue. La magnétorésistance tunnel quant à elle passe par une valeur maximale pour  $t_{Al}=0,54(\pm 0,03)$  nm. Lorsque la barrière est continue, le couplage à travers la barrière doit suivre la loi de Néel. L'équation 1.6 prédit une variation exponentielle du couplage ferromagnétique avec l'épaisseur de la barrière. Cette loi est bien vérifiée pour  $t_{Al} > 0,5$  nm, mais le couplage devient plus important que prévu en dessous de cette valeur. Il est possible d'attribuer cette augmentation à un couplage supplémentaire dû à des discontinuités dans la barrière couplant directement les deux électrodes. Le produit aire-résistance quant à lui doit également suivre une loi exponentielle d'après Simmons[18] :

1. Je remercie Clarisse Ducruet pour les mesures CIPT.

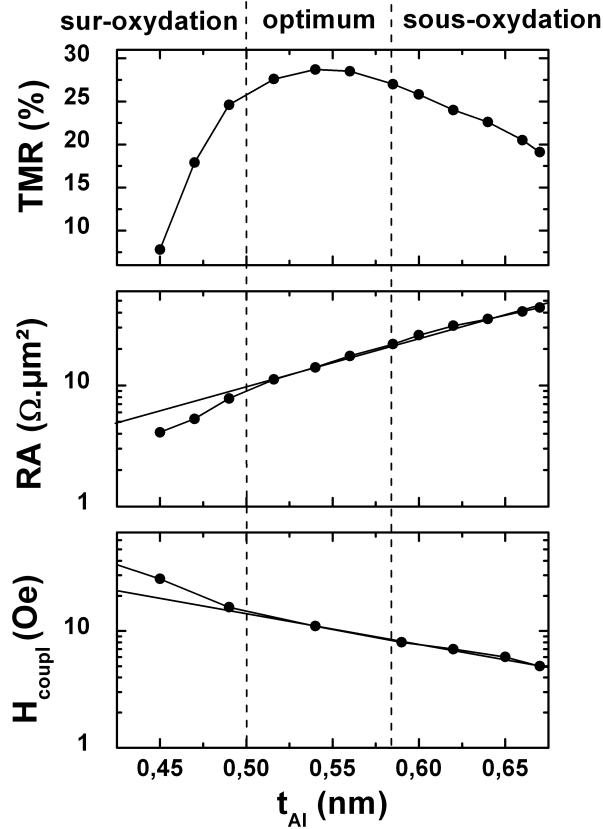


FIGURE 4.4 – Évolution de la magnétorésistance tunnel (en haut), du produit aire-résistance (au milieu) et du champ de couplage (en bas) en fonction de l'épaisseur  $t_{Al}$  déposée pour une jonction tunnel magnétique à aimantation planaire.

$$\ln(RA) = \frac{4\pi t_{Al} O_x \sqrt{2m\phi}}{h} \quad (4.1)$$

où  $\phi$  est la hauteur de barrière et  $h$  la constante de Planck. Encore une fois, cette loi est bien vérifiée pour  $t_{Al} > 0,5$  nm, mais le produit aire-résistance est inférieure à ce qui est prévu par l'équation 4.1 en dessous de cette valeur. Il est possible d'attribuer cette déviation à des trous d'épingle qui créent des ponts métalliques réduisant la résistance de l'empilement comparé à la situation où la barrière est continue. La hauteur de barrière calculée en utilisant l'équation 4.1 et les données mesurées pour  $t_{Al} > 0,5$  nm est de  $0,9(\pm 0,05)$  eV. Bien que les différentes épaisseurs d'aluminium oxydées dans les mêmes conditions puissent avoir une stoechiométrie en oxygène différente, et donc une hauteur de barrière différente, cette valeur est cohérente avec les résultats disponibles dans la littérature[19].

Il est possible de définir à partir de ces courbes trois zones :

- une zone de sur-oxydation, pour  $t_{Al} < 0,5$  nm. Dans cette zone, la couche d'aluminium



déposée est discontinue, il y a donc une oxydation partielle de la couche inférieure. Les trous d'épingles présents dans la barrière couplent directement les deux électrodes. Les ponts métalliques diminuent la résistance et la magnétorésistance tunnel de l'empilement.

- une zone de sous-oxydation, pour  $t_{Al} > 0,58$  nm. Dans cette zone la quantité d'oxygène apportée est insuffisante pour obtenir une barrière homogène, et une fine couche d'aluminium métallique est probablement présente à l'interface inférieure, ce qui diminue la magnétorésistance tunnel.
- une zone d'oxydation optimale, pour  $0,5 \text{ nm} < t_{Al} < 0,58$  nm. Dans ce cas, la barrière est parfaitement oxydée et continue, la magnétorésistance tunnel atteinte est maximale.

Dans la suite, la barrière standard utilisée est faite en MgO. Le MgO possède une hauteur de barrière inférieure à celle de l'alumine, ce qui permet d'avoir pour une même épaisseur de barrière une résistance plus faible. De plus, la cristallisation de la barrière de MgO permet d'obtenir une plus grande magnétorésistance tunnel qu'avec une barrière amorphe d'alumine. La barrière de MgO utilisée a été développée à SPINTEC :  $\text{Mg}_{0,9}\text{oxnat}/\text{Mg}_{0,5}$ , l'oxydation naturelle se faisant sous 250 mbar d'oxygène pendant 180 s. La couche de 0,5 nm de Mg ajoutée après oxydation permet de diminuer artificiellement la concentration en oxygène tout en diminuant le nombre de trous à travers la barrière. Cette couche additionnelle augmente la magnétorésistance tunnel des jonctions pour des RA de l'ordre de  $10 \text{ } \Omega \cdot \mu\text{m}^2$  [20].

## 4.2 Électrodes à aimantation perpendiculaire

### 4.2.1 Calcul théorique

Pour réaliser une électrode perpendiculaire il est possible d'utiliser un système multicouche type  $\text{CoFeB}/(\text{NM}/\text{Co})_n$ , où NM est du platine, du palladium ou du terbium. La multicouche  $(\text{Co}/\text{NM})$  est désignée comme couche magnétique 1 sur la figure 4.5, elle donne l'anisotropie perpendiculaire à la couche de  $\text{CoFeB}$  (désignée comme couche magnétique 2) qui sera en contact avec une barrière tunnel et va polariser en spin les électrons. Les deux couches sont couplées magnétiquement à travers un espaceur.

Le système peut être modélisé par une équation simple, qui s'écrit en l'absence de champ magnétique appliqué :

$$E = -K_1^{eff} t_1 \cos^2(\theta_1) - K_2^{eff} t_2 \cos^2(\theta_2) - A \cos(\theta_1 - \theta_2) \quad (4.2)$$

où  $K_i^{eff}$  est l'anisotropie effective de la couche  $i$  pouvant être décrite par l'équation 2.2,  $A$  la constante de couplage entre les deux couches et  $\theta_i$  l'angle entre l'aimantation de la couche  $i$  et la normale au plan des couches, comme défini sur la figure 4.5. Il est possible de connaître les positions d'équilibre du système à partir des dérivées de l'équation 4.2 :

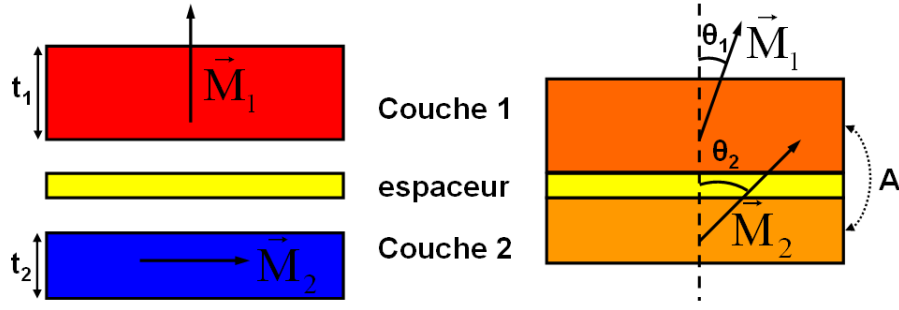


FIGURE 4.5 – Schéma des deux couches magnétiques 1 et 2, découplées à gauche et couplées à travers un espaceur à droite.

$$\frac{\partial E}{\partial \theta_1} = -K_1^{eff} t_1 \sin(2\theta_1) + A \sin(\theta_1 - \theta_2) \quad (4.3)$$

$$\frac{\partial E}{\partial \theta_2} = -K_2^{eff} t_2 \sin(2\theta_2) - A \sin(\theta_1 - \theta_2) \quad (4.4)$$

Les doublets  $(0,0)$  et  $(\pi/2, \pi/2)$  sont des solutions triviales de ce jeu d'équations. Ce sont des positions d'équilibres stables si elles vérifient ces conditions :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial \theta_1^2} = -2K_1^{eff} t_1 \cos(2\theta_1) + A \cos(\theta_1 - \theta_2) > 0 \quad (4.5)$$

$$\frac{\partial^2 E}{\partial \theta_2^2} = -2K_2^{eff} t_2 \cos(2\theta_2) + A \cos(\theta_1 - \theta_2) > 0 \quad (4.6)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 E}{\partial \theta_1^2} \frac{\partial^2 E}{\partial \theta_2^2} - \frac{\partial^2 E}{\partial \theta_1 \partial \theta_2} \frac{\partial^2 E}{\partial \theta_2 \partial \theta_1} &= 4K_1^{eff} t_1 K_2^{eff} t_2 \cos(2\theta_1) \cos(2\theta_2) - \\ &2A \cos(\theta_1 - \theta_2) [K_1^{eff} t_1 \cos(2\theta_1) + 2K_2^{eff} t_2 \cos(2\theta_2)] > 0 \end{aligned} \quad (4.7)$$

Dans la suite, la couche 1 est supposée présenter une anisotropie perpendiculaire ( $K_1^{eff} > 0$ ) et la couche 2 une anisotropie planaire ( $K_2^{eff} < 0$ ). Pour la solution  $(0,0)$ , l'équation 4.5 est toujours vérifiée, l'équation 4.6 donne une condition sur l'épaisseur de la couche 2 :

$$t_2 < -\frac{A}{2K_2^{eff}} \quad (4.8)$$

Ceci montre qu'il est impossible de tirer perpendiculairement au plan une épaisseur trop importante de couche 2, indépendamment de la couche 1. Il est préférable d'avoir le couplage  $A$  le plus important possible pour augmenter cette épaisseur critique. L'équation 4.7 donne la condition sur la couche 1 pour tirer l'ensemble hors du plan :

$$K_1^{eff} t_1 > \frac{AK_2^{eff} t_2}{2K_2^{eff} t_2 - A} \quad (4.9)$$

Pour la solution  $(\pi/2, \pi/2)$ , l'équation 4.6 est toujours vérifiée, l'équation 4.5 donne une condition sur l'épaisseur de la couche 1 à ne pas dépasser pour que la couche 2 puisse tirer la couche 1 dans le plan des couches :

$$t_1 < \frac{A}{2K_1^{eff}} \quad (4.10)$$

L'équation 4.7 donne la condition sur la couche 2 pour que l'aimantation des deux couches soit dans le plan :

$$K_2^{eff} t_2 < \frac{-AK_1^{eff} t_1}{2K_1^{eff} t_1 + A} \quad (4.11)$$

Un dernier doublet  $(\theta_1, \theta_2)$  est la solution stable de ce jeu d'équation lorsque les inégalités présentées ci-dessus ne sont pas vérifiées. Cette solution qui n'est pas calculable analytiquement correspond à des situations intermédiaires pour lesquelles les aimantations sont inclinées par rapport à la normale sans être totalement dans le plan.

### 4.2.2 Fabrication des électrodes

En pratique, il est difficile de mesurer la constante de couplage  $A$  entre les couches magnétiques à partir de cycles d'hystérésis. Cependant, pour les applications développées dans cette thèse, cette grandeur doit être suffisamment grande pour avoir une électrode parfaitement perpendiculaire. Il est possible en première approximation de calculer l'anisotropie effective à température ambiante d'une électrode en supposant que la constante de couplage  $A$  entre les deux couches est suffisamment forte pour considérer l'ensemble comme une couche magnétique unique. Dans ce cas, l'anisotropie effective de l'ensemble vaut :

$$K^{eff} = \frac{t_{(Co/NM)_n} K_{(Co/NM)_n}^{eff} - 2t_{CoFeB} \pi M_{S,CoFeB}^2 + \sum_i K_S^{CoFeB/i}}{t_{(Co/NM)_n} + t_{CoFeB}} \quad (4.12)$$

où  $K_{(Co/NM)_n}^{eff}$  est l'anisotropie effective de la multicouche  $(Co/NM)_n$ ,  $\sum_i K_S^{CoFeB/i}$  la somme des anisotropies induites aux interfaces  $i/CoFeB$  (où  $i$  est NM d'un côté et l'oxyde servant de barrière tunnel de l'autre),  $M_{S,CoFeB}$  l'aimantation à saturation du  $CoFeB$  et  $t_j$  l'épaisseur de  $j$ .

Ce genre de système permet d'ajuster la valeur de l'anisotropie effective sur une large gamme en faisant varier l'épaisseur de la couche de  $CoFeB$ , de cobalt dans la multicouche, et le nombre de répétitions de la multicouche. Le nombre de possibilités est donc extrêmement important, et dans la suite de cette sous-section seule l'influence de

l'épaisseur de la couche de CoFeB est présentée. Les structures étudiées sont : Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>5</sub>/(Co<sub>0,3</sub>/Cu<sub>0,4</sub>/Pt<sub>0,4</sub>)<sub>3</sub>/CoFeB<sub>*t*<sub>CoFeB</sub></sub>/Mg<sub>1</sub>oxnat/Mg<sub>0,5</sub>/Cu<sub>2</sub>/Pt<sub>2</sub><sup>2</sup>, où *t*<sub>CoFeB</sub> varie<sup>3</sup> de 0,45 à 2,2 nm, et recuites à 250°C 10 minutes. Toutes les couches sont parfaitement perpendiculaires, sauf celle avec *t*<sub>CoFeB</sub>=2,2 nm, pour laquelle la couche de CoFeB présente un angle par rapport à la normale en champ nul. La figure 4.6 présente son cycle d'hystérésis. le cycle dans l'insert présente le renversement de la multicouche (Co/Cu/Pt)<sub>3</sub>. Le cycle en champ fort montre qu'il est nécessaire d'appliquer un champ de 2000 Oe pour saturer la couche de CoFeB dans la direction perpendiculaire.

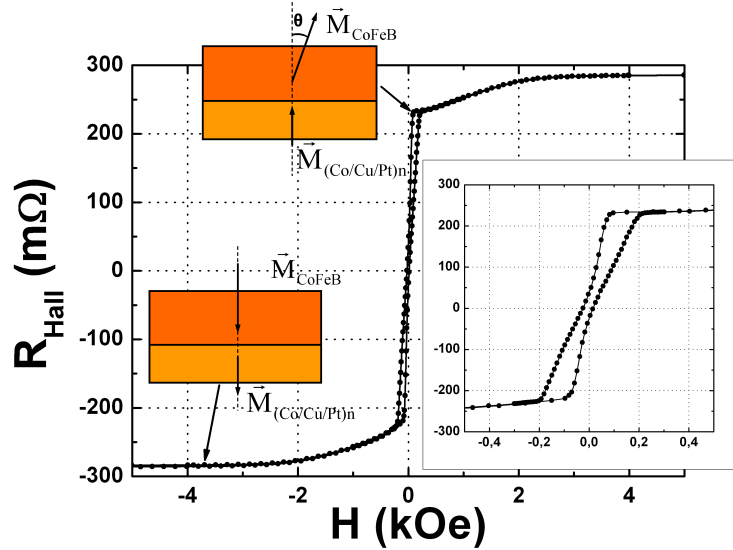


FIGURE 4.6 – Cycles d'hystérésis mesurée en effet Hall extraordinaire de la multicouche avec *t*<sub>CoFeB</sub>=2,2 nm. La couche de CoFeB forme un angle  $\theta$  non nul par rapport à la normale au plan des couches en champ nul.

La figure 4.7 présente l'évolution de l'aimantation à saturation, de l'anisotropie effective et du diamètre minimal de pilier pour assurer une stabilité thermique satisfaisante ( $K^{eff}V/k_B T > 50$ ) en fonction de l'épaisseur de CoFeB.

Les mesures d'aimantation permettent de remonter à l'aimantation à saturation de chaque constituant de l'électrode. En supposant que ces aimantations sont indépendantes de l'épaisseur, l'aimantation totale du système vaut :

$$M_{tot} = \frac{t_{(Co/NM)n} M_{(Co/NM)n} + t_{CoFeB} M_{CoFeB}}{t_{(Co/NM)n} + t_{CoFeB}} \quad (4.13)$$

2. Cette étude a été réalisée alors que la cible de palladium n'était pas encore installée dans la machine. Cependant, toute l'étude présentée ici peut être directement transposée au cas des multicouches (Co/Pd).

3. Ces valeurs sont recalculées en tenant compte d'une dérive de la vitesse de dépôt, c'est pourquoi elles ne sont pas rondes. Ceci est important pour le calcul des paramètres de l'équation 4.12.

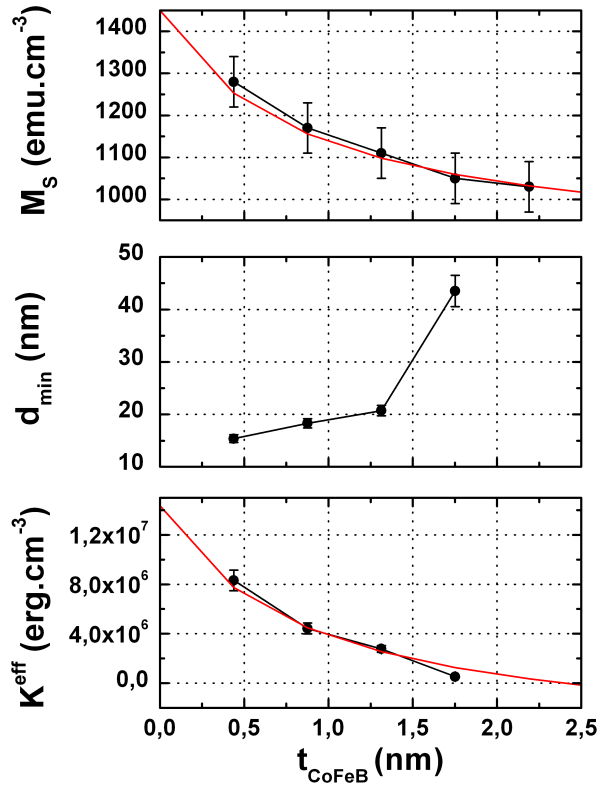


FIGURE 4.7 – Évolution de l’aimantation totale (en haut), du diamètre de pilier minimal permettant de conserver une stabilité thermique satisfaisante (au milieu) et de l’anisotropie effective de l’électrode inférieure (en bas). Les traits continus rouges sont les ajustements numériques permettant de déduire l’aimantation de chaque partie de la multicouche et de l’anisotropie interfaciale de la couche de CoFeB.

En ajustant numériquement cette équation avec les mesures, l’aimantation à saturation de la multicouche  $(\text{Co/Cu/Pt})_3$  vaut  $1450(\pm 100) \text{ emu.cm}^{-3}$  et  $900(\pm 100) \text{ emu.cm}^{-3}$  pour celle de CoFeB. L’aimantation du CoFeB seul est identique. Celle de la multicouche  $(\text{Co/Cu/Pt})_3$  seule est inférieure ( $1300(\pm 80) \text{ emu.cm}^{-3}$ ), l’augmentation mesurée ici peut être dû au couplage avec le CoFeB, ce qui augmente sa température de Curie. Cet effet est décrit dans le chapitre 5.

Il est également possible grâce aux mesures VSM de remonter à l’angle  $\theta$  que forme la couche de CoFeB de 2,2 nm avec la normale au plan. A champ nul, l’aimantation mesurée vaut :

$$M_{tot} = \frac{t_{(Co/NM)_n} M_{(Co/NM)_n} + t_{CoFeB} M_{CoFeB} \cos(\theta)}{t_{(Co/NM)_n} + t_{CoFeB}} \quad (4.14)$$

En pratique, bien qu’à champ nul la structure soit en domaines, il est possible d’extrapoler la courbe pour obtenir cette valeur. Lorsque l’échantillon est saturé dans une

direction, l'aimantation mesurée est donnée par l'équation 4.13. En soustrayant 4.13 et 4.14, il est possible de remonter à la valeur de  $\theta$ . Dans notre cas,  $\theta$  vaut  $=40(\pm 5)^\circ$ , ceci en supposant que les moments magnétiques de la couche de CoFeB sont rigide-ment liés. Cependant, dans le dispositif final qui sera un pilier d'environ 100 nm de diamètre, le couplage dipolaire entre les couches va changer cet angle. Ce genre de struc-ture où l'aimantation des différentes couches tourne est utilisé dans les disques durs et est appelé média composite. L'idée est d'utiliser une couche douce pour diminuer le champ d'écriture. Différentes études ont montré que ce genre de systèmes présentait des avantages significatifs comparé aux matériaux composés d'une couche perpendiculaire unique[21, 22]. Une description plus détaillée de ces systèmes peut être trouvée dans la référence [23].

Il est également possible d'ajuster numériquement avec l'équation 4.12 les valeurs d'ani-sotropie effective mesurées. En utilisant l'aimantation à saturation du CoFeB déduite précédemment, et l'anisotropie effective de la multicouche mesurée dans le chapitre 2, seule l'anisotropie induite aux interfaces du CoFeB reste inconnue. D'après l'ajuste-ment numérique, elle serait de  $0,2(\pm 0,1)$  erg.cm<sup>-2</sup>. L'incertitude relative sur sa valeur est grande car les erreurs de mesures de l'anisotropie et des autres paramètres le sont également. Cependant, cette anisotropie est faible comparée aux autres contributions, et également faible comparée aux valeurs trouvées dans la littérature pour les systèmes Co/oxyde [3, 24]. Ceci est dû au fait que le recuit est effectué à basse température, alors que l'anisotropie perpendiculaire augmente significativement seulement lorsque ce genre de structure est recuit au dessus de 300°C[25]. La rugosité induite par la multicouche (Co/Cu/Pt) peut également jouer un rôle important dans la détérioration de cette ani-sotropie interfaciale.

La multicouche (Co/Cu/Pt) peut être remplacée dans l'exemple présenté ici par une multicouche (Co/Pd) ou (Tb/Co). Dans ce dernier cas, il est possible d'obtenir des élec-trodes très dures (dans le cas où l'électrode est quasi compensée à température ambiante, le champ coercitif peut dépasser les 17 000 Oe). En jouant sur les différents paramètres de la multicouche il est possible de fabriquer une électrode de référence ou de stockage. Une jonction tunnel magnétique complète est obtenue en réalisant un empilement couche tampon/(Co/NM1)<sub>n</sub>/CoFeB/MgO/CoFeB/(NM2/Co)<sub>m</sub>, où NM1 et NM2 sont Pt, Pd ou Tb. Dans le cas de la conception d'électrodes magnétiques pour des mémoires à écri-ture assistée thermiquement, des contraintes supplémentaires sont imposées au niveau de l'évolution de l'anisotropie en fonction de la température. Ce point est abordé au chapitre 5.

## 4.3 Effet des champs rayonnés : étude de structures SAF

Si dans les premières générations de jonctions tunnel magnétiques les couches de références étaient simplement constituées d'une couche ferromagnétique piégée, la di-

minution des tailles latérales des dispositifs a nécessité le développement de nouvelles structures. En effet, lors de la réduction du diamètre du pilier d'une jonction tunnel magnétique, le couplage dipolaire entre l'électrode de référence et l'électrode de stockage devient mesurable, comme expliqué au chapitre 1. Il en résulte que le cycle d'hystérésis de la couche libre est décalé par rapport au champ nul d'une valeur  $H_{dip}$ , indépendamment des différents couplages pouvant intervenir à travers la barrière. Cet effet est d'autant plus grand quand la taille latérale du dispositif diminue, et peut conduire à la situation où il n'existe plus qu'un seul état de résistance à champ nul. Ceci est bien évidemment inacceptable pour les applications MRAM. Pour éviter ce problème, des structures dites "antiferromagnétiques synthétiques" (SAF pour "synthetic antiferromagnet") ont été développées. Dans ce système, la couche ferromagnétique simple est remplacée par deux couches alignées antiferromagnétiquement par couplage RKKY à travers un espaceur non magnétique, en général du ruthénium. L'une de ces couches est piégée dans une direction par un matériau antiferromagnétique, l'autre est en contact avec la barrière tunnel. Dans cette situation, si l'aimantation et l'épaisseur des deux couches sont bien ajustées, le champ rayonné sur la couche libre par la couche de référence s'annule[26]. Dans la suite, ce concept sera adapté au cas des jonctions tunnel à aimantation perpendiculaire, en continuation de travaux précédemment effectués à SPINTEC[29] sur les SAF fabriqués à base de multicouches (Co/Pt).

### 4.3.1 Structures SAF perpendiculaires

Dans le cas de structures perpendiculaires, il n'est pas forcément nécessaire d'utiliser d'antiferromagnétique pour bloquer l'aimantation. En effet, la direction de l'aimantation est déjà piégée par l'anisotropie des couches, et il suffit de s'assurer que celle-ci est suffisamment importante pour éviter un renversement dans les conditions usuelles de fonctionnement. L'ajout d'un matériau antiferromagnétique n'est utile que dans le cas où de forts champs peuvent venir perturber le système. Le système étudié est donc FM1/Ru/FM2, où FM1 et FM2 sont des matériaux ferromagnétiques à aimantation perpendiculaire. En supposant que les aimantations sont monodomaines, l'énergie surfacique de ce système vaut :

$$E = -K_1^{eff} t_1 \cos^2(\theta_1) - K_2^{eff} t_2 \cos^2(\theta_2) + A_{Ru} \cos(\theta_1 - \theta_2) - H(M_1 t_1 \cos(\phi_1) - M_2 t_2 \cos(\phi_2)) \quad (4.15)$$

où  $K_i^{eff}$  et  $M_i$  sont respectivement l'anisotropie effective et l'aimantation de la couche FMi,  $H$  le champ magnétique appliqué et  $A_{Ru}$  la constante de couplage à travers le ruthénium.  $\theta_i$  et  $\phi_i$  sont respectivement les angles que forment l'aimantation de la couche FMi avec la normale au plan des couches et avec la direction du champ appliqué. La figure 4.8 présente les deux cycles d'hystérésis qui peuvent être observés dans un tel système mesuré selon l'axe de facile aimantation.

Les deux situations sont relativement similaires. La couche la plus dure (celle dont la somme de l'énergie Zeeman et de l'énergie d'anisotropie est la plus importante) donne

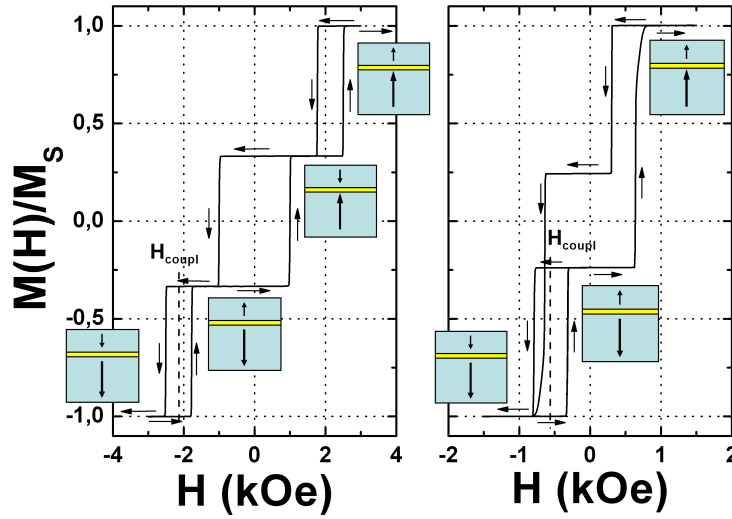


FIGURE 4.8 – Cycles d’aimantation d’un SAF perpendiculaire. A gauche, dans le cas où  $A_{Ru} > HM_2t_2 + K_2^{eff}t_2$  et à droite dans le cas contraire. Les traits pointillés indiquent le champ de couplage  $H_{coupl}$ . Les flèches indiquent le sens du parcours du cycle.

un cycle carré centré par rapport au champ nul (dans le cas des couches continues). La couche la plus douce donne un cycle carré décalé d’une valeur  $H_{coupl}$  par rapport au champ nul à cause du couplage antiferromagnétique. Il est possible de remonter à la valeur de l’énergie de couplage  $A_{Ru}$  à partir de ces mesures :

$$A_{Ru} = H_{coupl}M_2t_2 \quad (4.16)$$

où la couche 2 est supposée être la couche la plus douce. La différence entre les deux cycles provient du rapport entre l’énergie de couplage RKKY et la somme de l’énergie Zeeman et de l’énergie d’anisotropie. Partons du cas où les aimantations des deux couches sont alignées parallèlement par un champ négatif. Lorsque le champ augmente, il arrive un moment où l’énergie de couplage devient supérieure à l’énergie Zeeman de la couche 2, et les deux aimantations s’alignent antiparallèlement. Ce premier saut d’aimantation est dû au renversement de la couche douce FM2. Si le champ appliqué continue d’augmenter, en passant aux valeurs positives, il arrive un moment où l’énergie Zeeman de la couche dure FM1 devient plus importante que son énergie d’anisotropie, et cette dernière se renverse. Si  $A_{Ru} > HM_2t_2 + K_2^{eff}t_2$ , alors l’énergie de couplage RKKY est dominante, et au moment où FM1 se retourne, FM2 se retourne également, FM1 et FM2 restent alignés antiparallèlement, FM1 parallèlement au champ. Dans le cas contraire, FM2 reste dans sa position initiale, parallèle au champ. Il existe donc deux types de cycles, présentant 2 ou 3 sauts d’aimantation selon la situation. Un traitement quantitatif de ce problème devient cependant un peu plus compliqué dans le cas réel où il faut prendre en compte la nucléation de domaines. Hellwig et al. ont proposé



une étude approfondie de ces phénomènes de renversement d'aimantation dans de telles structures[27, 28].

### 4.3.2 Effet de l'insertion d'une couche de Pt

Un des paramètres les plus importants à contrôler dans les systèmes antiferromagnétiques synthétiques est le couplage à travers la couche de ruthénium. Ce couplage oscille avec l'épaisseur de cet espaceur, et il est donc essentiel d'ajuster ce paramètre afin d'avoir un couplage maximal. C'est dans cette situation que la couche de référence sera la moins sensible aux perturbations extérieures. Il est également intéressant de minimiser l'épaisseur de la couche douce, de façon à obtenir un champ de couplage le plus important possible (équation 4.16). Pour un antiferromagnétique synthétique perpendiculaire, il faut utiliser une multicouche (Co/Pt) qui possède une anisotropie perpendiculaire maximale avec le moins de répétitions possible. Cependant, si une des multicouches ferromagnétiques peut être déposée sur des couches tampons Ta/Pt induisant une forte anisotropie perpendiculaire, la seconde doit être déposée sur le ruthénium, donnant une anisotropie plus faible. Pour éviter ce problème, il est possible d'insérer une fine couche de platine à l'interface entre l'espaceur de ruthénium et la multicouche (Co/Pt) supérieure. Cependant, cette solution inventée par Baltz et al. dans le cadre des média multiniveaux[30] diminue également l'intensité du couplage à travers le ruthénium. Il sera donc nécessaire de faire un compromis entre couplage RKKY et anisotropie perpendiculaire. Pour tester cette idée, des empilements  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_5/(\text{Co}_{0,5}/\text{Pt}_{0,4})_5/\text{Co}_{0,5}/\text{Ru}_{t_{\text{Ru}}}/\text{Pt}_{t_{\text{Pt}}}/(\text{Co}_{0,5}/\text{Pt}_{0,4})_3/\text{Pt}_2$  ont été déposés. L'épaisseur du ruthénium et celle de l'insertion de platine ont été variés de façon à observer les oscillations du couplage RKKY et la variation d'anisotropie. Les cycles des empilements avec  $t_{\text{Ru}}=0,7$  nm et  $t_{\text{Pt}}=0; 0,2; 0,5$  et 1 nm sont présentés en figure 4.9.

Sans insertion de platine, le cycle de la multicouche douce supérieure est penché, ce qui indique que son anisotropie est relativement faible. Au contraire, dès qu'une fine couche de platine est ajoutée entre le ruthénium et cette multicouche, le cycle présente une rémanence totale et une coercitivité plus grande. De façon inattendue au premier abord, le champ de couplage antiferromagnétique augmente avec cette insertion. Ceci peut être dû soit à une augmentation du couplage à travers le ruthénium, soit à une diminution de l'aimantation. Les mesures effectuées au VSM n'ont montré aucune différence d'aimantation entre ces différents échantillons, et cet effet est donc bien dû à une augmentation du couplage RKKY, comme le résume la figure 4.10 (points noirs). Des échantillons similaires ont été déposés, en remplaçant la multicouche inférieure par une multicouche (Cu/Pt) d'épaisseur équivalente, non magnétique, ce qui permet de mesurer directement le champ d'anisotropie de la multicouche supérieure. Les résultats sont présentés en figure 4.10 (carrés bleus). L'intérêt de la couche de platine est alors très clair : l'anisotropie effective est triplée dès que 0,2 nm de platine sont déposés entre le ruthénium et la multicouche supérieure.

Il est également nécessaire d'ajuster l'épaisseur de ruthénium pour obtenir un couplage antiferromagnétique maximal. La figure 4.11 présente les oscillations de  $A_{\text{Ru}}$  en

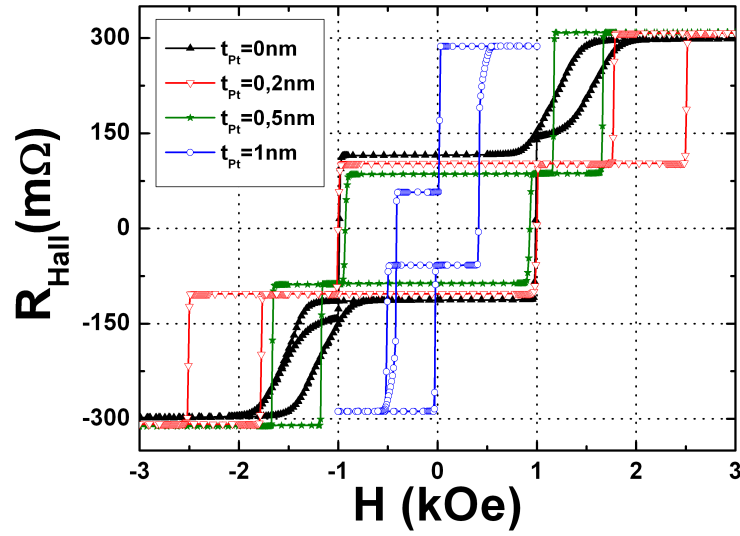


FIGURE 4.9 – Cycles d’hystérésis mesurés par effet Hall extraordinaire de structures antiferromagnétiques synthétiques à base de multicouches (Co/Pt), avec différentes épaisseurs d’insertion de platine  $t_{\text{Pt}}$  sur l’espaceur de ruthénium ( $t_{\text{Ru}}=0,7 \text{ nm}$ ).

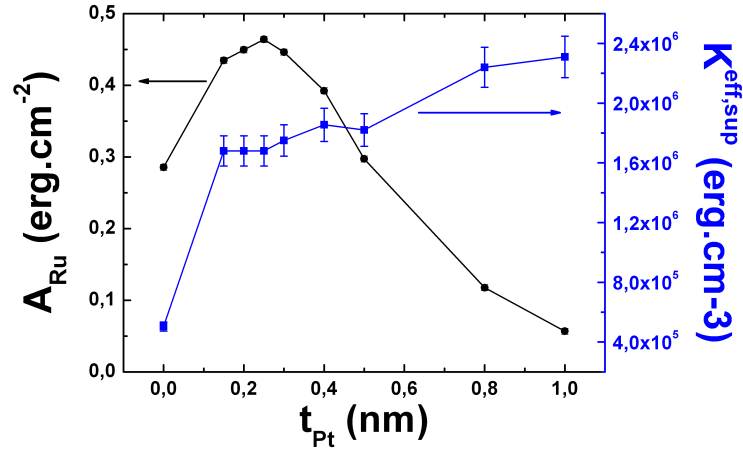


FIGURE 4.10 – Énergie de couplage  $A_{\text{Ru}}$  (points noirs) et anisotropie effective de la multicouche supérieure (carrés bleus) en fonction de l’épaisseur de l’insertion de platine  $t_{\text{Pt}}$  avec  $t_{\text{Ru}}=0,7 \text{ nm}$ . L’anisotropie de la multicouche est mesurée en remplaçant les couches de cobalt de la multicouche inférieure par du cuivre.

fonction de l’épaisseur de ruthénium pour différentes épaisseurs d’insert de platine. L’insert de platine a deux effets : il diminue l’amplitude des oscillations et les déphase, ces effets étant d’autant plus marqués que l’épaisseur de platine est importante. L’effet

du déphasage est particulièrement visible pour le premier pic situé aux alentours de  $t_{Ru}=0,9$  nm sans platine, mais est moins visible pour les pics suivants. L'augmentation du couplage observée précédemment était donc due à ce décalage des pics.

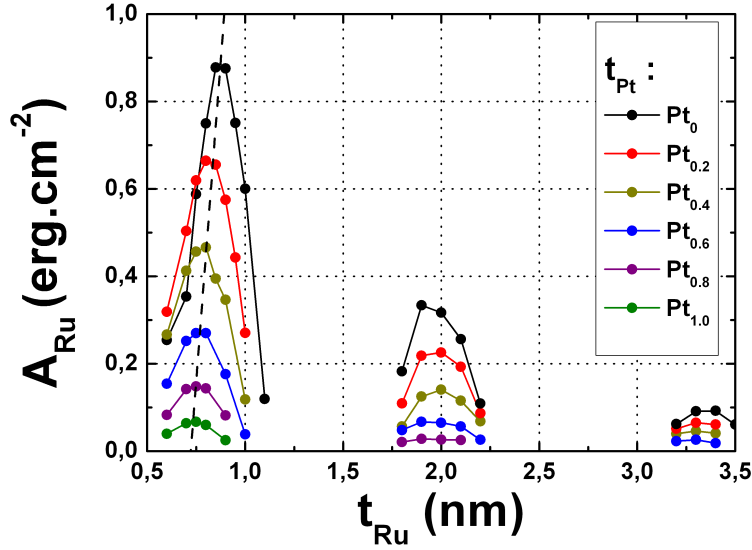


FIGURE 4.11 – Évolution de l'énergie de couplage  $A_{Ru}$  en fonction de l'épaisseur de l'espaceur de ruthénium  $t_{Ru}$  et de l'insertion de platine  $t_{Pt}$ . Le trait pointillé montre le décalage du premier pic avec l'ajout d'une insertion de platine.

La modélisation de ces systèmes est compliquée. En effet, le couplage RKKY étant relié à des détails des fonctions d'onde au niveau de Fermi et des interférences de ces ondes aux interfaces[32, 33, 34], il est difficile de prévoir l'évolution du couplage avec l'ajout du platine. Même sans insertion de platine, la période d'oscillation n'est pas constante : il y a une distance de 1 nm entre les deux premiers pics, puis 1,4 nm entre le second et le troisième. Il faudrait donc modéliser le couplage non pas par l'équation 1.7, mais par des modèles prenant en compte les interférences des ondes électroniques aux interfaces des couches de cobalt[35], des couches de platine dans les multicouches[36], et également prendre en compte le couplage peau d'orange dû à la rugosité du ruthénium. Il faudrait donc modéliser le système par une somme de fonctions sinusoïdales amorties, mais la quantité de paramètres à ajuster rend l'interprétation physique de ces ajustements compliquée.

Il est également important de vérifier que ces structures supportent des températures de recuit compatibles avec l'obtention d'un signal magnétorésistif important. Pour cela, les échantillons situés sur le premier pic du couplage RKKY avec 0,2 nm de platine et sans insert de platine sont recuits à différentes températures. Les résultats sont présentés en figure 4.12. Bien que le couplage diminue avec la température de recuit, il est possible de conserver un couplage RKKY antiferromagnétique au moins jusqu'à 350°C. L'épaisseur de ruthénium donnant un maximum de couplage augmente de 0,5 nm lorsque les

structures sont recuites, ce qui est vraisemblablement dû à l'interdiffusion Co-Ru. Ceci est cohérent avec la diminution de l'amplitude des oscillations[34].

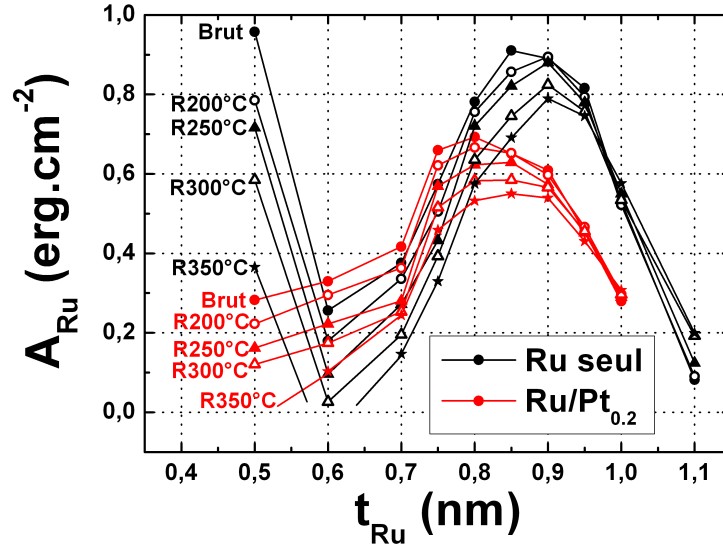


FIGURE 4.12 – Evolution du couplage RKKY avec un espaceur de ruthénium simple (en noir) et un espaceur ruthénium et insertion de platine de 0,2 nm (en rouge), en fonction de la température de recuit et de l'épaisseur de ruthénium  $t_{Ru}$ .

Enfin, pour réaliser une électrode de référence de jonction tunnel magnétique, il est nécessaire de rajouter une couche de 1 à 2 nm d'épaisseur de CoFeB (sur laquelle est déposée une barrière tunnel) au dessus de la multicouche supérieure. Il est néanmoins nécessaire que cette dernière ait une anisotropie suffisante pour que cet ajout ne fasse pas tomber dans le plan l'aimantation de la multicouche supérieure. La figure 4.13 montre les cycles d'hystérésis des électrodes  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_5/(\text{Co}_{0,5}/\text{Pt}_{0,4})_5/\text{Co}_{0,5}/\text{X}/(\text{Co}_{0,5}/\text{Pt}_{0,4})_3/\text{CoFeB}_{1,8}/\text{MgO}_2/\text{Cu}_2/\text{Pt}_2$ , où X est  $\text{Ru}_{0,9}$  ou  $\text{Ru}_{0,85}/\text{Pt}_{0,2}$ , les épaisseurs de ruthénium étant celles qui donnent un maximum de couplage. Ces échantillons sont recuits à 300°C 30 minutes. Si l'échantillon avec insertion de platine donne des cycles carrés, le cycle de la multicouche supérieure de l'échantillon sans insertion de platine présente une faible coercivité et une faible rémanence. Ceci montre que son anisotropie effective est à la limite du basculement d'anisotropie. Le champ pour lequel la couche douce de l'électrode de référence commence à tourner est plus grand quand une insertion de platine est utilisée. Il est donc intéressant d'utiliser un insert de platine de 0,2 nm, déposé au dessus de la couche de ruthénium. Ce système offre un bon compromis entre anisotropie perpendiculaire et couplage antiferromagnétique<sup>4</sup>.

4. Cette étude a été partiellement reproduite dans le cas de multicouches (Co/Pd), où l'insertion de palladium au dessus du ruthénium a le même effet que le platine, et présente donc le même intérêt.

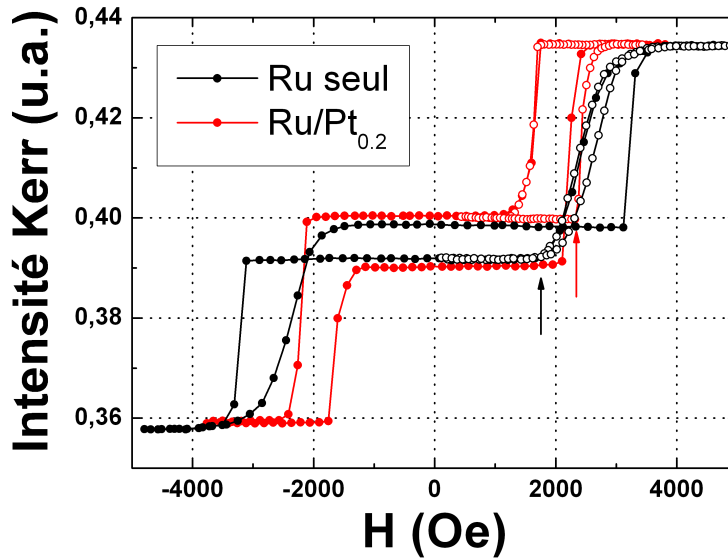


FIGURE 4.13 – Cycles d’hystérésis mesurés à l’effet Kerr polaire des électrodes de références SAF avec (en rouge) et sans (en noir) insertion de platine. Les cycles mineurs sont tracés avec des symboles ouverts. Les flèches indiquent le champ auquel la couche douce commence à tourner.

### 4.3.3 Réduction du couplage dipolaire

L’étude de l’énergie de couplage dipolaire peut se révéler compliquée lorsque le couplage entre tous les dipôles magnétiques est pris en compte. Cependant, il est possible de simplifier grandement cette étude avec quelques hypothèses. Dans la suite, l’aimantation de la couche de référence sera considérée comme étant fixe et monodomaine. Dans ce cas, il suffit de calculer le champ rayonné par la couche de référence sur la couche libre pour connaître le décalage en champ  $H_{dip}$  du cycle d’hystérésis de la couche libre par rapport au champ nul. Des modèles analytiques ont été développés dans le passé pour calculer ces champs rayonnés. En particulier, Hubert et al. ont développé un modèle simple où chaque couche magnétique est modélisée par deux faces chargées dont il est possible de calculer le potentiel, puis le champ magnétique rayonné[31]. Une résolution de ce problème a été effectuée sous MATHEMATICA, le détail des calculs peut être trouvé dans la référence[37].

La structure simulée est : SAF ou HL/barrière<sub>0,6</sub>/FL, où SAF est une couche de référence antiferromagnétique synthétique compensée : Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>5</sub>/(Co<sub>0,5</sub>/Pt<sub>0,4</sub>)<sub>5</sub>/Co<sub>0,5</sub>/Ru<sub>0,85</sub>/Pt<sub>0,2</sub>/(Co<sub>0,5</sub>/Pt<sub>0,4</sub>)<sub>3</sub>/CoFeB<sub>1,5</sub>, HL est une couche de référence simple Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>5</sub>/(Co<sub>0,5</sub>/Pt<sub>0,4</sub>)<sub>5</sub>/CoFeB<sub>1,5</sub>, et FL est une couche de stockage CoFe<sub>0,6</sub>/(Pt<sub>1,8</sub>/Co<sub>0,6</sub>)<sub>3</sub>/Pt<sub>2</sub>. Dans le calcul, la nature de la couche de stockage importe peu, seule la distance entre les couches magnétiques compte. La figure 4.14 présente le profil de la composante perpendiculaire  $H_Z$  du champ rayonné au centre de la couche libre en fonction de la dimension latérale

normalisée du pilier  $x/r$ ,  $r$  étant le rayon du pilier,  $d$  son diamètre.

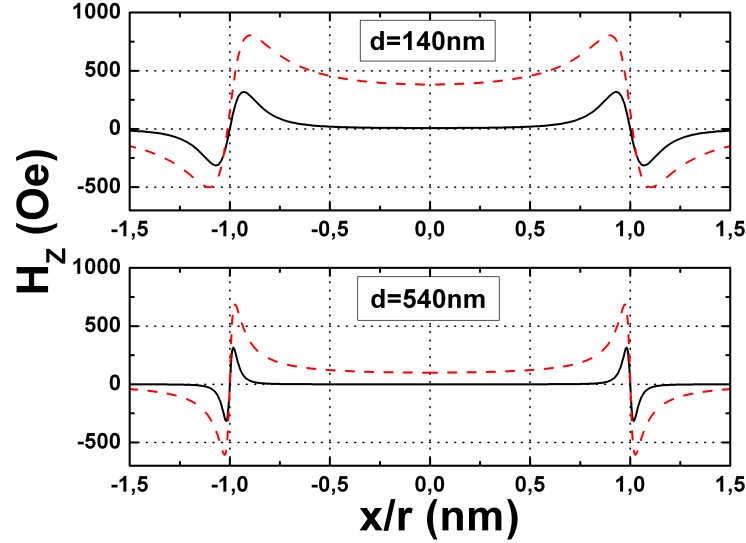


FIGURE 4.14 – Calcul de la composante perpendiculaire  $H_Z$  du champ rayonné par la structure SAF (trait continu noir) et HL (trait pointillé rouge) au centre de la couche libre, pour un pilier de 140 nm de diamètre (en haut) et de 540 nm de diamètre (en bas).

Cette figure montre que le champ rayonné est plus intense sur les bords du pilier, comme prévu, puisque c'est à cet endroit que les dipôles magnétiques ne sont pas compensés par leurs voisins. La figure 4.15 présente l'évolution du champ rayonné moyen  $H_{dip}$  en fonction du diamètre du pilier. Ce champ est plus intense lorsque les dimensions latérales sont réduites, ce qui est logique puisque les effets de bords prennent de plus en plus d'importance par rapport aux effets de volume. Cependant, dans tous les cas, la structure SAF présente un champ rayonné inférieur à la structure HL. Il est remarquable que le champ rayonné puisse dépasser les 500 Oe pour des tailles de pilier de l'ordre de 100 nm si une couche de référence simple est utilisée.

Même en utilisant un antiferromagnétique synthétique, le champ rayonné ne peut pas être annulé en tout point du pilier, car les deux aimantations de la couche de références sont à une distance différente de la couche libre. La structure SAF compensée permet d'annuler le champ rayonné au centre du pilier (quand celui-ci a un diamètre supérieur à 50 nm), mais n'est pas la structure optimale. Pour avoir un champ rayonné moyen le plus faible possible, il faut ajuster le rapport des aimantations et épaisseurs des deux couches du SAF, ce rapport dépendant du diamètre du pilier. La figure 4.16 présente l'évolution du champ rayonné moyen en fonction du rapport  $\alpha = M_1 t_1 / M_2 t_2$ , la couche 2 étant la couche la plus proche de la couche libre dans le SAF. Ce rapport est modifié en changeant dans le modèle le nombre de répétitions de la multicouche FM1. L'insert présente le rapport optimal  $\alpha_{opt}$  (c'est à dire celui qui annule  $H_{dip}$ ) en fonction du

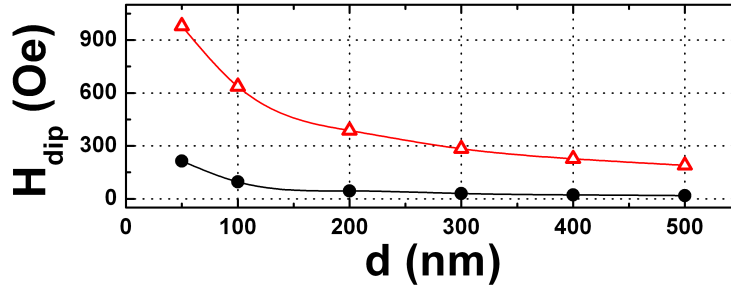


FIGURE 4.15 – Évolution du champ rayonné moyen  $H_{dip}$  au centre de la couche libre en fonction du diamètre du pilier  $d$ , pour la structure HL (triangles rouges) et SAF (ronds noirs).

diamètre du pilier.

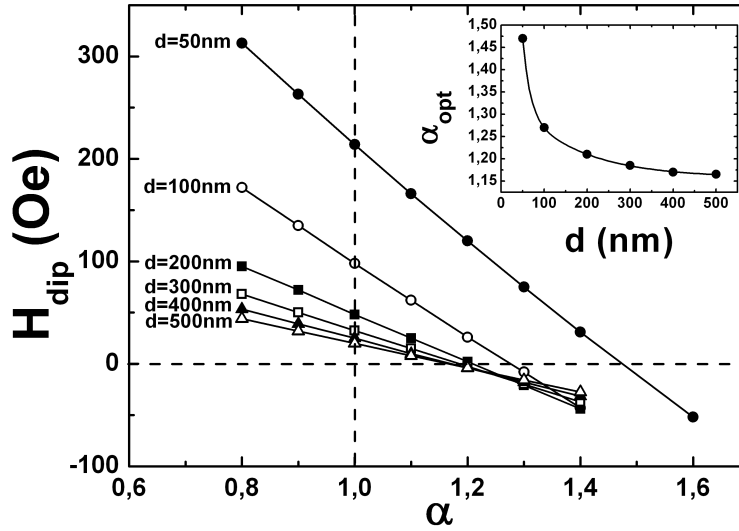


FIGURE 4.16 – Évolution du champ de couplage moyen en fonction du rapport des moments magnétiques du SAF  $\alpha = M_1 t_1 / M_2 t_2$ , 1 étant la couche la plus éloignée de l'électrode libre. L'insert montre la valeur  $\alpha_{opt}$  pour laquelle le champ rayonné moyen est nul en fonction du diamètre du pilier.

Cette figure montre que l'électrode de référence synthétique doit être optimisée en fonction de la taille du pilier. Il faut noter également que le couplage dipolaire dépendant du cube de la distance entre les deux dipôles (équation 1.8), toute erreur sur une épaisseur d'une couche aura une conséquence importante sur la valeur du champ rayonné calculé.

Pour vérifier l'importance du champ rayonné sur le couplage dipolaire, des jonctions

tunnel ont été préparées et des piliers de 100 et 500 nm de diamètre nominal ont été fabriqués. A cause des imperfections de fabrication, le diamètre réel des piliers est élargi de 40 nm au niveau de la barrière. Les structures déposées sont celles utilisées dans le modèle, une avec une électrode de référence synthétique, l'autre avec une électrode de référence simple. La barrière est obtenue par oxydation naturelle d'une couche d'aluminium de 0,6 nm. Les cycles de magnétorésistance mesurés sur les piliers sont présentés en figure 4.17. La magnétorésistance mesurée est de l'ordre de 6% et le RA de  $20 \Omega \cdot \mu\text{m}^2$ . La rugosité de la barrière donne un couplage antiferromagnétique<sup>5</sup> de 40 Oe sur les couches continues. L'effet des champs rayonnés est cependant bien visible : il y a un décalage du cycle d'hystérésis par rapport au champ nul, ce décalage étant plus important lorsque le diamètre diminue. La structure SAF présente cependant des décalages moindres, comme prévu par les calculs, ce qui montre que les deux couches magnétiques de l'électrode de référence SAF sont alignées antiferromagnétiquement. Les marches observées sur les cycles des piliers de 540 nm sont dues au bruit de Barkhausen, c'est à dire au piégeage et dépiégeage de parois de domaine sur des défauts lors du renversement de l'aimantation de l'électrode de stockage. Ces marches disparaissent quand le diamètre du pilier est réduit à 140 nm car le nombre de défauts piégeant les parois diminue.

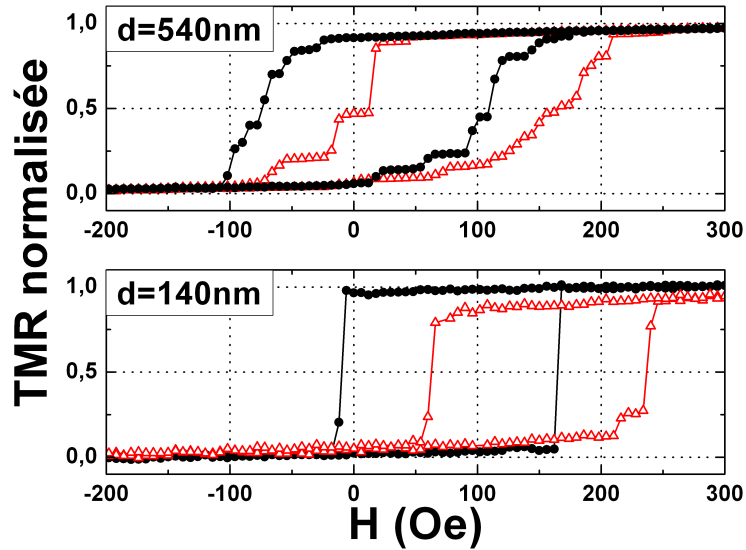


FIGURE 4.17 – Cycles de magnétorésistance normalisés mesurés sur des piliers de différents diamètres, avec une couche de référence synthétique (cercles noirs) et une couche de référence simple (triangles rouges).

Le résumé des moyennes du champ coercitif  $\overline{H_C}$  et de décalage  $\overline{H_{coupl}}$  mesurées sur 10 piliers, ainsi que leur écart-type  $\sigma$  est présenté sur le tableau 4.3.3. Les valeurs

5. Voir la référence [38] pour plus de détails sur le couplage peau d'orange dans les systèmes à anisotropie perpendiculaire.



type	d (nm)	$H_{dip}$ (Oe)	$\overline{H_{coupl}}$ (Oe)	$\sigma_{H_{coupl}}$ (Oe)	$\overline{H_C}$ (Oe)	$\sigma_{H_c}$ (Oe)
HL	140	640	170	12	85	16
SAF	140	140	80	17	95	26
HL	540	180	100	14	90	11
SAF	540	20	5	7	70	9

TABLE 4.1 – Résumé des valeurs du champ de couplage calculé  $H_{dip}$ , de la moyenne du champ de couplage mesurée  $\overline{H_{coupl}}$ , de la moyenne du champ coercitif mesuré  $\overline{H_C}$ , ainsi que de leur écart-type  $\sigma$  pour des diamètres d de 140 et 540 nm.

mesurées peuvent être comparées à la valeur calculée du champ rayonné  $H_{dip}$ .

Cependant, bien qu'expérience et calcul soient en accord qualitatif, les valeurs mesurées de champ de couplage sont inférieures à celles prévues par le modèle, même en prenant en compte les 40 Oe de couplage antiferromagnétique dus à la rugosité. Ceci peut être dû à de nombreux facteurs :

- Les piliers ne sont pas des cylindres parfaits, mais à cause de la méthode de gravure sont plutôt de forme conique.
- L'oxydation des flancs des piliers peut réduire l'aimantation des différentes couches[39].
- La valeur exacte du champ de couplage devrait être calculée en intégrant la valeur du champ  $H_Z$  en tout point de la couche libre, et pas seulement à mi-hauteur.
- Les effets de rugosité, défauts géométriques et erreurs sur les épaisseurs de couches peuvent également donner des erreurs importantes sur la valeur du champ de couplage.

Les alliages TbCo sont quant à eux particulièrement adaptés à cette problématique de réduction des champs rayonnés par la couche de référence. En effet, ces structures peuvent présenter une aimantation un à deux ordres de grandeur plus faible que les systèmes (Co/Pt) ou (Co/Pd). Le champ rayonné par de telles structures est donc également un à deux ordres de grandeurs plus faible.

## 4.4 Caractéristiques électriques des jonctions perpendiculaires

Jusqu'à maintenant, seules les propriétés magnétiques des jonctions tunnel magnétiques ont été décrites. Ces caractéristiques doivent cependant être compatibles avec les propriétés électriques de la jonction tunnel. De ce point de vue, les deux grandeurs étudiées sont la magnétorésistance tunnel et le produit aire-résistance. La première grandeur détermine en grande partie le temps de lecture d'une cellule mémoire. Dans un dispositif MRAM elle doit être de l'ordre de 100% pour pouvoir être lue efficacement. Pour les mesures en laboratoire, il est nécessaire d'avoir au moins 5% pour pouvoir discriminer aisément les deux niveaux de résistance. Le produit résistance-aire doit être ajusté d'une part pour être en accord d'impédance avec le reste du circuit, et d'autre part pour per-

mettre l'écriture par couple de transfert de spin sans dégradation de la barrière. De ce point de vue, il est nécessaire d'avoir des barrières de  $10\text{-}15\ \Omega.\mu\text{m}^2$ , voire moins, pour pouvoir atteindre des densités de courant de l'ordre de  $10^7\ \text{A.cm}^{-2}$ .

Dans la suite, sauf mention contraire, les caractéristiques électriques sont mesurées par la méthode CIPT décrite précédemment. Cette méthode permet non seulement de gagner du temps puisque seule l'étape de dépôt est nécessaire, mais en plus elle permet de s'affranchir des défauts engendrés par les différentes gravures nécessaires à la fabrication d'un pilier. Ces mesures ont été effectuées à Crocus Technology.

Dans la suite, l'étude des propriétés électriques des jonctions s'est révélée compliquée. En effet, bien que les systèmes métalliques présentent des caractéristiques reproductibles, les barrières tunnel déposées présentent quant à elles des dispersions de propriétés importantes. Il est courant d'obtenir pour une jonction tunnel magnétique perpendiculaire standard des produits résistance-aire variant entre  $10$  et  $40\ \Omega.\mu\text{m}^2$  et une magnétorésistance tunnel variant entre  $5$  et  $35\%$  d'un dépôt à l'autre. Pour cette raison, il est parfois difficile de faire une comparaison entre deux échantillons. La suite du chapitre présente les structures qui fonctionnent et relativement peu d'études systématiques ont pu être effectuées.

#### 4.4.1 Multicouches (Co/Pt) et barrière d'alumine

Le premier système développé pendant cette thèse utilise une barrière d'alumine oxydée naturellement sous une atmosphère de  $160\ \text{mbar}$  d'oxygène pendant  $300\ \text{s}$  et des multicouches (Co/Pt) comme électrode supérieure et inférieure. L'électrode inférieure utilisée est exactement la même que la structure antiferromagnétique synthétique décrite dans la section 4.3.3. L'électrode supérieure est  $\text{CoFe}_{0,6}/(\text{Pt}_{1,8}/\text{Co}_{0,6})_3/\text{Pt}_2$ , le CoFe utilisé possède une concentration de  $30\%$  de fer. La jonction est donc exactement celle présentée dans la section précédente. Cette électrode supérieure est peu performante : son anisotropie est seulement de  $2,6(\pm 0,3)\ 10^5\ \text{erg.cm}^{-3}$  lorsqu'elle est recuite à  $250^\circ\text{C}$   $10$  minutes, et elle se dégrade pour des recuits à plus haute température. Ceci correspond à  $50k_B T$  pour un pilier de  $90\ \text{nm}$  de diamètre. Il est donc impossible d'augmenter l'épaisseur de la couche de CoFe qui semble déjà trop mince pour obtenir une magnétorésistance correcte. Le cycle d'hystérésis de cette jonction mesuré sur une couche continue, présenté en figure 4.18, montre qu'il y a un couplage antiferromagnétique à travers la barrière de  $40\ \text{Oe}$ , ce qui montre qu'il existe une rugosité importante.

La magnétorésistance de cette jonction dépend de l'épaisseur de la barrière d'alumine, mais reste faible. Elle vaut  $6\%$  pour un RA de  $20\ \Omega.\mu\text{m}^2$ , et atteint  $10\%$  pour un RA de  $100\ \Omega.\mu\text{m}^2$ . Pour des résistances inférieures, la magnétorésistance chute rapidement, vraisemblablement à cause de l'apparition de trous d'épingle. Cette jonction présente deux défauts majeurs : le premier est que la barrière d'alumine a une trop grande hauteur de barrière. Pour atteindre des RA de l'ordre de  $10\ \Omega.\mu\text{m}^2$ , il serait nécessaire d'oxyder une couche d'aluminium d'une épaisseur d'environ  $0,5\ \text{nm}$ . Il est impossible d'obtenir une barrière homogène et continue d'une épaisseur si faible, en particulier parce que la rugosité de l'électrode inférieure est de cet ordre de grandeur. Il faut

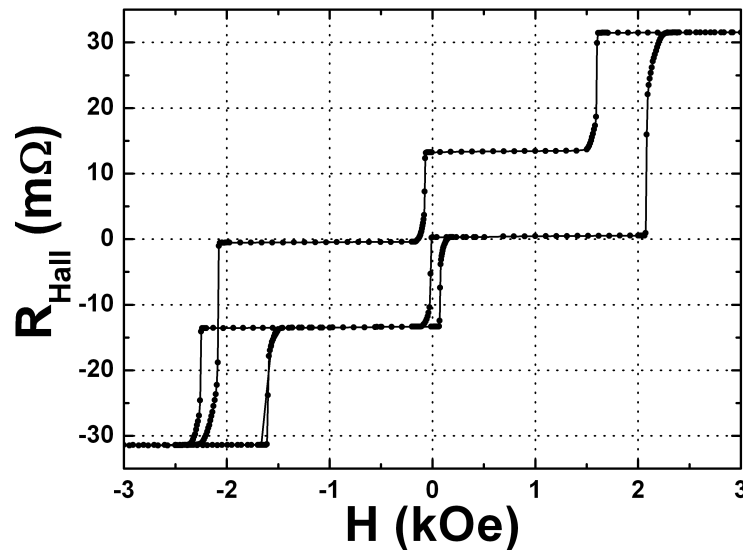


FIGURE 4.18 – Cycles d’hystérésis d’une jonction perpendiculaire à base de multicouches (Co/Pt), mesurée par effet Hall extraordinaire.

noter que ce problème est intrinsèque au système à aimantation perpendiculaire utilisé ici. La rugosité des jonctions à aimantation planaire présentées en début de chapitre est inférieure, ce qui permet d’obtenir des barrières plus fines et plus homogènes. Le second défaut est la finesse de l’électrode supérieure de CoFe : il est fort probable que cette couche ne soit pas continue mais ait plutôt une croissance en îlots et également que des atomes de platine diffusent jusque dans la barrière et diminuent la magnétorésistance. Il faut noter que l’utilisation d’insertion de cuivre dans cette multicouche n’augmente pas significativement l’anisotropie de l’ensemble, probablement à cause de cette forte rugosité. Augmenter le nombre de répétitions de la multicouche ne permet pas d’augmenter l’épaisseur de CoFe : le couplage à travers les espaceurs de 1,8 nm de platine est relativement faible, et augmenter l’épaisseur de CoFe et le nombre de répétitions dans la multicouche conduit à la fabrication d’une électrode où l’aimantation tourne comme dans les média composites. L’utilisation de CoFeB ne modifie pas significativement les caractéristiques de la jonction.

#### 4.4.2 Multicouches (Co/Pd) et barrière de MgO

Pour résoudre les problèmes posés par le premier type de jonction développées, il est possible de remplacer les multicouches (Co/Pt) par des multicouches (Co/Pd), ces dernières ayant montré des caractéristiques supérieures dans le chapitre 2, et de remplacer la barrière d’alumine par une barrière de MgO. Le MgO possède une hauteur de barrière inférieure à celle d’alumine, et sa cristallisation dans le système cc (001) permet d’atteindre des magnétorésistances plus importantes qu’avec des barrières amorphes.

Seule la multicouche supérieure et la barrière sont changées, la multicouche inférieure présentant des caractéristiques satisfaisantes<sup>6</sup>. La barrière tunnel est la barrière standard développée à SPINTEC :  $\text{Mg}_{0,9}\text{oxnat}/\text{Mg}_{0,5}$ . Cependant, le changement de barrière a des conséquences : dans le cas d'une barrière amorphe, la structure cristalline des électrodes importe relativement peu, mais dans le cas du  $\text{MgO}$ , il est nécessaire de cristalliser les électrodes dans la structure cc (001) pour avoir une forte magnétorésistance. Dans le cas où l'électrode de  $\text{CoFeB}$  cristallise dans une autre structure, la magnétorésistance est fortement réduite[40].

Dans le cas étudié ici, les couches de platine ou de palladium sont cfc (111), et il faut s'attendre à ce que la cristallisation de l'électrode de  $\text{CoFeB}$  ne soit pas compatible avec la barrière de  $\text{MgO}$ . Pour résoudre ce problème, il est possible d'insérer une couche ultra-mince d'un matériau permettant de faire une transition structurale. Dans le cas présent du tantale est utilisé, mais des matériaux comme le vanadium, le chrome, le titane ou le niobium pourraient également être utilisés. L'idée est de découpler cristallographiquement l'électrode de  $\text{CoFeB}$  de la multicouche ( $\text{Co}/\text{Pd}$ ), tout en conservant un couplage magnétique important. Pour tester cette idée, deux jonctions ont été fabriquées. Toutes les deux possèdent une électrode inférieure synthétique antiferromagnétique à base de multicouches ( $\text{Co}/\text{Pt}$ ) et une barrière tunnel de  $\text{MgO}$  standard. Seule l'électrode supérieure change : pour l'une il s'agit de  $\text{CoFeB}_{1,5}/(\text{Pd}_{1,2}/\text{Co}_{0,3})_5/\text{Pd}_2$  et pour l'autre  $\text{CoFeB}_{1,5}/\text{Ta}_{0,3}/\text{Co}_{0,3}/(\text{Pd}_{1,2}/\text{Co}_{0,3})_4/\text{Pd}_2$ . Dans les deux cas, le cycle d'hystérésis mesuré est semblable à celui présenté en figure 4.18, le champ coercitif de l'électrode supérieure étant plus élevé avec la multicouche ( $\text{Co}/\text{Pd}$ ). La couche de Ta est suffisamment fine pour coupler rigidement l'électrode de  $\text{CoFeB}$  et la multicouche ( $\text{Co}/\text{Pd}$ ), aucune contribution d'aimantation planaire n'a été observée. L'anisotropie mesurée de ces électrodes est de  $5,7(\pm 0,4) \cdot 10^6 \text{ erg.cm}^{-3}$ , et est donc 20 fois plus élevée que celle de l'électrode supérieure de ( $\text{Co}/\text{Pt}$ ) présentée précédemment, alors que la couche de  $\text{CoFeB}$  est quasiment trois fois plus épaisse. Ceci confirme l'intérêt de remplacer le platine par du palladium. La structure reste parfaitement perpendiculaire pour des recuits allant jusqu'à  $350^\circ\text{C}$ , et présente toujours deux états magnétiques bien distincts. L'évolution des propriétés électriques de la jonction en fonction de la température de recuit est présentée en figure 4.19.

Les deux échantillons bruts de dépôt présentent des caractéristiques similaires. Un recuit à  $250^\circ\text{C}$  de l'échantillon sans insertion de tantale diminue la magnétorésistance, alors qu'il augmente celle de l'échantillon avec insertion jusqu'à 20%. Au delà de  $300^\circ\text{C}$ , la magnétorésistance des deux échantillons est similaire, il semble donc qu'à ces températures l'insertion de tantale n'est plus suffisante pour empêcher la cristallisation de l'électrode de  $\text{CoFeB}$  dans la mauvaise structure. L'insertion de tantale est donc particulièrement importante pour obtenir une magnétorésistance correcte. Il semble d'après ces mesures qu'elle empêche le  $\text{CoFeB}$  de cristalliser dans la mauvaise structure. Il est vrai-

---

6. Ceci pour éviter de changer complètement le système. L'utilisation d'une électrode de référence antiferromagnétique synthétique à base de ( $\text{Co}/\text{Pd}$ ) ne change pas les caractéristiques électriques de la structure.

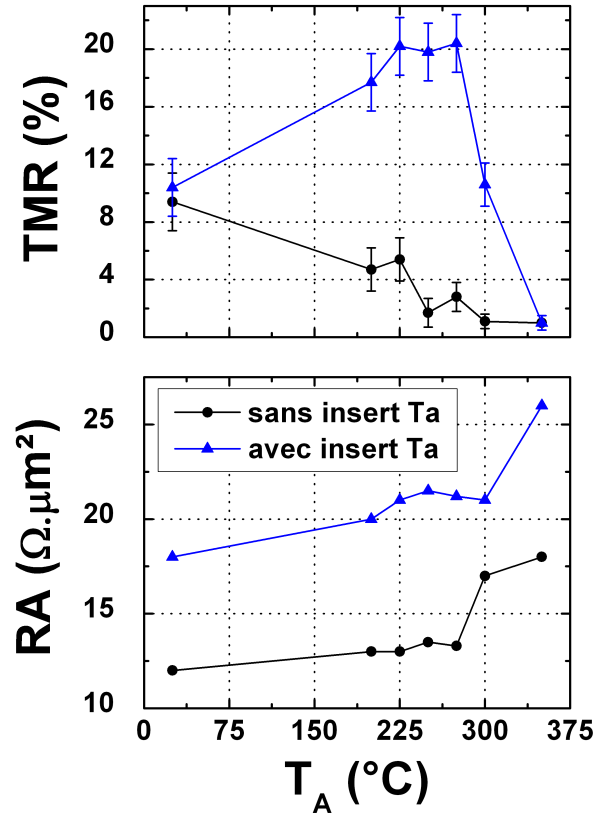


FIGURE 4.19 – Magnétorésistance tunnel (en haut) et produit aire-résistance (en bas) de jonction tunnel magnétiques perpendiculaire avec (en bleu) et sans (en noir) insertion de tantale, en fonction de la température de recuit.

semblable que l'augmentation de magnétorésistance observée aux alentours de 250°C soit plutôt due à l'amélioration des interfaces plutôt qu'à la cristallisation du CoFeB dans le système cc (001), la température utilisée étant à priori insuffisante pour obtenir la cristallisation du MgO/CoFeB qui apparaît à partir de 300°C[41]. Ceci mériterait cependant d'être vérifié par microscopie électronique en transmission. La différence de résistance observée entre les deux échantillons peut être due à un problème de reproductibilité plutôt qu'à un phénomène physique<sup>7</sup>.

Une insertion de Ta dans l'électrode inférieure n'améliore pas la magnétorésistance de la jonction. Cet effet peut être dû aux épaisseurs différentes utilisées dans la multicouche en électrode inférieure, ce phénomène ayant été observé par d'autres groupes[42]. Pour améliorer encore la magnétorésistance de ces jonctions, il serait nécessaire d'augmen-

7. Malgré ces problèmes de reproductibilité, toutes les jonctions testées sans insertion de tantale présentent une magnétorésistance inférieure à 6% une fois recuites, et toutes les jonctions testées avec insertion de tantale présentent une magnétorésistance comprise entre 15% et 25%. L'effet de cette insertion est donc bien réel.

ter l'épaisseur de CoFeB des électrodes[44] et d'optimiser les conditions de recuit. En effet, le volume de CoFeB qui cristallise à partir d'une interface dépend de la température et du temps de recuit[43] et de la quantité de bore expulsé du CoFeB (donc de la capacité des couches adjacentes au CoFeB à absorber ce bore) : il est possible d'obtenir une couche de CoFeB partiellement cristallisée dans la mauvaise direction tout en conservant une forte magnétorésistance si cette cristallisation n'atteint pas l'interface CoFeB/MgO. Dans ce dernier cas, une forte magnétorésistance tunnel est obtenue tant que le CoFeB est cristallisé cc(001) à l'interface avec la barrière, indépendamment de la structure qu'il présente à la seconde interface. L'utilisation de CoFeB plus riche en fer pourrait également permettre d'augmenter la magnétorésistance, en particulier parce que le fer présente une meilleur mouillabilité sur l'oxyde que le cobalt.

### 4.4.3 Utilisation de multicouches (Co/Tb)

Enfin, un système apparaissant très avantageux pour fabriquer une électrode supérieure est l'alliage TbCo. Il n'est pas nécessaire d'utiliser de couche tampon pour obtenir l'anisotropie perpendiculaire dans ces alliages, et il est possible d'obtenir des champs coercitifs supérieurs à 15 kOe dans des structures compensées. Cependant, comme il est nécessaire d'avoir une épaisseur supérieure à 4-5 nm pour conserver l'anisotropie perpendiculaire après recuit, ce système semble plus approprié pour être utilisé en couche de référence. Enfin, comme cet alliage est amorphe, la cristallisation du CoFeB doit a priori poser moins de problème que lorsque des multicouches (Co/Pt) ou (Co/Pd) sont utilisées.

Les échantillons étudiés sont constitués d'une électrode inférieure  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_5/(\text{Co}_{0,5}/\text{Pt}_{0,4})_5/-\text{CoFeB}_{1,5}$ , d'une barrière tunnel de MgO standard, et d'une électrode supérieure  $\text{CoFeB}_{1,5}/(\text{Tb}_{0,45}/\text{Co}_{0,55})_{20}/\text{Pt}_2$ . Ils sont recuits à différentes températures pendant 10 minutes. L'alliage TbCo utilisé ici est légèrement plus riche en terbium que la structure compensée, mais la couche de CoFeB additionnelle rapproche la structure complète de la compensation, de telle sorte que le champ de retournement de la couche dure de l'échantillon recuit à 300°C est de 11 kOe. L'évolution de la magnétorésistance en fonction de la température de recuit est présentée en figure 4.20. Le recuit permet d'augmenter significativement la magnétorésistance jusqu'à 55%<sup>8</sup>, le produit aire-résistance restant constant à l'erreur de mesure près, valant entre 32 et 35  $\Omega \cdot \mu\text{m}^2$ .

Le recuit semble dans ce cas permettre la cristallisation du CoFeB dans le système cc (001), ce qui explique la haute magnétorésistance observée. Cette affirmation nécessiterait cependant d'être vérifiée par microscopie électronique en transmission. Cependant, cette magnétorésistance mesurée sur une plaque pleine tranche est plus délicate à obtenir sur un pilier nanométrique. En effet, lors de la gravure du pilier et avant son encapsulation (étape n°6 de l'annexe 1), l'électrode de TbCo réagit avec son environnement et se dégrade significativement. Des piliers ont été fabriqués à partir de jonctions possédant une telle électrode de référence, seule l'électrode de stockage ayant été mo-

---

8. ou 40% pour 12  $\Omega \cdot \mu\text{m}^2$ , ceci dépendant de la dérive de la machine.

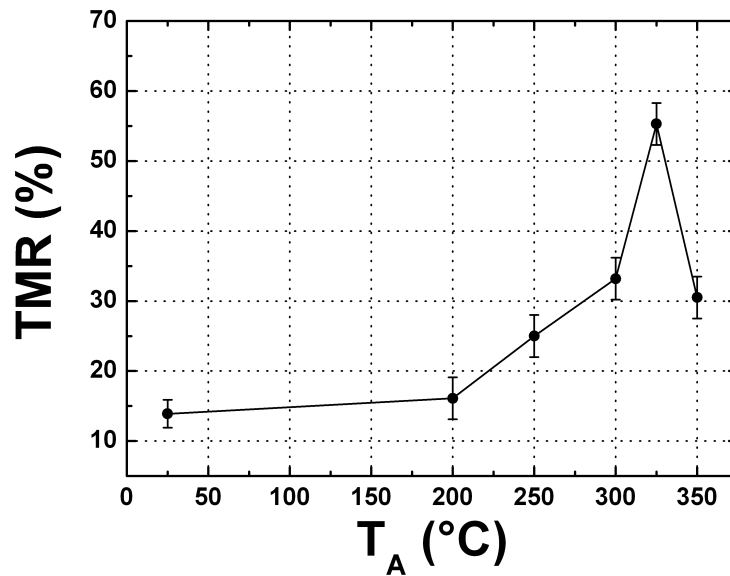


FIGURE 4.20 – Évolution de la magnétorésistance tunnel d’une jonction tunnel magnétique possédant une électrode de référence TbCo en fonction de la température de recuit. Le produit résistance-aire reste constant, entre 32 et 35  $\Omega \cdot \mu\text{m}^2$ .

difiée pour présenter un basculement d’anisotropie. La figure 4.21 présente un cycle de magnétorésistance typique mesuré sur un pilier de 100 nm de diamètre. La jonction tunnel a été recuite à 300°C. Le RA obtenu est de 11  $\Omega \cdot \mu\text{m}^2$ , ce qui est cohérent avec ce qui avait été mesuré sur les plaques pleine tranche, mais la magnétorésistance tunnel mesurée est comprise entre 20 et 30%, légèrement inférieure aux 35% mesurés par la méthode CIPT.

Plus remarquable, le cycle obtenu présente des pentes qui ne devraient pas exister si toutes les couches étaient parfaitement perpendiculaires. La forme de ces pentes semble montrer que l’électrode de TbCo est spérilmagnétique. L’angle formé entre les moments du cobalt (et du CoFeB) et ceux du terbium est différent de 180°, et varie en fonction du champ appliqué. Il est impossible avec cette électrode supérieure d’obtenir un état parfaitement antiparallèle, ce qui réduit la magnétorésistance tunnel. L’état saturé à haut champ est l’état de basse résistance, ce qui montre que l’électrode de référence est devenue riche en cobalt alors qu’elle était riche en terbium en couche continue. Le champ coercitif de cette électrode a également fortement diminué, il ne vaut plus que 2 200 Oe ici alors qu’il devait être supérieur à 10 kOe. Cet effet augmente lorsque le diamètre du pilier diminue, ce qui indique que l’oxydation des atomes de terbium par les flancs des piliers est le facteur principal de dégradation de l’anisotropie de l’électrode. Ce phénomène pourrait être réduit en encapsulant sous vide le pilier juste après sa gravure. Cependant, il n’est pas possible de réaliser cette opération avec les équipement de la Plateforme Technologique Amont.



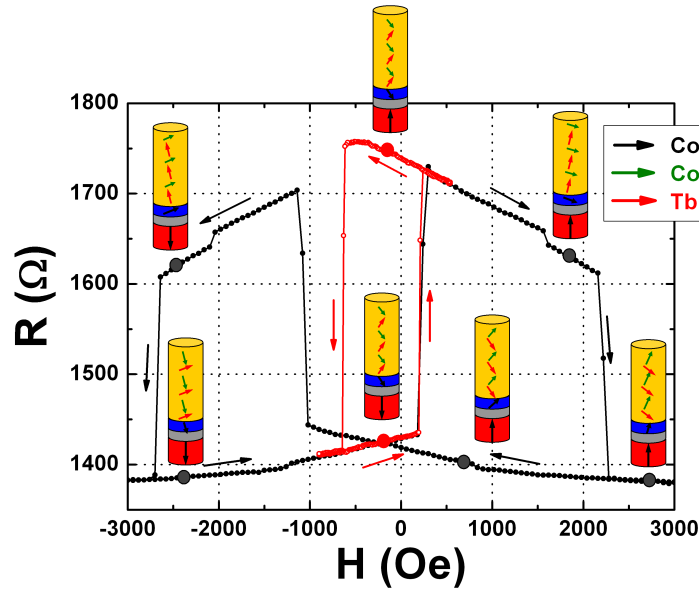


FIGURE 4.21 – Cycle de magnétorésistance mesuré sur un pilier de 100 nm de diamètre d'une jonction ayant une électrode de référence supérieure de TbCo. Les schémas montrent la direction de différentes aimantations en fonction du champ appliqué : en vert celle des couches de cobalt, en rouge celle des couches terbium, et en noir celle des électrodes de CoFeB.

Il faut noter que la fabrication d'une jonction avec deux électrodes de TbCo est difficilement compatible avec l'obtention d'une faible résistance tout en conservant une forte magnétorésistance tunnel. La rugosité importante de l'alliage TbCo déposé avant la barrière rend difficile la fabrication d'une barrière suffisamment fine et homogène, sans trou d'épingle.

Malgré ces problèmes, cette électrode de référence supérieure en TbCo est celle qui a permis d'obtenir les meilleurs résultats électriques au laboratoire SPINTEC pour le moment. Le système Ta/CoFeB/MgO/CoFeB/TbCo<sup>9</sup> présente quant à lui une magnétorésistance de l'ordre de 70% pour un RA de  $10 \text{ } \Omega \cdot \mu\text{m}^2$ [45]. Ces résultats dépendent de la qualité des dépôts réalisés et donc de la machine de dépôt. Dans des structures optimisées, il est possible d'obtenir des magnétorésistances de l'ordre de 100% dans des systèmes utilisant des multicouches (Co/Pd)[5] ou une combinaison de multicouche (Co/Pt) et d'alliage TbFeCo[8], et de l'ordre de 130% pour des structures Ta/CoFeB/MgO/-CoFeB/Ta[3]. Il faut cependant noter que dans ces travaux, le CoFeB utilisé possède une concentration en fer plus importante que le CoFeB utilisé au laboratoire SPINTEC.

9. Cette structure a été développée par Lavinia Nistor



## 4.5 Conclusion

La fabrication de jonctions tunnel magnétiques à aimantation perpendiculaire et faible résistance reste difficile à réaliser. Il n'est pas aisé d'allier forte magnétorésistance, forte anisotropie perpendiculaire et faible résistance. Les multicouches (Co/Pt) ou (Co/Pd) n'ont pas une symétrie cristalline compatible avec la barrière de MgO, et induisent une cristallisation des électrodes de CoFeB dans la mauvaise direction lors du recuit. Il est possible de contrer partiellement cet effet grâce à l'insertion d'une très fine couche de tantale entre la multicouche et le CoFeB. D'un autre côté, les alliages TbCo amorphes ne présentent pas ce problème d'incompatibilité structurale, et permettent d'obtenir des magnétorésistances tunnel supérieures à 50%.

La fabrication d'électrodes de référence rayonnant le moins de champ possible est également un aspect important pour le dispositif final, où il est nécessaire que deux états soient stables à champ nul. Les alliages TbCo ferrimagnétiques sont idéaux car ils présentent une aimantation pouvant être très faible (inférieure à  $100 \text{ emu.cm}^{-3}$ ), et rayonnent donc très faiblement. Dans le cas de multicouches (Co/Pt) ou (Co/Pd), il est possible de réaliser des structures antiferromagnétiques synthétiques en utilisant les propriétés de couplage RKKY du ruthénium. L'insertion d'une fine couche de platine ou de palladium à l'interface supérieure de l'espaceur de ruthénium permet de conserver une anisotropie perpendiculaire satisfaisante vis à vis des fluctuations thermiques. Ces structures doivent cependant être optimisées en fonction des paramètres géométriques du pilier, et en particulier du diamètre.

Enfin, la fabrication de la barrière tunnel est un aspect essentiel dans ces structures. Elle doit être optimisée de façon à obtenir la plus faible résistance (de préférence de l'ordre de  $10 \text{ } \Omega.\mu\text{m}^2$ , voire moins) pour la plus grande magnétorésistance possible. Une description plus détaillée de cette optimisation peut être trouvée dans la référence [46].



# Bibliographie

- [1] N. Nishimura, T. Hirai, A. Koganei, T. Ikeda, K. Okano, Y. Sekiguchi and Y. Osada, J. Appl. Phys. **91**, 5246-5249 (2002)
- [2] M. Nakayama, T. Kai, N. Shimomura, M. Amano, E. Kitagawa, T. Nagase, M. Yoshikawa, T. Kishi, S. Ikegawa and H. Yoda ; J. Appl. Phys. **103**, 07A710 (2008)
- [3] S. Ikeda, K. Miura, H. Yamamoto, K. Mizunuma, H. D. Gan, M. Endo, S. Kanai, J. Hayakawa, F. Matsukura and H. Ohno, Nature Mater. **9**, 721-724 (2010)
- [4] B. Carvello, C. Ducruet, B. Rodmacq, S. Auffret, E. Gautier, G. Gaudin and B. Dieny, Appl. Phys. Lett. **92**, 102508 (2008)
- [5] K. Mizunuma, S. Ikeda, J. H. Park, H. Yamamoto, H. Gan, K. Miura, H. Hasegawa, F. Matsukura and H. Ohno, Appl. Phys. Lett. **95**, 232516 (2009)
- [6] M. Yoshikawa, E. Kitagawa, T. Nagase, T. Daibou, M. Nagamine, K. Nishiyama, T. Kishi and H. Yoda, IEEE Trans. Magn. **44**, 2573-2576 (2008)
- [7] H. Ohmori, T. Hatori and S. Nakagawa, J. Magn. Magn. Mater. **320**, 2963-2966 (2008)
- [8] K. Yakushiji, K. Noma, T. Saruya, H. Kubota, A. Fukushima, T. Nagahama, S. Yuasa and K. Ando, Appl. Phys. Express **3**, 053003 (2010)
- [9] S. Mizukami, E. P. Sajitha, D. Watanabe, F. Wu, T. Miyazaki, H. Naganuma, M. Oogane and Y. Ando, Appl. Phys. Lett. **96**, 152502 (2010)
- [10] S. E. Russek, P. Kabos, R. D. McMichael, C. G. Lee, W. Bailey, R. Ewasko and S. C. Sander, J. Appl. Phys. **91**, 8659-8661 (2002)
- [11] R. C. Sousa, J. J. Sun, V. Soares, P. P. Freitas, A. Kling, M. F. da Silva and J. C. Soares, Appl. Phys. Lett. **73**, 3288-3290 (1998)
- [12] B. Rodmacq, A. Manchon, C. Ducruet, S. Auffret and B. Dieny, Phys. Rev. B **79**, 024423 (2009)
- [13] S. Monso, B. Rodmacq, S. Auffret, G. Casali, F. Fettar, B. Gilles, B. Dieny and P. Boyer, Appl. Phys. Lett. **80**, 4157-4159 (2002)
- [14] A. Manchon, S. Pizzini, J. Vogel, V. Uhler, L. Lombard, C. Ducruet, S. Auffret, B. Rodmacq, B. Dieny, M. Hochstrasser, and G. Panaccione, J. Appl. Phys. **103**, 07A912 (2008)

- [15] A. Manchon, C. Ducruet, L. Lombard, S. Auffret, B. Rodmacq, B. Dieny, S. Pizzini, J. Vogel, V. Uhler, M. Hochstrasser and G. Panaccione, *J. Appl. Phys.* **104**, 043914 (2008)
- [16] L. E. Nistor, B. Rodmacq, C. Ducruet, C. Portemont, I. L. Prejbeanu and B. Dieny, *IEEE Trans. Magn.* **46**, 1412-1415 (2010)
- [17] D. C. Worledge and P. L. Trouilloud, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 84-86 (2003)
- [18] J. G. Simmons, *J. Appl. Phys.* **34**, 1793-1803 (1963)
- [19] Z. G. Zhang, P. P. Freitas, A. R. Ramas, N. P. Barradas and J. C. Soares, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2219-2221 (2001)
- [20] M. M. C. Souza, R. C. Sousa, C. Ducruet, S. Auffret and B. Dieny, *J. Appl. Phys.* **107**, 09C702 (2010)
- [21] R. H. Victora and X. Shen, *IEEE Trans. Magn* **41**, 537-542 (2005)
- [22] D. Suess, T. Schrefl, S. Fähler, M. Kirschner, G. Hrcac, F. Dorfbauer, J. Fidler, *Appl. Phys. Lett* **87**, 012504 (2005)
- [23] H. J. Richter, *J. Phys. D : Appl. Phys.* **40**, R149-R177(2007)
- [24] L. E. Nistor, S. Auffret, B. Rodmacq and B. Dieny, *Appl. Phys. Lett.* **94**, 012512 (2009)
- [25] Y. Dahmane, S. Auffret, U. Ebels, B. Rodmacq and B. Dieny, *IEEE Trans. Magn.* **44**, 2865-2867 (2008)
- [26] J. L. Leal and M. H. Kryder, *J. Appl. Phys.* **83**, 3720-3723 (1998)
- [27] O. Hellwig, T. L. Kirk, J. B. Kortright, A. Berger, E. E. Fullerton, *Nature Mater.* **2**, 112-116 (2003)
- [28] O. Hellwig, T. L. Kirk, J. B. Kortright, A. Berger, E. E. Fullerton, *J. Magn. Magn. Mater.* **319**, 13-55 (2007)
- [29] J. Sort, B. Rodmacq, S. Auffet and B. Dieny, *Appl. Phys. Lett* **83**, 1800-1802 (2003)
- [30] V. Baltz, B. Rodmacq, A. Bollero, J. Ferré, S. Landis and B. Dieny, *Appl. Phys. Lett.* **94**, 052502 (2009)
- [31] A. Hubert A and R. Schäfer *Magnetic Domains. Berlin, Germany : Springer* (1998)
- [32] M. D. Stiles, *Phys. Rev. B* **48**, 7238-7258 (1993)
- [33] P. Bruno, *J. Phys. Condens. Matt.* **11**, 9403-9419 (1999)
- [34] J. Kudrnovský, V. Drchal, I. Turek, P. Bruno and P. Weinberger, *J. Phys. Condens. Matt.* **13**, 8539-8549 (2001)
- [35] P. Bruno, *Europhys. Lett.* **23**, 615-620 (1993)
- [36] J. Zhao, Y. J. Wang, Y. Z. Liu, X. F. Han and Z. Zhang, *J. Appl. Phys* **104**, 023911 (2008)
- [37] V. Baltz, Thèse, Université Joseph Fourier, Grenoble (2005)

- [38] J. Moritz, F. Garcia, J.-C. Toussaint, B. Dieny and J.-P. Nozière, *Europhys. Lett.* **65**, 33-38 (2004)
- [39] M. Yoshikawa, E. Kitagawa, S. Takahashi, T. Kai, M. Amano and N. Shimomura, *J. Appl. Phys.* **99**, 08R702 (2006)
- [40] S. Yuasa and D. D. Djayaprawira, *J. Phys. D : Appl. Phys.* **40**, R337-R354 (2007)
- [41] S. Yuasa, Y. Suzuki, T. Katayama and K. Ando, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 242503 (2005)
- [42] K. Mizunuma, M. Yamanouchi, S. Ikeda, H. Sato, H. Yamamoto, H.-D. Gan, K. Miura, J. Hayakawa, F. Matsukura and H. Ohno, *Appl. Phys. Express* **4** 023002 (2011)
- [43] W. G. Wang, C. Ni, G. X. Miao, C. Weiland, L. R. Shah, X. Fan, P. Parson, J. Jordan-sweet, X. M. Kou, Y. P. Zhang, R. Stearrett, E. R. Nowak, R. Opila, J. S. Moodera and J. Q. Xiao, *Phys. Rev. B* **81**, 144406 (2010)
- [44] K. Mizunuma, S. Ikeda, H. Yamamoto, H. D. Gan, K. Miura, H. Hasegawa, J. Hayakawa, K. Ito, F. Matsukura and H. Ohno, *Jpn. J. Appl. Phys.* **49**, 04DM04 (2009)
- [45] L. E. Nistor, Thèse, Université Joseph Fourier, Grenoble (2011)
- [46] M. Marins de Castro Souza, Thèse, Université Joseph Fourier, Grenoble (2011)



# Chapitre 5

## Effets de la température sur l'anisotropie

Dans le cadre de cette thèse, la variation d'anisotropie avec la température est l'un des phénomènes les plus importants à étudier. En effet, le développement d'électrodes de stockage possédant une température de basculement d'anisotropie bien contrôlée est primordiale pour réaliser le dispositif décrit au chapitre 1.

Relativement peu d'études font état de ce basculement d'anisotropie en fonction de la température. L'étude de référence à ce sujet est l'article de Jensen et al.[1], où la dépendance de l'anisotropie en fonction de la température est calculée grâce à un modèle thermodynamique par des considérations de maximisation de l'entropie du système. Ce basculement d'anisotropie avec la température a été observé expérimentalement[2], et plusieurs études ont démontré que le modèle développé par Jensen ne pouvait s'appliquer que dans certains cas particuliers. Ces études ont été particulièrement utilisées dans le cadre de média à écriture thermomagnétique, dans lesquels le contrôle de la variation du champ coercitif en fonction de la température est essentiel au bon fonctionnement du dispositif[3, 4].

La première partie de ce chapitre sera consacrée au modèle théorique permettant de décrire la variation d'anisotropie. Dans un second temps, les paramètres permettant de modifier la température de basculement seront présentés, et enfin une dernière partie décrira la réalisation d'électrodes présentant un basculement d'anisotropie.

### 5.1 Modèle de basculement d'anisotropie

#### 5.1.1 Les bases du modèle

La variation de l'anisotropie en fonction de la température est décrite par Jensen par un modèle thermodynamique relativement simple[1]. Le magnétisme du matériau est modélisé par un ensemble de moments magnétiques localisés, couplés entre eux par un couplage d'échange de Heisenberg décrit par l'équation 1.3. Ces atomes peuvent subir

une interaction avec un champ magnétique extérieur, et le couplage spin-orbite donne une anisotropie à ces moments. Pour des raisons de simplicité de calcul, ce couplage est traité par la méthode des faibles perturbations. Le calcul du maximum d'entropie  $S = -k_B \ln(Z) + E/T$  (où  $Z$  est la fonction de partition canonique,  $E$  l'énergie moyenne du système et  $T$  la température) montre qu'il est possible d'avoir une aimantation perpendiculaire au plan à 0 K, puis une réorientation de l'aimantation dans le plan des couches à une température inférieure à la température de Curie. De façon simplifiée, l'énergie d'une couche mince magnétique de symétrie cubique peut s'écrire :

$$E = - \sum_i K_i(T) \cos^{2i}(\theta) + 2\pi M_S^2 \cos^2(\theta) \quad (5.1)$$

où les  $K_i$  sont les coefficients d'anisotropie d'ordre  $i$  et  $\theta$  l'angle entre la normal au plan des couches et l'aimantation. Pour les températures basses ( $T \ll T_C$ ), les  $K_i$  peuvent s'écrire :

$$\frac{K_i(T)}{K_i(0)} = \left( \frac{M_S(T)}{M_S(0)} \right)^{i(i+1)/2} \quad (5.2)$$

Ces constantes varient avec l'aimantation de la couche magnétique. Le contrôle de l'anisotropie passe donc par le contrôle de la variation d'aimantation. Cette dernière peut être décrite par exemple par l'équation de diffusion des ondes de spin décrite précédemment (équation 2.15) et dépend essentiellement de la température de Curie, qui dépend elle-même du couplage moyen entre les moments magnétiques au sein du matériau. Le plus souvent, il est possible de négliger les ordres supérieurs à  $i=2$ . Dans ce cas, si  $K_2$  apporte une anisotropie perpendiculaire supérieure au terme de champ démagnétisant à température nulle, il est possible d'observer un basculement d'anisotropie. En effet,  $K_2$  variant comme le cube de l'anisotropie, l'augmentation de température provoque une diminution de l'anisotropie perpendiculaire plus rapide que la diminution d'anisotropie planaire  $-2\pi M_S^2$  engendrée par le champ démagnétisant. Au premier ordre, l'anisotropie effective peut s'écrire :

$$K^{eff}(T) = K_i(0) \left( \frac{M_S(T)}{M_S(0)} \right)^3 - 2\pi M_S^2(T) \quad (5.3)$$

Il existe donc une température  $T_K$  dite de basculement d'anisotropie pour laquelle les deux termes de l'équation 5.3 se compensent. En dessous de cette température, l'aimantation est perpendiculaire, au delà elle tombe dans le plan des couches.

### 5.1.2 Validité du modèle

Toute la difficulté dans l'établissement d'un modèle de basculement d'anisotropie réside dans le choix des modèles de variation d'aimantation et des termes d'anisotropie  $K_i$  avec la température. En particulier, il est extrêmement compliqué de déterminer



par avance la température de Curie d'un matériau, à cause des effets de taille finie ou des diffusions, comme montré dans le chapitre 2. De plus, l'utilisation d'un modèle de moments localisés ne peut pas a priori décrire le magnétisme de bande des éléments 3d comme le cobalt. Enfin, il faut rappeler que ce modèle n'est valable que pour  $T \ll T_C$ , ce qui ne sera pas le cas en pratique. De même, la variation d'aimantation est difficile à décrire pour des températures proches de la transition ferromagnétique-paramagnétique[6]. Pour toutes ces difficultés, le modèle présenté ci-dessus ne permet de comprendre que qualitativement ce phénomène. Il met cependant en valeur les paramètres sur lesquels il faut jouer pour ajuster la température de basculement d'anisotropie.

Dans la littérature, des mesures ont conclu que cette loi pouvait être vérifiée, comme c'est le cas pour une couche mince de fer déposée sur de l'arséniure de gallium[5]. Dans ce cas, la constante d'ordre 2 est le terme dominant, et ce terme varie bien en fonction cubique de l'aimantation. Cependant, dans d'autre cas, la variation de l'anisotropie n'est pas évidente à déterminer, en particulier parce que les conditions pour appliquer ces lois ne sont pas respectées[7, 8]. Dans le cas d'alliages RE-TM, la situation est encore plus compliquée car il faut prendre en compte la variation d'aimantation et l'anisotropie des deux sous-réseaux[9].

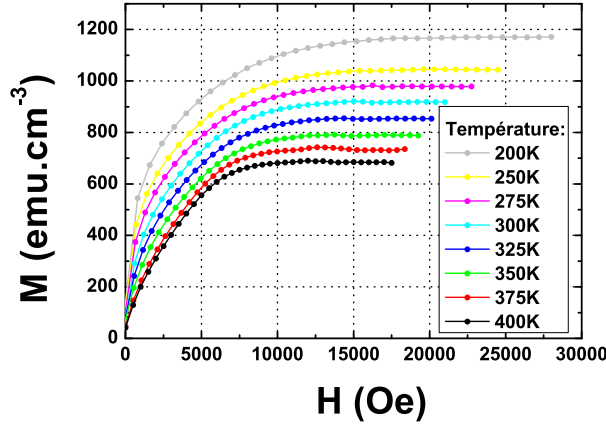


FIGURE 5.1 – Courbes d'aimantation de l'échantillon  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_{20}/\text{Co}_2/\text{AlOx}_2$  mesurées au SQUID selon l'axe de difficile aimantation (ici dans le plan de la couche) en fonction de la température.

La complexité de la variation d'anisotropie avec la température peut être montrée dans un système relativement simple. L'anisotropie des échantillons  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_{20}/\text{Co}_{t\text{Co}}/\text{AlOx}_2$  recuits à  $350^\circ\text{C}$  a été mesurée au SQUID le long de l'axe de difficile aimantation, permettant d'obtenir à la fois l'anisotropie effective et l'aimantation en fonction de la température. Les courbes obtenues pour l'échantillon avec  $t_{\text{Co}}=2$  nm sont présentées en figure 5.1. Ces échantillons présentent une anisotropie perpendiculaire due à l'anisotropie surfacique apportée par les interfaces Co/Pt et Co/AlOx. Le calcul de l'aire au dessus de la courbe d'aimantation présenté en chapitre 1 permet de calculer l'ani-

sotropie effective. Il est ensuite possible d'extraire l'anisotropie perpendiculaire  $K_u$  en soustrayant l'anisotropie de forme  $-2\pi M_S^2$ . En traçant la variation de  $\ln(K_u(T)/K_u(T_0))$  en fonction de  $\ln(M_S(T)/M_S(T_0))$ , il est possible de contrôler la validité de la loi 5.2. La courbe devrait donner une droite de pente  $i(i+1)/2$  avec  $i$  un entier valant a priori 2. La figure 5.2 montre que la pente mesurée vaut en fait  $1,7(\pm 0,1)$ .

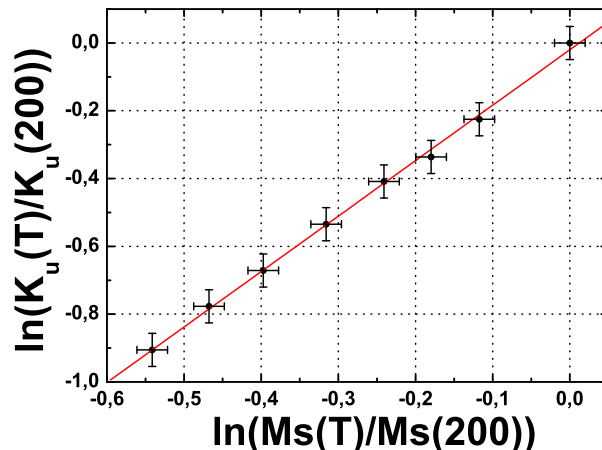


FIGURE 5.2 – Vérification de la loi 5.2 pour l'échantillon  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_{20}/\text{Co}_2/\text{AlOx}_2$ . La pente vaut  $1,7(\pm 0,1)$ , la loi n'est donc pas vérifiée dans ce cas.

L'exposant de la loi 5.2 est donc différent de la valeur théorique de 3. De plus il varie avec l'épaisseur de cobalt déposée : il vaut  $1,3(\pm 0,1)$  pour  $t_{\text{Co}}=1,3$  nm ;  $2,2(\pm 0,1)$  pour  $t_{\text{Co}}=2,4$  nm ;  $2,6(\pm 0,2)$  pour  $t_{\text{Co}}=2,8$  nm. Ce modèle ne permettra donc pas de modéliser le comportement de l'anisotropie d'une couche de cobalt. D'autre part, le fait que l'exposant décrivant la variation d'anisotropie puisse être inférieur à 2 montre que dans certains cas, c'est l'anisotropie planaire qui diminuera plus rapidement que l'anisotropie perpendiculaire avec la température. Dans cette situation, le basculement d'anisotropie est impossible à réaliser. Cette dépendance de la variation d'anisotropie en fonction de l'épaisseur de couche magnétique peut éventuellement s'expliquer par une variation différente des termes d'anisotropie de volume et d'interface. Baberschke et Farle[10] ont étudié ces effets et ont montré que tous les ordres d'anisotropie devaient être mesurés séparément pour pouvoir modéliser correctement la réorientation d'aimantation avec la température. De plus, le modèle de Jensen est limité au cas des températures très inférieures à la température de Curie. Cette hypothèse n'est pas forcément valide, en particulier pour les couches les plus minces qui présentent une température de Curie réduite par rapport au cobalt massif. Enfin, le modèle d'électrons localisés est un modèle qui est limité dans le cas du cobalt. L'évolution de l'anisotropie en fonction de la température nécessiterait un traitement théorique adapté aux couches minces de métaux de transition.

### 5.1.3 Utilisation de systèmes multicouches

Pour réaliser une électrode avec basculement d'anisotropie, il est possible d'utiliser un système plus compliqué mais sur lequel il y aura plus de paramètres ajustables. Pour cela, il est possible d'utiliser le système multicouche type CoFeB/(NM/Co) $n$  présenté dans le chapitre 4. Le but est d'obtenir une multicouche perpendiculaire à température ambiante et présentant un basculement d'anisotropie à la température d'écriture. L'avantage de ce système est qu'il permet de régler plus facilement le basculement d'anisotropie qu'une couche simple. La multicouche doit être conçue de façon à présenter une forte anisotropie à température ambiante pour qu'elle puisse tirer la couche de CoFeB hors du plan grâce au couplage intercouches, et une variation rapide avec la température de telle sorte que la couche de CoFeB va tirer l'aimantation de la multicouche (NM/Co) dans le plan des couches lors du chauffage. Ici, il n'est pas forcément nécessaire que la multicouche présente un basculement d'anisotropie, il suffit que lorsque la température augmente sa contribution diminue plus vite que celle de la couche de CoFeB. Les équations 4.5, 4.6 et 4.7 développées dans le chapitre précédent permettent en théorie de connaître la température de basculement d'anisotropie si la variation des anisotropies effectives de chaque couche est connue<sup>1</sup>.

### 5.1.4 Mesure de la température de basculement d'anisotropie

La température de basculement d'anisotropie peut être mesurée en étudiant la forme des cycles d'hystérésis d'une couche magnétique en fonction de la température. Le plus rapide est de mesurer ces cycles selon l'axe normal au plan des couches, ce qui peut se faire en particulier par effet Kerr polaire. Un cycle caractéristique d'une aimantation perpendiculaire présente une rémanence importante et une coercivité non nulle, alors qu'un cycle caractéristique d'une aimantation planaire ne présente ni rémanence ni coercivité. Cependant, une couche magnétique présentant des domaines magnétiques perpendiculaires présente également un cycle sans rémanence ni coercivité et ressemblant à un cycle mesuré selon l'axe difficile, comme présenté en figure 5.3. Il peut alors être difficile dans ce dernier cas de distinguer une aimantation perpendiculaire d'une aimantation planaire. Le moyen le plus sûr est de mesurer les cycles d'hystérésis dans la direction perpendiculaire au plan des couches puis dans leur plan. L'axe d'anisotropie est la direction pour laquelle la rémanence mesurée est la plus grande. Si la rémanence est nulle partout, l'axe d'anisotropie est déterminé en trouvant la direction présentant la plus grande susceptibilité. Ces mesures qui peuvent être effectuées au SQUID prennent cependant beaucoup trop de temps pour pouvoir être utilisées sur un grand nombre d'échantillons (typiquement, ces mesures prendraient une semaine pour un échantillon).

Il existe cependant une autre méthode pour discriminer les deux situations. La susceptibilité  $dM/dH$  évolue différemment avec  $H$  dans les deux cas. La figure 5.3 montre

---

1. En pratique, la dépendance n'est connue qu'une fois mesurée.

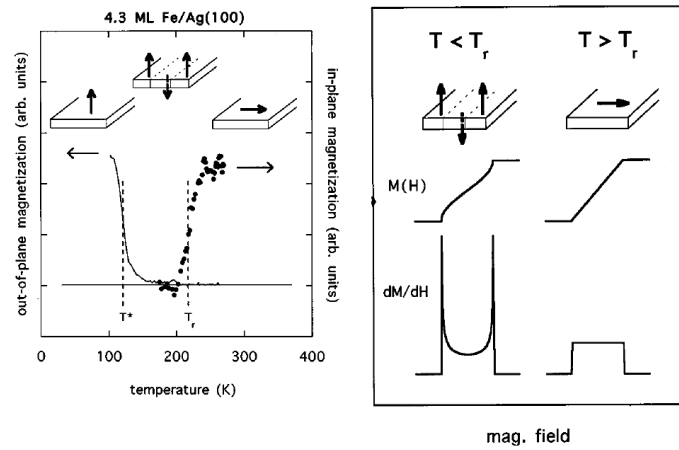


FIGURE 5.3 – A gauche : mesure de l'aimantation rémanente d'une couche mince de fer perpendiculairement et parallèlement au plan de la couche en fonction de la température. A droite : discrimination des cas planaire et perpendiculaire en domaine par mesure de susceptibilité  $dM/dH$ . Reproduit d'après [11].

que cette dérivée présente un double pic dans le cas d'une aimantation perpendiculaire, alors qu'elle a la forme d'un créneau dans le cas d'une aimantation planaire. Cette méthode permet donc de se passer de la mesure en champ planaire.

## 5.2 Ajustement de la variation d'aimantation dans les multicouches (Co/NM)

L'équation 5.2, malgré ses limites, montre que la variation d'anisotropie d'une couche magnétique est gouvernée par la variation d'aimantation. La température de basculement d'anisotropie sera donc directement liée à cette variation, dépendant essentiellement de la température de Curie. La température de Curie du cobalt massif étant de 1394 K, il semble difficile de réaliser un basculement d'anisotropie ou même de diminuer significativement l'anisotropie du cobalt massif aux alentours de 450 K. Cependant, l'addition d'éléments au cobalt[13, 14] ou la réduction des dimensions d'une couche de cobalt[15] permet d'ajuster cette température de Curie.

### 5.2.1 Influence de l'épaisseur de cobalt

Bien que la température de Curie du cobalt semble rendre ce matériau inapproprié pour réaliser le basculement d'anisotropie, les effets de taille réduite des couches minces de cobalt vont diminuer la température de Curie. Un modèle simple de champ moyen permet de comprendre ce phénomène. Dans ce modèle, le matériau est décrit par un

ensemble de moments magnétiques localisés  $\vec{\mu}_i$ , deux moments  $i$  et  $j$  étant couplés entre eux par la constante de couplage  $A_{ij}$ . L'énergie d'un spin  $i$  en présence d'un champ  $H$  vaut :

$$E_i = - \sum_j A_{ij} \vec{\mu}_i \cdot \vec{\mu}_j - \vec{H} \cdot \vec{\mu}_i \quad (5.4)$$

La fonction de partition  $Z$  associée au système vaut  $Z = \sum e^{E_i/k_B T}$ , l'énergie libre du système peut alors se calculer :  $F = k_B T \ln(Z)$ . A partir de cette énergie libre, il est possible de remonter à l'aimantation du système :  $M = -\partial F / \partial H$ . Pour pouvoir calculer cette aimantation, l'approximation du champ moléculaire revient à considérer le couplage entre moments comme un champ effectif moyen s'appliquant sur les spins et s'ajoutant à l'effet du champ extérieur. Dans ce cas l'énergie associée à un moment  $i$  vaut :

$$E_i = - \langle A \rangle \vec{\mu}_i \cdot \sum_j \vec{\mu}_j - \vec{H} \cdot \vec{\mu}_i = -(\langle A \rangle \vec{M} + \vec{H}) \cdot \vec{\mu}_i \quad (5.5)$$

$\langle A \rangle$  étant la valeur moyenne du couplage. Dans le cas d'atomes de moment cinétique total  $J$  ( $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$ ), l'aimantation peut être calculée en résolvant l'équation [12] :

$$m = \frac{M_S(T)}{M_S(0)} = \mathcal{B}_J \left( \frac{\mu_0 \mu H}{k_B T} + \frac{\mu_0 \langle A \rangle M_S^2(0)}{N k_B T} m \right) \quad (5.6)$$

où  $\mathcal{B}_J$  est la fonction de Brillouin d'ordre  $J$ ,  $\mu = g \mu_B J$  est le module des  $\vec{\mu}_i$ . La température de Curie pour laquelle  $m=0$  vaut alors :

$$T_C = \frac{(J+1) \mu_0 M_S(0)^2 \langle A \rangle}{3 J N k_B} \quad (5.7)$$

$N$  étant le nombre de moments magnétiques par unité de volume. Les deux dernières équations montrent que la température de Curie et la variation d'aimantation sont directement liées au terme de couplage  $\langle A \rangle$ . Or, dans les couches minces de cobalt, le nombre de voisins aux interfaces est réduit. Il en résulte que le couplage moyen entre spins est également réduit. La température de Curie diminue lorsque le rapport du nombre d'atomes de surface sur le nombre d'atomes de volume augmente. Il est possible de jouer sur la coordination moyenne des atomes de cobalt en changeant l'épaisseur de la couche magnétique. Ceci aura pour conséquence de changer la valeur de  $\langle A \rangle$ , et donc la valeur de la température de Curie. Le modèle exposé ici est très grossier, mais un traitement thermodynamique plus poussé de ce problème a été effectué par Wojtczak[15] et aboutit à différentes expressions approchées de la variation de l'aimantation d'une couche mince en fonction de son épaisseur. Il convient de garder à l'esprit encore une fois que ces modèles basés sur l'hypothèse de moments localisés ne sont pas les plus adaptés aux métaux de transitions, mais permettent d'obtenir une description phénoménologique. L'interprétation qualitative des résultats obtenus reste possible. Il est cependant possible de vérifier que la température de Curie diminue avec l'épaisseur

de cobalt déposée. Pour ce faire, la série d'échantillons  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_5/(\text{Co}_{t_{\text{Co}}}/\text{Cu}_{0,4}/\text{Pt}_{0,4})_5/\text{Cu}_2/\text{Pt}_2$  recuite à 300°C 30 minutes a été mesurée par effet Kerr polaire en fonction de la température. L'insertion de 0,4 nm de cuivre dans la multicouche permet d'augmenter l'anisotropie de la structure, et également de faire croître des couches de cobalt plus fines que si un espaceur uniquement constitué de platine avait été utilisé. L'aimantation de la couche est mesurée à température ambiante par VSM, et sa variation en température est déduite de la variation de l'amplitude du signal Kerr  $\Delta I/I_0$ . En théorie, il est possible d'extraire la température de Curie de ces mesures, mais la gamme de températures pour laquelle les mesures sont faites ici est trop petite, et la température extraite est entachée d'une grande erreur de mesure. De plus, des termes non linéaires peuvent apparaître dans les couches minces[16], le signal obtenu n'est donc pas tout à fait proportionnel à l'aimantation, ce qui augmente encore l'incertitude sur la température de Curie. La figure 5.4 montre la variation du champ coercitif et du signal Kerr multiplié par l'aimantation à température ambiante en fonction de la température et de l'épaisseur de cobalt  $t_{\text{Co}}$ .

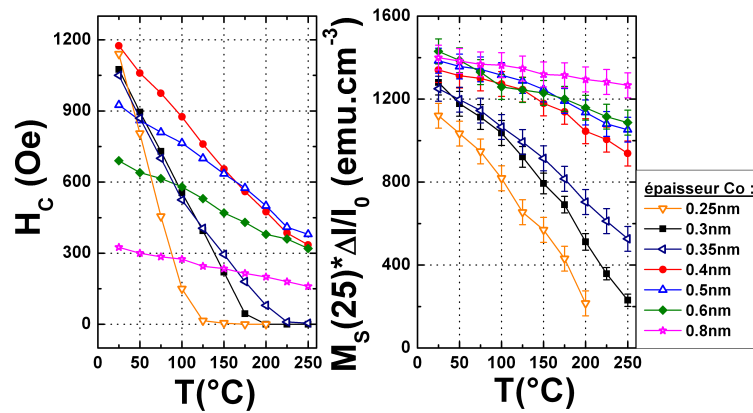


FIGURE 5.4 – Variation du champ coercitif (à gauche) et du signal Kerr multiplié par l'aimantation à température ambiante (à droite) des multicouches  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_5/(\text{Co}_{t_{\text{Co}}}/\text{Cu}_{0,4}/\text{Pt}_{0,4})_5/\text{Cu}_2/\text{Pt}_2$  en fonction de l'épaisseur de cobalt.

La diminution de l'épaisseur de cobalt dans ces structures provoque bien une diminution plus rapide de l'aimantation avec la température, ce qui indique que la température de Curie diminue avec cette épaisseur, comme prévu par la théorie. Au dessus de 0,4 nm de cobalt la variation n'est cependant pas particulièrement flagrante, ce qui est également en accord qualitatif avec les résultats de Wojtczak[15] qui montrent que la température de Curie varie comme l'inverse du logarithme de l'épaisseur de la couche magnétique. L'évolution du champ coercitif en fonction de la température peut être exprimée simplement par une loi d'activation thermique :

$$H_C(T) = \frac{K^{eff}(T)M_S}{2} \left( 1 - \sqrt{\frac{k_B T}{K^{eff}(T)V} \ln \left( \frac{\tau}{\tau_0} \right)} \right) \quad (5.8)$$

où  $\tau$  est le temps caractéristique de renversement de l'aimantation, dépendant de la vitesse de balayage du champ, et  $\tau_0$  est le temps caractéristique d'apparition d'une fluctuation thermique.  $H_C$  diminue donc proportionnellement à l'aimantation et à l'anisotropie, elle même diminuant également avec l'aimantation. La variation relative du champ coercitif est plus importante à faible épaisseur, ce qui est cohérent avec le fait que l'aimantation elle même diminue plus vite lorsque l'épaisseur diminue. La perte de coercivité n'est pas forcément un signe d'un basculement d'anisotropie, il est possible que l'aimantation reste perpendiculaire mais en domaines, d'autant plus que le champ de saturation de ces échantillons en champ perpendiculaire ne dépasse pas 500 Oe.

### 5.2.2 Influence de l'épaisseur de l'espaceur

Dans une multicouche métallique type (Co/Pt) $_n$ , il existe en fait deux types de couplage entre moments magnétiques : le couplage au sein d'une couche de cobalt, de valeur moyenne  $\langle A \rangle$ , mais également un couplage entre moments situés entre deux couches adjacentes, de valeur moyenne  $\langle A' \rangle$ . Ce couplage va également jouer un rôle dans l'établissement de l'ordre ferromagnétique, et il doit être pris en compte pour le calcul de la température de Curie. Pour cela, il est possible de modéliser le système par un ensemble de  $n$  couches de cobalt couplées entre elles comme indiqué sur la figure 5.5.

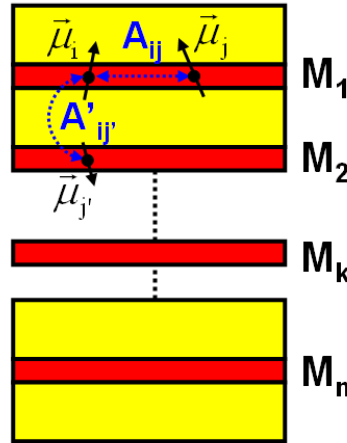


FIGURE 5.5 – Couplages au sein d'une multicouche (Co/Pt) $_n$ . Les moments  $i$  et  $j$  sont couplés par une constante  $A_{ij}$  au sein d'une couche, et par une constante  $A'_{ij'}$  entre deux couches.

La modélisation de ce problème peut une nouvelle fois se faire dans le cadre de la théorie du champ moyen. Dans ce cas, l'énergie d'un moment magnétique vaut :



$$E_i = - \sum_{j \text{ intra}} A_{ij} \vec{\mu}_i \cdot \vec{\mu}_j - \vec{H} \cdot \vec{\mu}_i - \sum_{j' \text{ inter}} A'_{ij} \vec{\mu}_i \cdot \vec{\mu}_{j'} \quad (5.9)$$

Le premier terme provenant du couplage intracouche, le dernier du couplage inter-couches à travers les espaceurs. En négligeant les effets des couches de bord, c'est à dire en prenant  $n$  grand pour pouvoir considérer que chaque couche magnétique  $k$  est couplée avec les deux couches adjacentes  $k - 1$  et  $k + 1$ , le champ moléculaire dans la couche  $k$  vaut :

$$\vec{H}_{mol,k} = - \langle A \rangle \vec{M}_k - \langle A' \rangle (\vec{M}_{k+1} + \vec{M}_{k-1}) \quad (5.10)$$

En considérant que toutes les couches magnétiques  $k$  sont équivalentes, le champ moléculaire est équivalent pour chaque couche et vaut :

$$\vec{H}_{mol} = -(\langle A \rangle + 2 \langle A' \rangle) \vec{M} \quad (5.11)$$

La variation d'aimantation dans ce cas peut se calculer à partir de l'équation :

$$m = \frac{M_S(T)}{M_S(0)} = \mathcal{B}_J \left( \frac{\mu_0 \mu H}{k_B T} + \frac{\mu_0 (\langle A \rangle + 2 \langle A' \rangle) M_S^2(0)}{N k_B T} m \right) \quad (5.12)$$

La température de Curie de ce système se déduit donc directement par analogie avec les équations développées pour une couche unique :

$$T_C = \frac{(J+1)\mu_0 M_S(0)^2 (\langle A \rangle + 2 \langle A' \rangle)}{3 J N k_B} = T_C^0 + \frac{2(J+1)\mu_0 M_S(0)^2 \langle A' \rangle}{3 J N k_B} \quad (5.13)$$

où  $T_C^0$  est la température de Curie d'une couche de cobalt seule. Le terme de couplage  $\langle A' \rangle$  vient donc s'ajouter et augmente la température de Curie de l'ensemble. Ce phénomène d'augmentation de  $T_C$  par couplage à travers un espaceur a déjà été observé dans le passé dans le système Co/Cu/Ni[17]. Il faut noter que le couplage à travers un espaceur métallique est généralement essentiellement de type RKKY, et oscille donc avec l'épaisseur de l'espaceur. L'oscillation de la température de Curie avec cette épaisseur a également été observée[18], validant de façon qualitative le modèle développé ci-dessus. Il faut cependant noter que la constante de couplage RKKY  $\langle A' \rangle$  varie également avec la température[19]. Dans le cas où elle varie significativement sur la gamme des températures étudiée, comme c'est le cas lorsque la température se rapproche de la température de Curie des couches seules, la formule 5.12 peut s'appliquer en prenant en compte la dépendance en température de  $\langle A' \rangle$ , mais l'équation 5.13 n'est plus valable, et la température de Curie de l'ensemble sera inférieure à celle prévue par cette équation.

L'influence de l'épaisseur de l'espaceur peut être vérifiée en mesurant la température de Curie des échantillons Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>5</sub>/(Co<sub>0,3</sub>/Pt<sub>*t*Pt</sub>)<sub>5</sub>/Cu<sub>2</sub>/Pt<sub>2</sub> recuits à 300°C 30 minutes, où  $t_{Pt}$  varie de 0,4 à 1,2 nm. Les résultats sont présentés en figure 5.6.



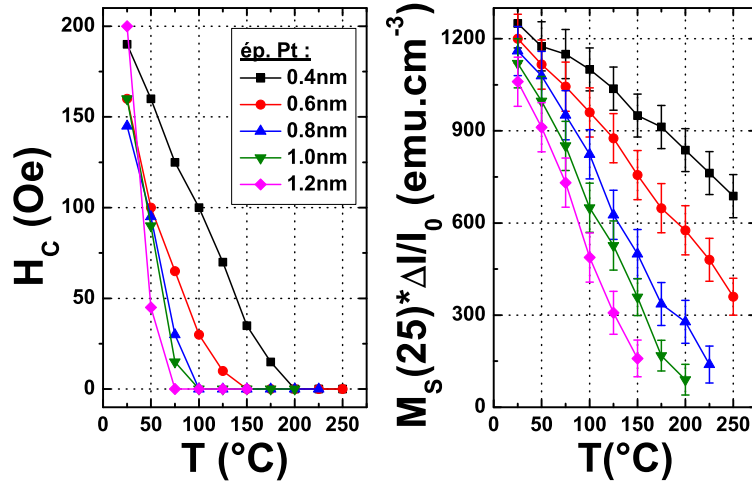


FIGURE 5.6 – Variation du champ coercitif (à gauche) et du signal Kerr multiplié par l'aimantation à température ambiante (à droite) des multicouches  $Ta_3/Pt_5/(Co_{0,3}/Pt_{tPt})_5/-Cu_2/Pt_2$  en fonction de l'épaisseur de l'espaceur de platine.

Comme attendu, l'aimantation diminue plus rapidement avec l'élévation de température quand l'épaisseur de l'espaceur de platine augmente, et de même pour le champ coercitif. Ceci semble indiquer que le couplage à travers l'espaceur diminue également. Cependant, il faut se rappeler que les interdiffusions cobalt-platine à l'interface supérieure (étudiées au chapitre 2) diminuent l'aimantation à température ambiante et la température de Curie de l'ensemble. Cette interdiffusion dépend de l'épaisseur de la couche de platine de couverture (ou d'un espaceur). Il est donc possible que la diminution de température de Curie ne soit pas seulement due à une baisse de couplage intercouches mais également aux interdiffusions.

Pour éviter ce problème, il est possible d'étudier des systèmes (Co/Pd) qui présentent une interdiffusion a priori plus faible. Dans ce cas les échantillons déposés sont  $Ta_3/Pt_5/(Co_{0,2}/Pt_{tPd})_5/Pd_2$ , avec  $t_{Pd}$  variant de 0,4 à 1,2 nm. Ils sont ensuite également recuits à 300°C 30 minutes. Dans ce cas là, l'aimantation à température ambiante est identique pour tous les échantillons à l'erreur de mesure près, ce qui semble indiquer que s'il y a une interdiffusion, celle-ci s'effectue de façon équivalente dans un espaceur de 0,4 nm ou de 1,2 nm. Cette fois-ci encore, l'aimantation diminue plus rapidement lorsque l'épaisseur de l'espaceur augmente, ce qui valide qualitativement le modèle développé ci-dessus.

De son côté, le champ coercitif varie de façon non monotone. Pour tous les échantillons, il existe un régime de basses températures, pour lequel la coercivité diminue de façon lente et linéaire avec la température, puis un second régime à plus haute température pour lequel le champ coercitif varie plus rapidement, ces variations étant décorréliées des variations d'aimantation. Le champ coercitif étant relié au couplage intercouches[20], il paraît plausible que la variation de ce couplage avec la température soit responsable

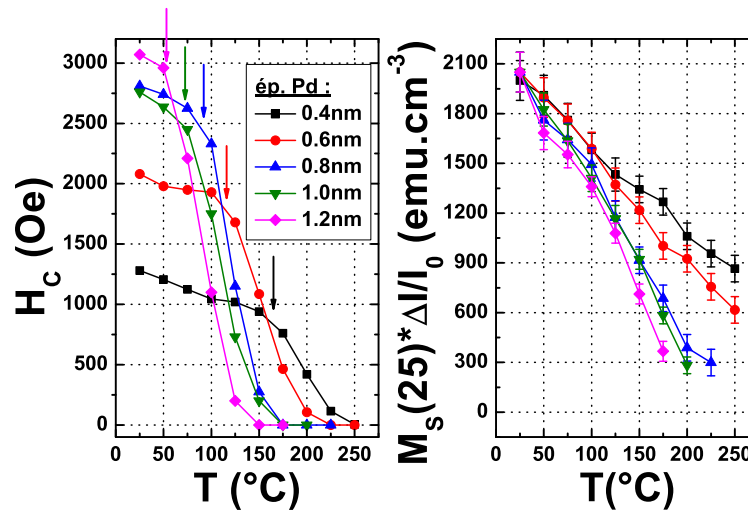


FIGURE 5.7 – Variation du champ coercitif (à gauche) et du signal Kerr multiplié par l'aimantation à température ambiante (à droite) des multicouches  $\text{Ta}_3/\text{Pd}_5/-(\text{Co}_{0.2}/\text{Pd}_{t\text{Pd}})_5/\text{Cu}_2/\text{Pd}_2$  en fonction de l'épaisseur de l'espaceur de palladium. Les flèches indiquent la température à partir de laquelle le couplage intercouche diminue rapidement.

du phénomène observé. Le couplage  $\langle A' \rangle$  diminue lorsque la température augmente d'autant plus rapidement que l'épaisseur de l'espaceur est importante[19]. Ceci est en accord avec le fait que la chute de coercivité apparaît à une température qui diminue lorsque l'épaisseur de palladium augmente.

### 5.3 Fabrication des électrodes de stockage et de référence

Les mesures précédentes ont montré qu'il était possible d'ajuster sur une gamme relativement large la température de Curie des multicouches (Co/Pt) ou (Co/Pd). La réalisation d'une électrode magnétique de jonction tunnel magnétique nécessite l'ajout d'une couche de CoFeB en contact avec une barrière tunnel. Les empilements étudiés seront donc du type couche tampon/ $(\text{Co}/\text{NM})_n/\text{CoFeB}/\text{barrière tunnel}/\text{couverture}$  dans le cas d'une électrode inférieure. Dans le cas d'une électrode supérieure, l'empilement sera : barrière tunnel/CoFeB/ $(\text{Co}/\text{NM})_n/\text{couverture}$ . Les paramètres qui permettent d'ajuster la température de basculement de cette électrode sont les épaisseurs des couches de cobalt, du CoFeB et des espaceurs. Il faut noter que l'anisotropie effective de l'ensemble dépend également de ces épaisseurs. Une difficulté supplémentaire va apparaître dans ce système : le couplage entre la couche de CoFeB et la multicouche  $(\text{Co}/\text{NM})_n$  va modifier la température de Curie de la multicouche, pour la même raison que le couplage inter-

couches à travers NM dans un empilement  $(\text{Co}/\text{NM})_n$  augmente la température de Curie par rapport à une monocouche. Il est donc difficile d'évaluer la température de Curie de chacun des éléments de l'empilement complet, et les paramètres des équations 4.2 et 5.2 sont difficilement extractibles.

Cependant, il est possible de réaliser et d'ajuster la température de basculement d'anisotropie par tâtonnement, en faisant varier les paramètres sur une gamme d'épaisseur qui semble raisonnable. De façon qualitative, le système idéal possède une multicouche  $(\text{Co}/\text{NM})_n$  ayant l'anisotropie perpendiculaire la plus forte possible à température ambiante et une température de Curie aux alentours de 250-300°C. La couche de CoFeB doit avoir une épaisseur aux alentours de 1,5 nm de telle sorte que la jonction tunnel magnétique présente une magnétorésistance tunnel maximale, l'épaisseur totale de la multicouche devant alors être ajustée de sorte que le critère de stabilité  $K^{eff}V > 50k_B T$  soit respecté sur la gamme de température de fonctionnement du dispositif.

### 5.3.1 Validation du basculement d'anisotropie

Tout d'abord, il convient de s'assurer que les courbes mesurées en champ perpendiculaire seules permettent de mesurer la température de basculement d'anisotropie. Il est essentiel de vérifier qu'il est possible de discriminer la situation où l'aimantation est perpendiculaire et celle où l'aimantation est dans le plan des couches. Pour cela, une multicouche pouvant servir d'électrode magnétique dans une jonction tunnel a été développée afin d'obtenir un basculement d'anisotropie aux alentours de 100°C<sup>2</sup>. L'empilement développé est  $\text{Ta}_3/(\text{Co}_{0,2}/\text{Cu}_{0,4}/\text{Pt}_{0,4})_5/\text{CoFeB}_1/\text{Al}_{0,6}\text{oxnat}/\text{Ta}_2/\text{Pt}_2$  recuit 30 minutes à 250°C. Tout d'abord, les cycles d'hystérésis ont été mesurés en champ perpendiculaire par effet Kerr polaire en fonction de la température.

La figure 5.8 montre qu'à température ambiante l'aimantation est perpendiculaire au plan, et que le champ coercitif de la multicouche diminue avec la température, devenant nul à 375 K. A partir de cette température, les cycles mesurés semblent caractéristiques d'un cycle de couche magnétique dont l'aimantation est planaire. Pour vérifier cela, des mesures ont été effectuées au SQUID sur le même échantillon. La figure 5.9 montre que les cycles mesurés en champ perpendiculaire ont une forme semblable aux mesures d'effet Kerr polaire, la perte de rémanence apparaissant pour la même température.

D'autre part, à partir de 375 K, le cycle mesuré en champ planaire devient caractéristique d'un axe de facile aimantation. Ces courbes montrent sans ambiguïté le basculement d'anisotropie. Les valeurs de champ coercitif  $H_C$  et de champ de saturation  $H_S$  mesurées sont présentées en figure 5.10.

La différence de champs coercitifs mesurée par les deux appareils peut s'expliquer par la différence de vitesse de balayage du champ. Lorsque l'échantillon présente une aimantation perpendiculaire, le basculement d'aimantation se fait par nucléation et propagation de domaines. Le champ coercitif peut être exprimé en fonction de la vitesse de balayage du champ[21] :

2. Cela permet de voir le basculement par des mesures SQUID qui ne peuvent pas excéder 125°C.

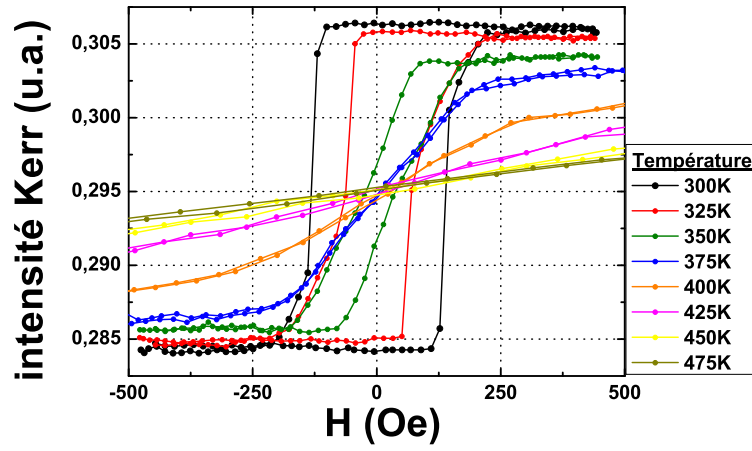


FIGURE 5.8 – Mesure des cycles d’hystérésis par effet Kerr polaire de l’électrode magnétique en fonction de la température.

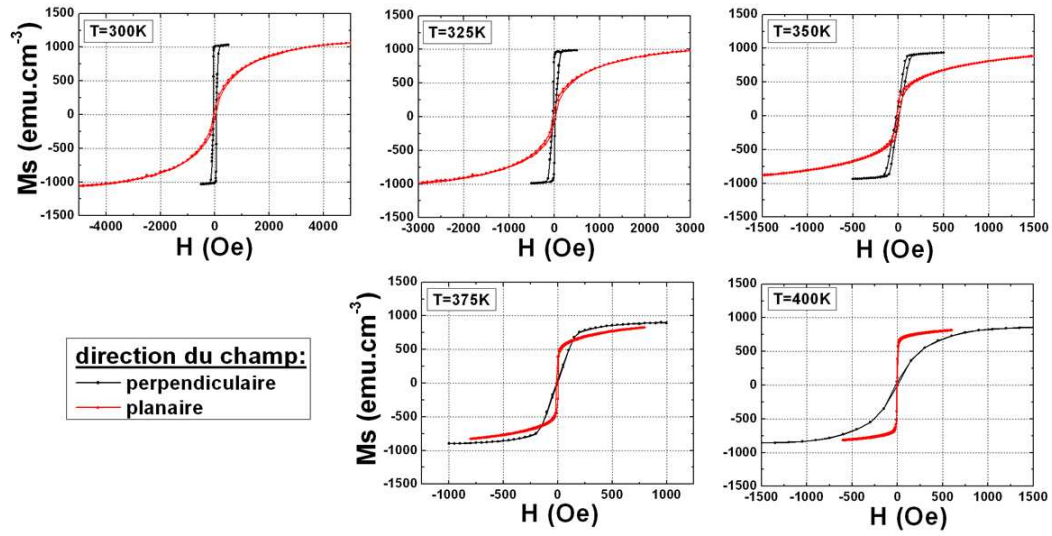


FIGURE 5.9 – Cycles d’hystérésis effectuées par magnétométrie SQUID en champ perpendiculaire (en noir) et planaire (en rouge) de l’électrode magnétique en fonction de la température.

$$H_C = \frac{k_B T}{V_B M_S} \left[ \ln \left( \frac{dH}{dt} \right) + \ln \left( \frac{V_B M_S}{k_B T} \tau(H=0) \ln(2) \right) \right] \quad (5.14)$$

avec

$$\tau(H=0) = \tau_0 \exp \left( \frac{V_B M_S H_K}{2 k_B T} \right) \quad (5.15)$$

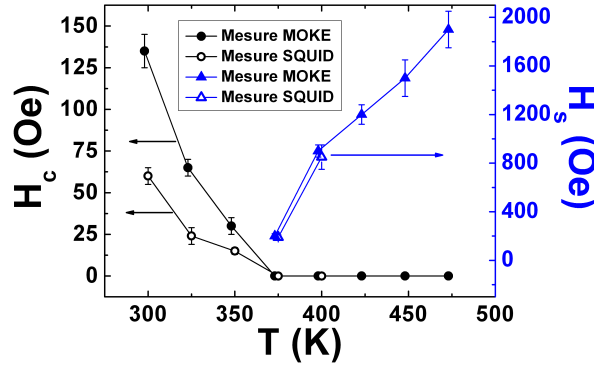


FIGURE 5.10 – Comparaison des champs coercitifs et de saturation mesurés sous champ perpendiculaire par effet Kerr polaire et par magnétométrie SQUID.

où  $V_B$  est le volume de Barkhausen, correspondant au volume d'aimantation renversé par un processus d'activation thermique,  $\tau$  et  $\tau_0$  sont les mêmes paramètres que définis dans l'équation 5.8 et  $H_K$  le champ d'anisotropie. La formule 5.14 montre que le champ coercitif augmente quand la vitesse de balayage du champ augmente. Comme la mesure SQUID est beaucoup plus lente que les mesure par effet Kerr, il est normal d'observer un champ coercitif plus faible dans le cas des mesures SQUID. Le champ de saturation mesuré sur des échantillons planaires ne présente par contre pas de différence significative entre les deux méthodes de mesures, ce qui montre que le renversement d'aimantation dans ce cas suit une loi de Stoner-Wohlfarth (rotation cohérente), qui ne dépend pas de la vitesse de balayage du champ.

Cette sous-section montre que la mesure des cycles en champ perpendiculaire par effet Kerr polaire est suffisante pour déterminer la température de basculement d'anisotropie de ces systèmes. Ceci permet un gain de temps considérable par rapport aux mesures SQUID.

### 5.3.2 Ajustement de la température de basculement d'électrodes magnétiques

Il est donc possible de fabriquer des électrodes à basculement d'anisotropie avec des températures de basculement ajustables avec les paramètres du système. Le but ici est d'obtenir une température de basculement d'anisotropie aux alentours de 150-175°C. De nombreuses combinaisons sont possibles pour obtenir une température donnée, et sont présentés ici deux types d'électrodes dont les épaisseurs magnétiques et le nombre de répétitions sont changés. Le premier type d'électrode développé est une électrode inférieure  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_5/(\text{Co}_{0,3}/\text{Cu}_{0,4}/\text{Pt}_{0,4})_n/\text{CoFeB}_2/\text{Al}_{0,6}\text{oxnat}/\text{Ta}_2/\text{Pt}_2$ . La couche intercalaire de cuivre est essentielle non seulement pour augmenter l'anisotropie de l'ensemble mais également pour pouvoir déposer une couche de cobalt suffisamment fine pour avoir une température de Curie permettant d'obtenir un basculement d'anisotropie aux alen-

tours de 150°C. La bicouche Ta/Pt sert à protéger l'échantillon d'une suroxydation. Le second type est une multicouche  $\text{Mg}_{10}\text{nat}/\text{Mg}_{0,5}/\text{CoFeB}_{1,5}/\text{Ta}_{0,3}/(\text{Co}_{\text{tCo}}/\text{Pd}_{1,2})_n/\text{Pd}_2$  pouvant être utilisée comme électrode supérieure, la couche de 0,3 nm de tantale permettant d'augmenter la magnétorésistance tunnel d'une jonction complète comme décrit dans le chapitre 4. Tous ces échantillons sont recuits à 250°C 10 minutes. L'anisotropie effective à température ambiante augmente avec le nombre de répétitions de la multicouche, comme attendu par l'équation 4.12. Elle peut en théorie permettre de conserver une stabilité thermique à des tailles de plots inférieures à 50 nm de diamètre. Pour le cas de l'électrode inférieure, en supposant que l'anisotropie CoFeB/MgO est négligeable comparée aux autres anisotropies, et que l'aimantation du CoFeB est de  $900 \text{ emu.cm}^{-3}$ , l'anisotropie effective de la multicouche (Co/Cu/Pt) déduite à partir de cette équation est de  $1,5(\pm 0,4)10^7 \text{ erg.cm}^{-3}$ . Cette valeur est indépendante du nombre de répétitions pour l'erreur de mesure donnée et est cohérente avec les mesures présentées en chapitre 2. Le calcul de l'anisotropie effective des multicouches (Co/Pd) au contraire augmente avec le nombre de répétitions de la multicouche, probablement parce que la première couche de cobalt est déposée sur du tantale, et possède donc moins d'anisotropie que les autres. L'anisotropie calculée varie entre 0,7 et  $1,3 \cdot 10^7 \text{ erg.cm}^{-3}$  pour ces multicouches, ce qui est également cohérent avec les mesures présentées dans le chapitre 2.

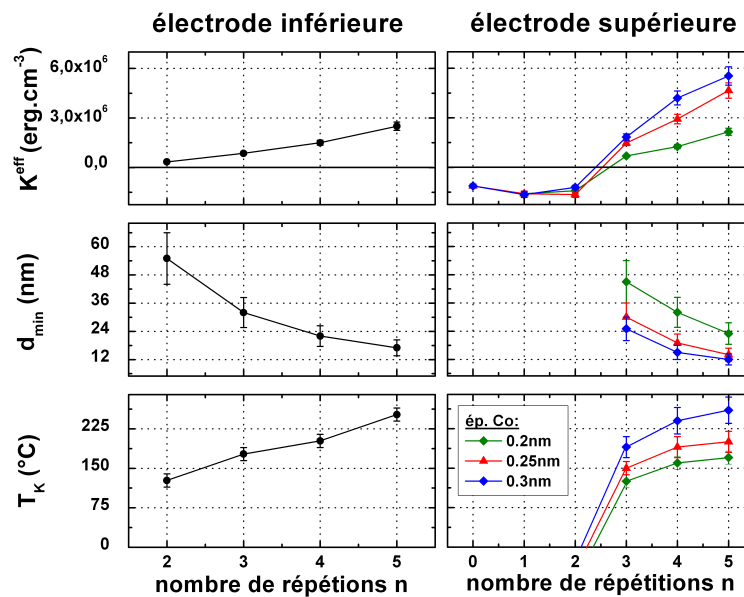


FIGURE 5.11 – Anisotropie effective (en haut), diamètre minimal de pilier pour respecter la condition  $KV/k_B T > 50$  à température ambiante (au milieu) et température de basculement d'anisotropie (en bas) des électrodes inférieure (à gauche) et supérieure (à droite) en fonction du nombre  $n$  de répétitions de la multicouche  $(\text{Co}/\text{Pt})_n$  (électrode inférieure) ou  $(\text{Co}/\text{Pd})_n$  (électrode supérieure).

L'évolution de la température de basculement d'anisotropie présentée en figure 5.11

varie de la façon attendue : elle augmente avec le nombre de répétitions de la multicouche et avec l'épaisseur de cobalt. Cette évolution peut être en théorie modélisée grâce au calcul de l'énergie du système et de l'évolution en température théorique de l'anisotropie. Cependant, le nombre de paramètres nécessaires à la simulation étant plus important que le nombre de mesures effectuées ici, il est impossible d'en déduire leur valeur, d'autant plus que de nombreux jeux de paramètres semblent ajuster correctement les données. Le problème le plus important reste la méconnaissance de l'évolution des constantes d'anisotropie avec la température.

Malgré cela, il est possible de faire varier facilement la température de basculement entre 100 et 250°C en ajustant correctement les paramètres, plusieurs jeux de paramètres permettant par ailleurs d'obtenir la température de basculement désirée. En plus du nombre de répétitions ou de l'épaisseur de cobalt, il aurait également été possible de changer la température de recuit ou l'épaisseur de CoFeB ou des espaceurs de platine et palladium. De même, il est aisé de fabriquer une électrode ne présentant pas de basculement d'anisotropie en dessous de 250°C. Pour cela, il convient d'utiliser des épaisseurs de cobalt dans la multicouche plus importantes que précédemment et des épaisseurs d'espaceurs plus fines. L'échantillon  $\text{Ta}_3/\text{Pt}_5/(\text{Co}_{0,5}/\text{Pt}_{0,4})_5/\text{Co}_{0,5}/\text{Ru}_{0,85}/\text{Pt}_{0,2}/(\text{Co}_{0,5}/\text{Pt}_{0,4})_3/\text{CoFeB}_{1,5}/\text{Al}_{0,6}\text{oxnat}/\text{Ta}_2/\text{Pt}_2$ , qui correspond à l'électrode de référence utilisée dans le chapitre 4 présente une température de basculement d'anisotropie supérieure à 250°C, comme le montre la figure 5.12.

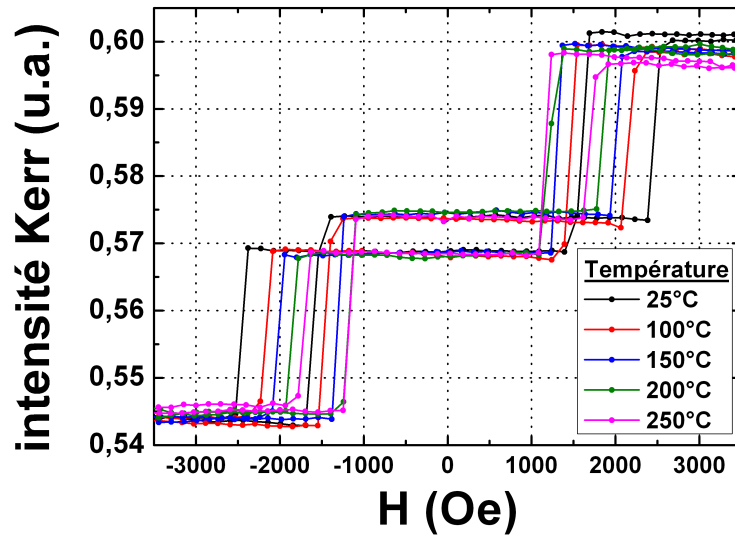


FIGURE 5.12 – Mesure des cycles d'hystérésis par effet Kerr polaire de l'électrode antiferromagnétique synthétique utilisée comme couche de référence. La température de basculement d'anisotropie est supérieure à 250°C.

Les cycles d'effet Kerr polaire restent carrés pour toutes les températures mesurées. Le couplage antiferromagnétique à travers le ruthénium diminue avec la température,



mais reste supérieur à 1 200 Oe sur la gamme de température testée. La rotation Kerr varie de 9%, ce qui montre que l'aimantation des couches varie relativement peu (d'autant plus 9%). Cette électrode est donc bien adaptée pour être utilisée comme électrode de référence dans une jonction tunnel magnétique à basculement d'anisotropie. Une jonction tunnel magnétique complète est obtenue en combinant cette électrode avec une électrode supérieure CoFeB/(Pd/Co) décrite précédemment.

### 5.3.3 Utilisation des alliages TbCo

Les alliages TbCo peuvent être utilisés de façon similaire aux multicouches (Co/Pt)<sub>n</sub> et (Co/Pd)<sub>n</sub> pour réaliser des électrodes perpendiculaires, et de même que dans le cas précédent, il est possible d'obtenir un basculement d'anisotropie en jouant sur les paramètres de l'empilement : épaisseur totale de l'alliage, composition, etc... Cependant, le chapitre 3 a montré qu'il est nécessaire d'utiliser des épaisseurs supérieures à 4-5 nm de TbCo pour obtenir l'anisotropie perpendiculaire après recuit. Pour une électrode de stockage, l'utilisation de TbCo va être problématique pour trois raisons : premièrement, l'effet du transfert de spin étant proportionnel à l'épaisseur magnétique, il est préférable de garder des couches relativement fines. Deuxièmement, le fort couplage spin-orbite des atomes de terbium donne un fort coefficient d'amortissement  $\alpha$  (typiquement  $\alpha$  est proche de 1 dans des alliages contenant 10% de terbium à comparer aux 0,02 du CoFeB[22]), ce qui est également préjudiciable pour la commutation par couple de transfert de spin. Enfin, le basculement d'anisotropie n'est pas brusque comme dans le cas précédent : il existe une gamme de température importante (typiquement sur une plage de 50°C) où l'aimantation n'est pas macrospin, mais tourne de façon similaire aux média composites décrits succinctement dans le chapitre 4.

Ces alliages TbCo sont donc plus adaptés pour la fabrication d'électrodes de référence supérieure. Cependant, il convient de vérifier que l'aimantation de telles couches reste perpendiculaire lors du chauffage. Pour cela, des structures MgO<sub>1</sub>/Mg<sub>0,5</sub>/CoFeB<sub>1,6</sub>/(Tb<sub>x</sub>/Co<sub>1-x</sub>)<sub>20</sub>/Cu<sub>2</sub>/Pt<sub>2</sub> ont été déposées puis recuites à 300°C 10 minutes, avec x=0,4 ; 0,45 et 0,5 nm. Les structures avec x=0,4 et 0,45 nm sont riches en Co à température ambiante, et celle avec x=0,5 nm est riche en Tb. Les structures restent parfaitement perpendiculaires sur la gamme de température mesurée, c'est à dire de 25 à 250°C. L'évolution du champ coercitif avec la température est présenté en figure 5.13. Cette figure montre que la température de compensation de l'alliage avec x=0,5 nm est située à 75(±20)°C, valeur pour laquelle le champ coercitif est maximal.

L'évolution observée montre qu'au delà de 150°C, le champ coercitif de la couche est inférieur à 500 Oe quel que soit x. Ceci est en grande partie dû au fait que lorsque la température augmente, l'aimantation du sous-réseau de terbium diminue plus rapidement que celle du sous-réseau de cobalt, et que la structure s'éloigne donc de la compensation. Ceci a deux conséquences : d'une part l'énergie due au champ démagnétisant donnant une anisotropie planaire augmente avec la température, ce qui rend la structure de moins en moins stable, d'autant plus que l'énergie magnétocristalline donnant une anisotropie



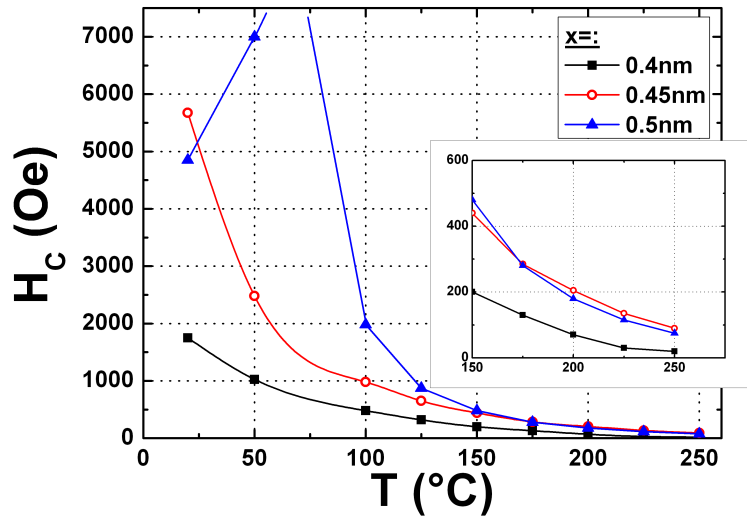


FIGURE 5.13 – Évolution du champ coercitif des électrodes de références Co-FeB/(Tb/Co) en fonction de la température, pour différentes concentrations  $x$  de Tb.

perpendiculaire diminue avec la température[23]. D'autre part les champs rayonnés par cette couche de référence vont augmenter. Intuitivement il semble possible d'augmenter la concentration en terbium, de façon à augmenter la température de compensation, et idéalement faire en sorte qu'elle se situe à la température d'écriture. Malheureusement, comme la température de Curie de l'alliage diminue lorsque cette concentration augmente[24], il est impossible d'obtenir une température de compensation à 150-175°C. De plus la structure devient spérimagnétique à température ambiante lorsque la concentration en terbium augmente, ce qui n'est pas souhaitable dans le cadre des jonctions tunnel magnétiques car cela conduit à une diminution du signal magnétorésistif.

Finalement, ces alliages TbCo ne semblent pas adaptés aux jonctions tunnel magnétiques à écriture assistée thermiquement. D'une part il est impossible de fabriquer une électrode de stockage suffisamment fine pour espérer une écriture par transfert de spin, et d'autre part il est impossible de fabriquer une électrode de référence suffisamment stable en température.

## 5.4 Conclusion

Les lois de variations de l'anisotropie en fonction de la température sont malheureusement compliquées à déterminer. Même sur une couche magnétique simple, cette loi varie selon l'épaisseur de la couche. Il est donc difficile de prévoir le comportement d'une multicouche comportant de nombreuses couches magnétiques. Cependant, il est clair que l'anisotropie varie avec l'aimantation, et il est donc essentiel de pouvoir contrôler la variation d'aimantation. Celle-ci peut se faire en faisant varier l'intensité des interac-

tions entre atomes magnétiques, par exemple en changeant la coordination moyenne des atomes, en modifiant l'épaisseur de la couche magnétique, ou en changeant l'épaisseur et la nature des espaceurs entre deux couches magnétiques. Même si la modélisation de ces systèmes reste un défi qui nécessiterait des études théoriques et expérimentales longues et fastidieuses, il est possible de fabriquer des électrodes adaptées aux jonctions tunnel magnétiques présentant un basculement d'anisotropie à une température de 175°C environ. Pour cela, la connaissance qualitative de la variation de l'anisotropie en fonction de la température permet de déterminer les paramètres qui font varier la température de basculement d'anisotropie, cette température étant en pratique ajustée par tâtonnement.

Les systèmes utilisant des multicouches (Co/Pt) et (Co/Pd) semblent bien mieux adaptés aux jonctions tunnel magnétiques à écriture assistée thermiquement que les systèmes utilisant des multicouches (Tb/Co), que ce soit pour la fabrication d'une électrode de référence ou une électrode de stockage. En effet, la variation thermique de l'anisotropie des multicouches (Co/Pt) et (Co/Pd) est bien plus facile à contrôler que celle des alliages TbCo.

# Bibliographie

- [1] P. J. Jensen and K. H. Bennemann, Phys. Rev. B **53**, 849-855 (1990)
- [2] R. Allenspach and A. Bischof, Phys. Rev. Lett. **69**, 3385-3388 (1992)
- [3] J. C. Suits, D. Rugar and C. J. Lin, J. Appl. Phys. **64**, 252-261 (1988)
- [4] F. J. A. M. Greidanus, W. B. Zeper, F. J. A. den Broeder, W. F. Godlieb and P. F. Carcia, Appl. Phys. Lett. **54**, 6267-6269 (1996)
- [5] K. Zakeri, T. Kebe, J. Lindner and M. Farle, Phys. Rev. B **73**, 052405 (2006)
- [6] P. Pouloupoulos and K. Baberschke, J. Phys. Condens. Matter. **73**, 9495-9515 (1999)
- [7] Y. Xiao, J.-H. Xu and K. V. Rao, J. Appl. Phys. **79**, 6267-6269 (1996)
- [8] R. Skomski, O. N. Mryasov, J. Zhou and D. J. Sellmyer, J. Appl. Phys. **99**, 08E916 (2006)
- [9] E. Stavrou, R. Sbiaa, T. Suzuki, S. Knappmann and K. Röhl, J. Appl. Phys. **87**, 6899-6901 (2000)
- [10] K. Baberschke and M. Farle, J. Appl. Phys. **81**, 5038-5043 (1997)
- [11] A. Berger and H. Hopster, J. Appl. Phys. **79**, 5619-5621 (1996)
- [12] E. Du Trémolet de Lacheisserie, Magnétisme, Tome 1 : Fondements (Coll. Grenoble sciences), *EDP Sciences* (2000)
- [13] S. Hashimoto, J. Appl. Phys. **75**, 438-441 (1994)
- [14] G. Srinivas and S.-C. Shina, Appl. Phys. Lett. **69**, 3086-3088 (1996)
- [15] L. Wojtczak, J. Phys. France **30**, 578-588 (1969)
- [16] V. I. Belotelov, A. P. Pyatakov, S. A. Eremin, G. G. Musaev and A. K. Zvezdin, Physics of Solid State **42**, 1873-1880 (2000)
- [17] U. Bovensiepen, F. Wilhelm, P. Srivastava, P. Pouloupoulos, M. Farle, A. Ney and K. Baberschke, Phys. Rev. Lett. **81**, 2368-2371 (1998)
- [18] A. Ney, F. Wilhelm, M. Farle, P. Pouloupoulos, P. Srivastava and K. Baberschke, Phys. Rev. B **59**, R3938 (1999)
- [19] V. Drchal, J. Kudrnovský, P. Bruno, I. Turek, P. H. Dederichs and P. Weinberger, Phys. Rev. B **60**, 9588-9595 (1999)
- [20] J. W. Knepper and F. Y. Yang, Phys. Rev. B **71**, (2005)

- [21] P. Bruno, Thèse, Université Paris Sud, Orsay (1989)
- [22] S. E. Russek, P. Kabos, R. D. McMichael, C. G. Lee, W. Bailey, R. Ewasko and S. C. Sander, J. Appl. Phys. **91**, 8659-8661 (2002)
- [23] G. Garreau, E. Beaupaire, K. Ounadjela and M. Farle, Phys. Rev. B **53**, 1083-1086 (1996)
- [24] M. L. Soltani, Jour. of Alloys and Compounds **323-324**, 422-426 (2001)

## Chapitre 6

# Écriture assistée thermiquement de jonctions tunnel magnétiques perpendiculaires

L'écriture assistée thermiquement est un moyen de résoudre un dilemme apparaissant pour tous les systèmes d'enregistrement magnétique. Lorsque les dimensions d'un point mémoire diminuent, il est nécessaire d'augmenter son anisotropie  $K^{eff}$  de telle sorte à compenser la diminution de volume et maintenir une hauteur de barrière  $K^{eff}V$  suffisante pour assurer une stabilité thermique satisfaisante. Cependant, cette augmentation d'anisotropie va également augmenter l'énergie nécessaire à l'écriture d'un point mémoire, que cela soit par champ magnétique ou par couple de transfert de spin, jusqu'à un point où il sera impossible de produire un champ ou un courant suffisamment important dans le dispositif.

Pour résoudre ce problème, il est possible d'utiliser une assistance thermique. L'idée est d'avoir un matériau le plus stable possible sur la plage de température d'utilisation mais qui perd son anisotropie une fois chauffé à la température d'écriture. Pour écrire un point mémoire, il faut alors utiliser une combinaison de chauffage et de champ magnétique (ou courant polarisé en spin). Cette méthode permet de résoudre le dilemme précédemment exposé tout en diminuant la consommation énergétique du système. Cette technique a été proposée pour l'écriture de disques durs, de médias magnéto-optiques ou pour les TA-MRAM décrites dans le chapitre 1.

Ce chapitre présente les résultats obtenus au cours de cette thèse sur l'écriture assistée thermiquement de jonctions tunnel magnétiques à aimantation perpendiculaire. Tout d'abord la méthode de mesure des jonctions tunnel magnétiques submicroniques et des probabilités de retournement d'aimantation par courant sera exposée. Ensuite, un modèle de chauffage 1D des piliers sera succinctement présenté. Une méthode permettant d'estimer le facteur de stabilité des dispositifs nanométriques sera exposée, et enfin le concept de jonction à aimantation perpendiculaire à écriture par couple de transfert de spin assisté thermiquement décrit dans le chapitre 1 sera démontré.

## 6.1 Mesure des probabilités de retournement

Les mesures sont effectuées par un testeur sous pointe schématisé en figure 6.1, permettant de mesurer la résistance de la jonction. Deux pointes permettent d'établir un contact entre les électrodes de la jonction et l'électronique de mesure. Un voltmètre mesure la résistance de la jonction. Un générateur de tension permet d'appliquer une impulsion de courant de durée et d'intensité variable. Pour éviter que cette impulsion soit mesurée par le voltmètre, un té de polarisation est connecté à la jonction et ne laisse passer que les signaux radiofréquences du côté du générateur et les signaux continus du côté du voltmètre. Un champ magnétique pouvant atteindre 3 kOe peut également être appliqué.

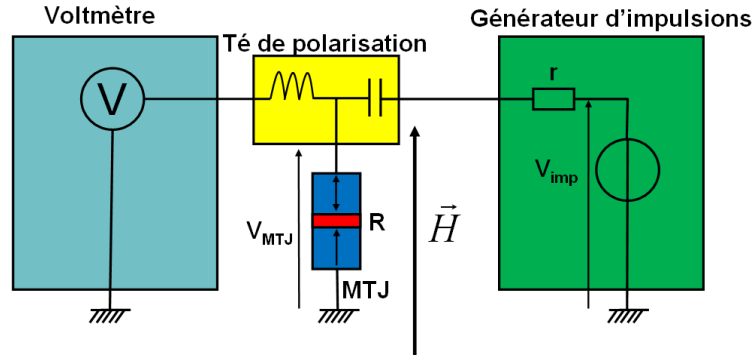


FIGURE 6.1 – Montage expérimental permettant de mesurer la résistance de la jonction tunnel magnétique tout en lui appliquant des impulsions de courant. Un champ magnétique permet également de changer son état magnétique.

La tension ressentie par la jonction tunnel lors de l'application d'une impulsion dépend de la tension de consigne  $V_{imp}$  et de la résistance de la jonction. Le générateur est conçu pour délivrer la tension de consigne sur une résistance de 50  $\Omega$ . En effet, une résistance  $r$  de 50  $\Omega$  est incluse dans le générateur, la tension sur la jonction vaut :

$$V_{MTJ} = \frac{2V_{imp}R_{MTJ}}{R_{MTJ} + r} \quad (6.1)$$

Dans le cas de jonctions de 100 nm de diamètre possédant un produit aire-résistance de 10  $\Omega \cdot \mu\text{m}^2$ , la résistance de la jonction est de 1275  $\Omega$ , et la tension ressentie par la jonction est quasiment le double de la tension de consigne. Il est donc important de prendre en compte cette équation pour le calcul des densités de courant d'écriture. Plusieurs méthodes peuvent être utilisées pour mesurer la probabilité de retournement de l'aimantation par courant. La plus intuitive consiste à initialiser le système dans un état, appliquer une impulsion de courant, lire l'état de la résistance de la jonction pour savoir si le courant a induit un retournement, puis recommencer l'opération un nombre de fois suffisant pour avoir une statistique fiable. En modélisant le tirage effectué par

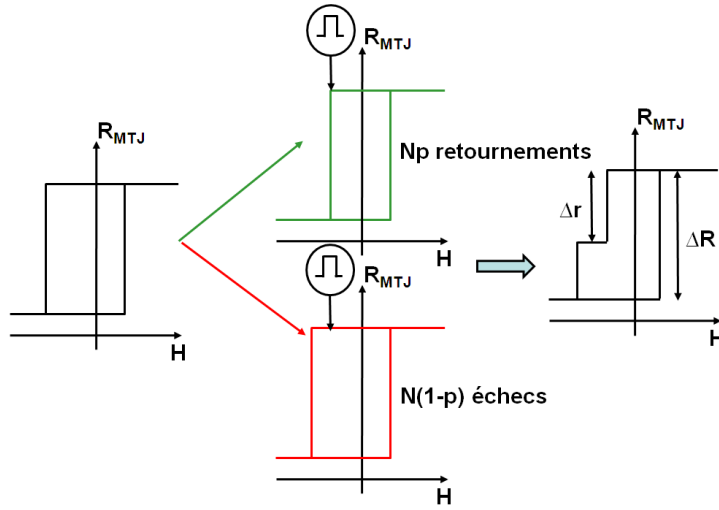


FIGURE 6.2 – Méthode de mesure de la probabilité de retournement de l'aimantation par courant.

une loi de Bernoulli, il est nécessaire d'effectuer au moins 30 essais. L'erreur de mesure de la probabilité  $p$  du succès de retournement dépend du nombre  $N$  de mesure et vaut :

$$\sigma = \sqrt{\frac{p(1-p)}{N}} \quad (6.2)$$

Cette méthode a cependant le défaut d'être particulièrement lente. Une autre méthode a été utilisée à l'occasion de cette thèse[1]. Le principe est d'appliquer une ou plusieurs impulsions de tension pendant le cycle d'hystérésis, l'oscilloscope mesurant la résistance en continu. Plus précisément, un cycle d'hystérésis est effectué en appliquant un champ oscillant à une fréquence de 0,1 à 5 Hz. Le cycle obtenu est présenté en figure 6.2 à gauche. Si une impulsion est appliquée durant ce cycle, il peut se passer deux choses : soit l'impulsion de courant retourne l'aimantation, et le cycle est alors "coupé", comme montré sur la figure 6.2 au milieu en haut, soit l'impulsion ne retourne pas l'aimantation, et le cycle est alors inchangé comme montré sur la figure 6.2 au milieu en bas. La courbe obtenue en moyennant  $N$  cycles mesurés de cette façon présente une marche de résistance  $\Delta r$  inférieure ou égale à la magnéto-résistance  $\Delta R$ , reflétant la proportion de retournements par courant réussis. La probabilité de retournement s'exprime alors tout simplement comme valant  $\Delta r / \Delta R$ . Cette méthode à l'avantage d'être particulièrement rapide, la probabilité pouvant être mesurée sur 100 essais en seulement 20 secondes.

## 6.2 Modèle de chauffage 1D

Le chauffage de la jonction tunnel magnétique lors de l'application d'une impulsion électrique est l'un des phénomènes physiques essentiel à contrôler pour le bon fonctionnement du dispositif. En effet, c'est ce chauffage qui va permettre de réaliser le basculement d'anisotropie, et il est donc essentiel d'atteindre la température d'écriture, située aux alentours de 150 à 175°C, tout en optimisant la consommation et le temps de chauffage. De nombreux modèles et simulations thermiques ont déjà été réalisés dans le cadre des TA-MRAM. Dans cette section, seul un modèle unidimensionnel simple est présenté, mais le lecteur désirant plus de détails sur ce phénomène peut consulter la thèse de doctorat de Gapihan[2].

La jonction tunnel peut être modélisée par un élément entouré par des barrières thermiques. Ces barrières thermiques sont de préférence des matériaux à forte conductivité électrique et faible conductivité thermique, et permettent de diminuer le courant nécessaire au chauffage. Pour les jonctions mesurées dans cette thèse, les couches de tantale déposées pour le masque dur ou en couche tampon ont une conductivité thermique plus faible que les couches métalliques constituant la jonction, et font donc office de barrière thermique.

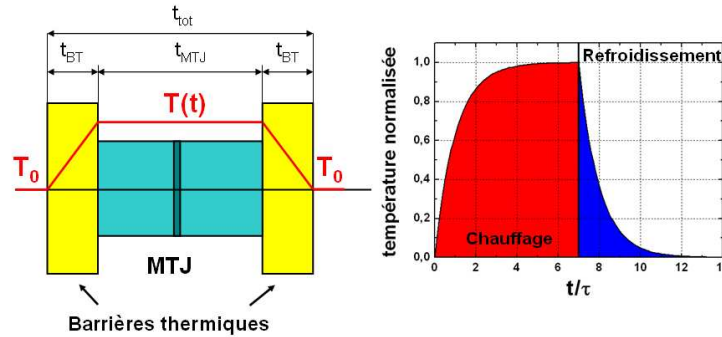


FIGURE 6.3 – A gauche : modèle 1D du chauffage de la jonction tunnel magnétique. A droite : profil de la température dans la jonction en fonction du temps. L'impulsion de courant est coupée au bout de  $7\tau$ .

Dans la suite, la température  $T(t)$  de la jonction est supposée homogène en tout point, les pertes de chaleurs sont supposées s'effectuer uniquement selon l'axe de la jonction<sup>1</sup>, et la transition de la température  $T(t)$  à la température du thermostat extérieure  $T_0$  se fait à l'intérieur de la barrière thermique. La température de la jonction peut être calculée à partir de l'équation de la chaleur :

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} = -\vec{\nabla} \cdot \vec{j}_Q + Q \quad (6.3)$$

1. L'étude de l'influence des pertes de chaleur latérales peut être trouvée dans la référence [2].



où  $\rho$  est la masse volumique moyenne de la jonction,  $c$  sa capacité calorifique massique,  $\vec{j}_Q$  le flux de chaleur valant  $\vec{j}_Q = -k \vec{\nabla}(T)$  ( $k$  étant la conductivité thermique des barrières thermiques) et  $Q$  est la source de chaleur provenant de la relaxation inélastique des électrons. Dans ce modèle, le gradient de température est non nul seulement dans les barrières thermiques, et la divergence du flux de chaleur est donc nulle au sein de la jonction. L'équation 6.3 s'écrit donc :

$$Ct_{tot} \frac{\partial T}{\partial t} - \frac{k}{t_{BT}}(T - T_0) = P_Q \quad (6.4)$$

pendant le chauffage, et

$$Ct_{tot} \frac{\partial T}{\partial t} - \frac{k}{t_{BT}}(T - T_0) = 0 \quad (6.5)$$

pendant le refroidissement,  $C$  étant la capacité calorifique moyenne de l'empilement,  $t_{tot}$  son épaisseur totale,  $t_{BT}$  l'épaisseur des barrières thermiques et  $P_Q$  la densité de puissance thermique associée à  $Q$ . Les équations 6.4 et 6.5 ont pour solution :

$$(T - T_0) = \frac{P_Q t_{BT}}{k} (1 - \exp(-t/\tau)) \quad (6.6)$$

pendant la phase de chauffage, et

$$(T - T_0) = (T - T_i) \exp(-t/\tau) \quad (6.7)$$

pendant la phase de refroidissement,  $T_i$  étant la température initiale de la jonction au moment où le courant est coupé.  $\tau$  est le temps caractéristique de chauffage, et vaut  $\tau = Ct_{tot}t_{BT}/k$ . Pour avoir une vitesse de chauffage la plus rapide possible, il convient de minimiser l'épaisseur totale de la jonction tunnel  $t_{tot}$ . Des barrières tunnel de faible épaisseur et de grande conductivité thermique permettent également de réduire le temps de chauffage, mais cela se fait au détriment de la température atteinte pour une puissance injectée donnée.

## 6.3 Calcul de la stabilité thermique des piliers

La mesure de l'anisotropie effective d'une couche continue est relativement simple. La méthode exposée au chapitre 1 permet par exemple d'obtenir rapidement cette valeur. Cependant, il est plus difficile d'évaluer l'anisotropie effective d'un pilier. Il est possible de considérer en premier abord que l'anisotropie effective du pilier est égale à celle de la couche continue, mais cela ne prend en compte ni la dispersion des propriétés magnétiques au sein du matériau, et qui sont moyennées lors de la mesure sur la couche continue, ni les dommages potentiels subis pendant la fabrication du pilier.

De nombreuses méthodes ont été développées pour extraire la barrière d'énergie de la couche libre d'une jonction tunnel magnétique. Par exemple, il est possible à partir de la probabilité de retournement par couple de transfert de spin de retrouver cette barrière

à partir d'un modèle d'activation thermique simple[3], en faisant varier le temps ou la tension d'application du courant. Ces lois ne peuvent s'appliquer que dans certains cas[4], nécessitent d'avoir une jonction qui peut s'écrire par couple de transfert de spin et ne peut pas s'appliquer dans le cas où la jonction chauffe significativement. De façon plus simple, il est également possible de remonter à cette hauteur de barrière à partir de la probabilité de retournement de la couche libre par un champ magnétique. Cette méthode a été développée par Wernsdorfer et al.[5] à partir d'un modèle utilisé au départ par Kurkijärvi pour étudier les fluctuations de champ critique dans les supraconducteurs[6]. Dans ce modèle, la distribution de champ de retournement  $p_{Hc}$  peut s'écrire :

$$p_{Hc} = \frac{f_0}{R} \exp\left(\frac{-E_B(H_C)}{k_B T}\right) \exp\left(-\frac{f_0}{R} \int_0^H \exp\left(\frac{-E_B(h)}{k_B T}\right) dh\right) \quad (6.8)$$

où  $f_0$  est la fréquence d'essai, proche de 1 GHz,  $R$  la vitesse de balayage du champ et  $E_B$  la barrière de potentiel qui nous intéresse, dépendant du champ. Cette barrière de potentiel peut s'écrire[5] :

$$E_B(H) = E_B(0) \left(1 - \frac{H}{H_K}\right)^n \quad (6.9)$$

où  $H_K$  est le champ d'anisotropie. La puissance  $n$  de l'équation 6.9 varie entre 1 et 2. Elle vaut 1 dans le cas où le retournement se fait par nucléation-propagation avec un piégeage de paroi négligeable, et elle vaut 2 dans le cas d'une rotation cohérente de l'aimantation. En pratique il est extrêmement compliqué de connaître sa valeur. Engelen et al.[7] ont montré que ce facteur  $n$  est pourtant critique pour extraire la hauteur de barrière  $E_B(0)$ , et qu'il est impossible de déterminer ce  $n$  par l'ajustement numérique des données expérimentales : tout  $n$  compris entre 1 et 2 donnera un ajustement d'égal qualité du point de vue de la minimisation des moindres carrés.

Pour ces raisons, les valeurs d'énergie de barrière extraites avec ces méthodes sont à prendre avec précaution. Dans un premier temps, le modèle sera utilisé avec  $n=2$ , c'est à dire en supposant que le renversement d'aimantation se fait de manière cohérente. Dans ce cas, l'équation 6.8 peut se réécrire à partir de la fonction erreur  $\text{erf}(x)$  en effectuant le changement de variable  $x = \sqrt{E_B(0)/k_B T}(1 - h/H_K)$  :

$$p_{Hc} = \frac{f_0}{R} \exp\left(-\frac{E_B(H)}{k_B T}\right) \exp\left[-\frac{f_0 H_0 \sqrt{\pi}}{2R \sqrt{\frac{E_B(0)}{k_B T}}} \left(\text{erf}\left(\sqrt{\frac{E_B(H)}{k_B T}}\right) - \text{erf}\left(\sqrt{\frac{E_B(0)}{k_B T}}\right)\right)\right] \quad (6.10)$$

Même si la valeur absolue de l'énergie de barrière déduite n'est pas certaine, il est supposé dans un premier temps que  $n$  ne varie pas pour la gamme de piliers mesurés, c'est à dire entre 100 et 500 nm de diamètre nominal. L'équation 6.10 a été utilisée pour ajuster numériquement la distribution de champ de retournement des piliers de

la jonction SAF/MgO/CoFeB<sub>1,1</sub>/Ta<sub>0,3</sub>/Co<sub>0,3</sub>/(Pd<sub>1,2</sub>/Co<sub>0,3</sub>)<sub>2</sub>/Pd<sub>3</sub> où SAF est l'antiferromagnétique synthétique décrit dans le chapitre 4 section 4.3.3. La distribution obtenue pour 100 essais sur un pilier de 100 nm de diamètre à température ambiante ainsi que l'ajustement numérique effectué à partir de ces données sont présentés en figure 6.4. Le champ  $H$  de l'équation 6.9 est égal à la somme du champ appliqué  $H_{app}$  et du champ rayonné par la couche de référence  $H_{dip}$ . La hauteur de barrière déduite des ces ajustements est de  $128(\pm 3) k_B T$  en moyenne, les valeurs trouvées pour les états parallèle et antiparallèle valant respectivement  $132(\pm 2)$  et  $124(\pm 4) k_B T$ . Le champ d'anisotropie déduit de l'ajustement vaut  $1\,680(\pm 5)$  Oe dans les deux cas. Ces deux valeurs sont très proches, ce qui est logique puisque le système est symétrique si l'effet du champ rayonné est exclu. La hauteur de barrière sous le champ statique  $H_{dip}$  peut être calculée à partir de l'équation 6.9 :

$$E_B(H_{dip}) = E_B(0) \left( 1 \pm \frac{H_{dip}}{H_K} \right)^2 \quad (6.11)$$

La hauteur de barrière sous ce champ rayonné de 325 Oe ici vaut  $111(\pm 5) k_B T$  pour l'état antiparallèle et  $144(\pm 4) k_B T$  pour l'état parallèle. Si la couche de référence est optimisée de telle sorte le champ rayonné soit négligeable devant le champ d'anisotropie, le système sera symétrisé et la hauteur de barrière sera égale à  $E_B(0)$ .

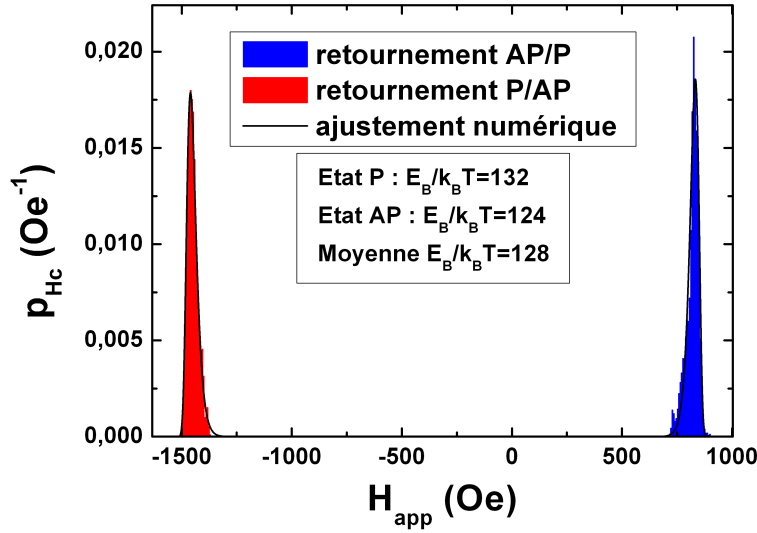


FIGURE 6.4 – Distribution des champs de retournement en fonction du champ appliqué  $H_{app}$ , et ajustements numériques effectués à partir de l'équation 6.10.

Le volume de Barkhausen  $V_B$  qui correspond au volume magnétique se retournant peut être calculé à partir de l'équation :

$$V_B = \frac{2E_B(0)}{M_S H_K} \quad (6.12)$$

En prenant les valeurs de  $E_B(0)$  et  $H_K$  déduite de l'ajustement et l'aimantation à saturation mesurée sur la couche continue, le volume de Barkhausen vaut  $6,4(\pm 0,7)10^3 \text{ nm}^3$ , ce qui correspond à un cylindre de  $38(\pm 4) \text{ nm}$  de diamètre. Il est possible à partir de cette valeur de remonter à l'anisotropie effective de l'électrode libre :  $K^{eff}V_B = 128 \text{ k}_B\text{T}$ , où de façon équivalente :  $K^{eff} = M_S H_K / 2$ . L'anisotropie de la couche libre de ce pilier vaut  $1,1(\pm 0,1)10^6 \text{ erg.cm}^{-3}$ , ce qui est plus de deux fois inférieur à l'anisotropie de  $2,4(\pm 0,2)10^6 \text{ erg.cm}^{-3}$  mesurée sur la couche continue. Il est possible à partir de ces mesures de remonter à la constante d'échange moyenne  $A$  du matériau : le diamètre de nucléation doit valoir le double de la largeur de paroi  $l_{paroi}$ , donné par  $l_{paroi} = \sqrt{A/K^{eff}}$ . La constante d'échange déduite est de  $3,9(\pm 1,1)10^6 \text{ erg.cm}^{-1}$ , ce qui est cohérent avec les différentes valeurs mesurées par d'autres équipes pour des systèmes (Co/Pd) similaires[8]. Ces valeurs sont à prendre avec précaution, la hauteur de barrière déduite de la mesure étant très sensible au facteur  $n$  utilisé dans l'équation 6.9. En particulier, les volumes de nucléation déduits de l'équation 6.12 dépendent directement du modèle utilisé. Les résultats d'Engelen montrent[7] que le champ d'anisotropie déduit de ces ajustements varient faiblement avec  $n$ , d'environ 10%. Pour vérifier cela, il est possible d'utiliser un modèle d'activation thermique décrivant la probabilité de retournement en fonction du champ appliqué :

$$P_{retournement} = 1 - \exp\left(-\frac{1}{R\tau}\right) \quad (6.13)$$

avec[9] :

$$\tau^{-1} = f_0 \exp\left(-\frac{E_B(H)}{k_B T}\right) \quad (6.14)$$

Là encore la valeur prise pour l'exposant  $n$  va jouer un rôle crucial sur la valeur de  $E_B(0)$ , et encore une fois tout  $n$  pris entre 1 et 2 donnera un ajustement d'égale qualité. Un exemple d'un tel ajustement pour  $n=1,5$  est donné sur la figure 6.5. Cependant, les équations 6.13 et 6.14 ont le mérite de ne pas contenir d'intégrale, contrairement à l'équation 6.8, et permettent donc d'ajuster numériquement les mesures expérimentales pour tout  $n$ . L'évolution de la hauteur de barrière et du champ d'anisotropie en fonction du paramètre  $n$  est tracée sur l'insert de la figure 6.5 pour un pilier de 100 nm de diamètre nominal. La méthode de mesure de la distribution des champs coercitifs avait donné une hauteur de barrière de  $175(\pm 5) \text{ k}_B\text{T}$  et un champ d'anisotropie de  $1950(\pm 30) \text{ Oe}$ . Cette figure montre que si la valeur déduite de l'énergie de barrière varie d'environ 30% lorsque  $n$  varie de 1,5 à 2, celle déduite pour le champ d'anisotropie ne varie que de 7%, ce qui rejoint les résultats d'Engelen. Pour  $n=2$ , l'ajustement obtenu à partir de l'équation 6.13 donne une hauteur de barrière de  $162(\pm 4) \text{ k}_B\text{T}$  et un champ d'anisotropie de  $1930(\pm 20) \text{ Oe}$ , ces valeurs étant en accord avec les valeurs obtenues avec l'équation 6.10. Cet accord est rassurant mais peu étonnant : les deux méthodes de mesure de stabilité découlent au départ du modèle d'activation thermique de Néel-Brown.

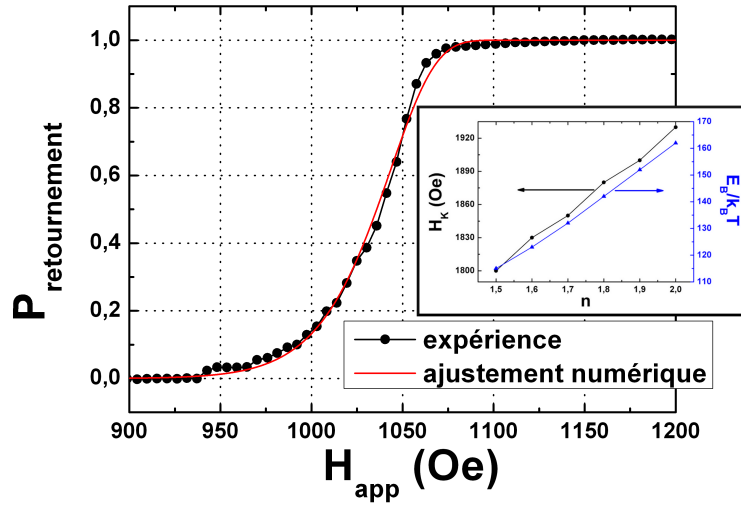


FIGURE 6.5 – Probabilité de retournement  $P_{\text{retournement}}$  en fonction du champ appliqué  $H_{\text{app}}$  (points noirs), et ajustement numérique (ligne rouge) effectué à partir de l'équation 6.13 utilisée avec  $n=1,5$ . L'insert montre la variation des valeurs de champ d'anisotropie et hauteur de barrière obtenue par ajustement numérique en fonction de  $n$ .

La question de la valeur de  $n$  reste un débat ouvert. Victora par un calcul basé sur un développement limité de l'énergie de barrière, dans le cas où celle-ci est très supérieure à l'énergie d'activation thermique  $k_B T$ , montre que l'exposant  $n$  doit être égale à 1,5 dans le cas général[10]. Selon Victora, la loi  $n=2$  n'est valable que dans le cas particulier où le champ appliqué et l'axe d'anisotropie sont colinéaires. Dans notre cas, l'axe d'anisotropie et le champ appliqué sont colinéaires en théorie, mais il existe vraisemblablement un petit angle dû à l'imperfection du système expérimental, ce qui laisse un doute sur la valeur de  $n$  à utiliser.

Cette méthode de mesure a cependant été utilisée avec  $n=2$  pour différentes tailles de piliers, et également différentes températures. La figure 6.6 présente les résultats obtenus pour des mesures sur 6 à 10 piliers de 100, 200, 300 et 500 nm de diamètre nominal. Tout d'abord, il faut remarquer que la valeur moyenne de la stabilité thermique mesurée ne dépend pas de la taille du pilier, ce qui est logique puisque le volume de Barkhausen qui détermine la stabilité de la couche libre est inférieur au volume de tous les piliers. Ensuite, la dispersion des propriétés entre les différents piliers est large, puisque des variations allant jusqu'à 60% de la valeur moyenne sont observées ici. Il sera important dans le futur d'étudier la provenance de ces dispersions, en particulier si elles sont dues aux matériaux utilisés ou à la fabrication des piliers, car il est impossible de fabriquer une mémoire présentant de telles dispersions.

Bien que la valeur exacte de la stabilité thermique ne puisse pas être connue (variant donc d'environ 30% selon la valeur de  $n$  utilisée), l'évolution en température indique une

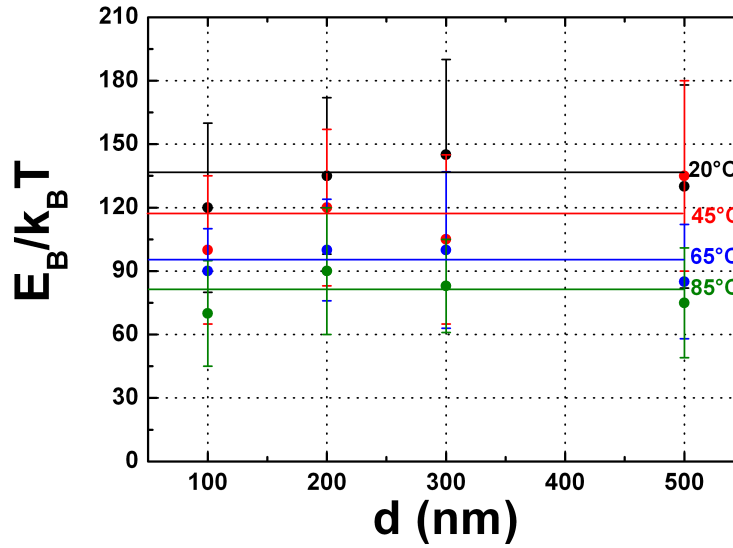


FIGURE 6.6 – Évolution de la hauteur de barrière d'énergie  $E_B$  en fonction de la température  $T$  et du diamètre nominal des piliers. Les barres d'erreur représentent la dispersion des propriétés de piliers. Les traits continus représentent la moyenne de l'énergie de barrière.

diminution du rapport  $K^{eff}V_B/k_B T$  lors du chauffage et de façon similaire du champ d'anisotropie  $H_K$ . A température ambiante, l'anisotropie peut être évaluée à partir de  $H_K$  et de l'aimantation mesurée sur la pleine tranche. Selon le pilier mesurée, elle varie entre  $7,2(\pm 1,1)10^5 \text{ erg.cm}^{-3}$  et  $1,6(\pm 0,3)10^6 \text{ erg.cm}^{-3}$ , ce qui correspond à un diamètre minimale de pilier valant entre  $28(\pm 3) \text{ nm}$  et  $42(\pm 4) \text{ nm}$  pour satisfaire la condition  $K^{eff}V_B = 50k_B T$ . A  $85^\circ\text{C}$ , en supposant que l'aimantation ait diminué de 10% comme indiqué sur les mesures d'effet Kerr polaire sur des échantillons pleine tranche, et en utilisant les champs d'anisotropie obtenus avec les ajustements numériques des probabilités de retournement, les anisotropies effectives sont comprises entre  $4,8(\pm 1,0)10^5 \text{ erg.cm}^{-3}$  et  $9,0(\pm 1,8)10^5 \text{ erg.cm}^{-3}$ , qui correspondent à une stabilité thermique satisfaisante pour des diamètres de pilier de  $40(\pm 4) \text{ nm}$  pour les plus stables, et  $56(\pm 6) \text{ nm}$  pour les moins stables. Ces valeurs restent à prendre avec précaution, car beaucoup de suppositions sont faites sur les valeurs d'aimantation, et les modèles utilisés ne permettent que d'obtenir une valeur approchée du champ d'anisotropie. Cependant, il semble bien que la fabrication des nanopiliers diminue l'anisotropie des couches magnétiques, et une optimisation des processus de gravure/encapsulation semble nécessaire pour éviter la dégradation des propriétés magnétiques des jonctions.

## 6.4 Démonstration de l'écriture assistée thermiquement

Deux types d'écritures assistées thermiquement par passage d'un courant électrique peuvent être utilisées. La première consiste à utiliser la variation du champ coercitif d'un matériau avec la température. En effet, même en l'absence de variation d'anisotropie, l'augmentation de température entraîne une diminution du champ coercitif. Cet effet peut être modélisé simplement par l'équation 5.8. Cette diminution est encore plus rapide bien évidemment si en plus  $K^{eff}$  diminue avec le chauffage. Cette méthode d'écriture a été proposée pour les disques durs[11, 12, 13] ou les média magneto-optiques[14, 15]. Cependant, cette méthode, même si elle permet d'obtenir des champs d'écriture inférieurs à 20 Oe, n'est pas idéale pour une mémoire MRAM, car elle nécessite des lignes de champs qui prennent une surface importante (ces lignes étant de dimensions micrométriques).

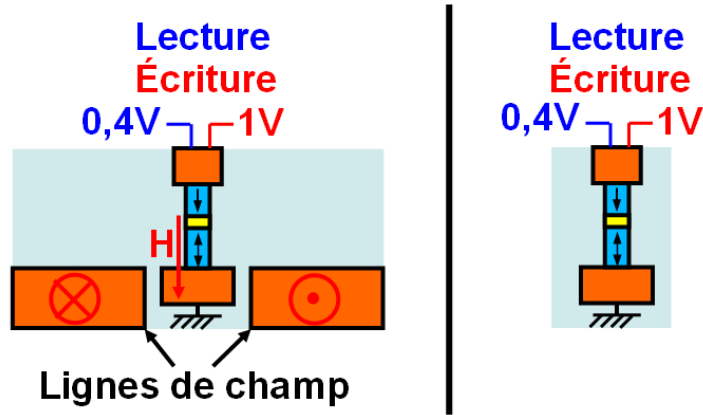


FIGURE 6.7 – Schéma d'une jonction à aimantation perpendiculaire à écriture par champ (à gauche) et d'une jonction à aimantation perpendiculaire à écriture par couple de transfert de spin. Les deux systèmes utilisent une écriture assistée thermiquement.

Une percée technologique est accomplie si ces lignes peuvent être supprimées, c'est-à-dire si le couple de transfert de spin seul est suffisant pour retourner l'aimantation de la couche libre. Dans ce cas, les équations 1.18 et 1.19 montrent que le chauffage induisant une diminution d'anisotropie permet de réduire la courant critique de commutation, et donc la consommation. Dans le cas idéal où le courant chauffe suffisamment la jonction pour obtenir un basculement d'anisotropie, il suffit d'un très faible courant polarisé en spin pour réaliser une écriture. Dans ce cas, le paramètre critique est le courant nécessaire au chauffage de la jonction jusqu'à la température de basculement d'anisotropie.

### 6.4.1 Écriture par champ assistée thermiquement

Pour étudier l'effet du chauffage, il est possible de réaliser des cycles d'hystérésis sous courant. Pour cela, la méthode décrite dans la section 6.1 est utilisée. A chaque pas de



champ une impulsion de courant de 30 ns en forme de créneau et d'amplitude variable est envoyée avant la mesure de la résistance, et 100 cycles sont effectués. La moyenne de ces 100 cycles donne la probabilité de retournement en fonction de la tension et du champ appliqué. Il est possible de tracer le diagramme de phase  $R(H,V)$  d'un tel système : la résistance est normalisée, elle vaut 1 quand seul l'état antiparallèle est stable, 0 quand c'est seulement l'état parallèle et 0,5 dans la région où les deux états sont stables avec une probabilité identique. Le diagramme de phase d'une jonction de 110 nm de diamètre<sup>2</sup> ayant une magnétorésistance de 10%, un produit aire-résistance de  $25 \Omega\mu\text{m}^2$  est présenté en figure 6.8. La stabilité de cette jonction est de  $162(\pm 4) k_B T$  à température ambiante (mesurée avec  $n=2$ ), elle a une anisotropie de  $1,2(\pm 0,1)10^6 \text{ erg.cm}^{-3}$ .

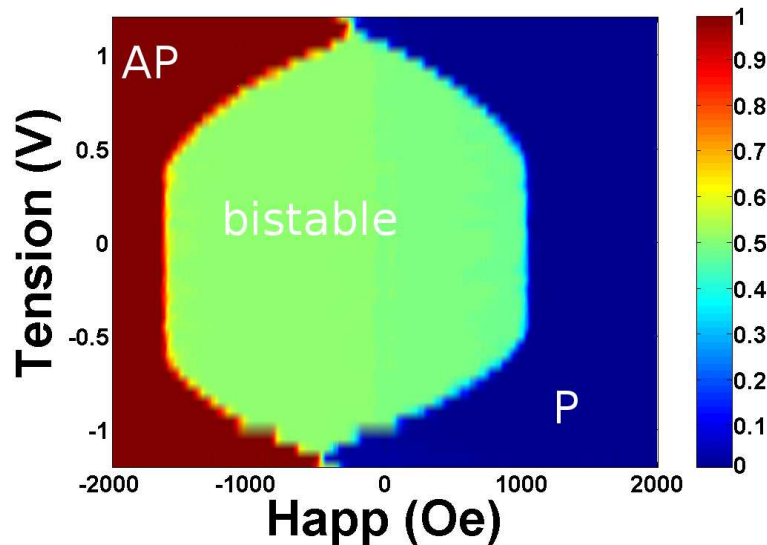


FIGURE 6.8 – Diagramme de phase  $R(H,V)$  d'une jonction de 110 nm de diamètre.

Ce diagramme montre que la zone de champ où l'état bistable existe diminue avec la tension appliquée, ce qui traduit une diminution de champ coercitif. Pour plus de clarté, l'évolution du champ d'écriture en fonction de la valeur absolue de la tension appliquée est présenté en figure 6.9. Ce champ correspond au champ minimal à appliquer pour retourner la couche avec une probabilité de 1 sur les 100 essais effectués.

En supposant qu'il soit possible d'améliorer le système de telle sorte que le champ rayonné soit nul, il est possible en appliquant une impulsion de  $1,2 \text{ V}^3$  de diminuer ce champ d'écriture moyen à 20 Oe, à comparer aux 1 400 Oe à température ambiante et tension nulle. Ceci permet d'envisager la réalisation de mémoires à écriture par champ assistée thermiquement. Dans les MRAM, il est impossible de fabriquer des lignes de

2. Ce diamètre prend en compte l'élargissement du pilier durant la nanofabrication

3. A cette tension, la température de la jonction peut être estimée à 180-200°C dans le régime stationnaire.



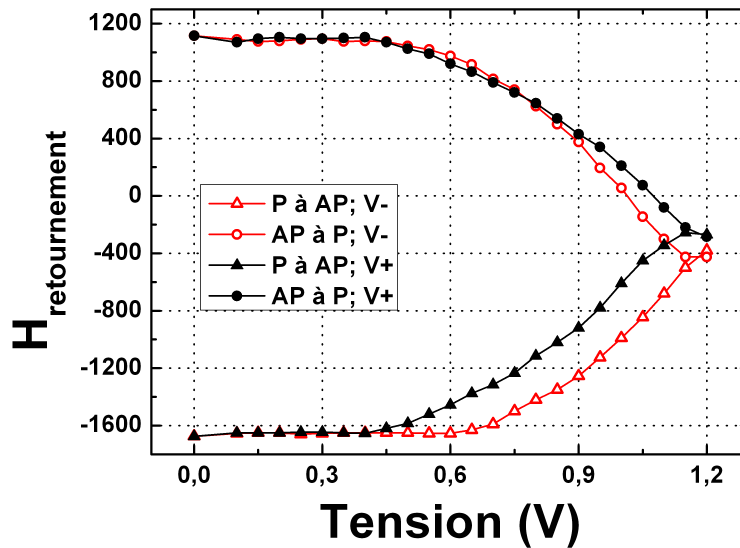


FIGURE 6.9 – Évolution du champ d'écriture en fonction de la tension appliquée pour des impulsions de 30 ns.

champ produisant plus de 300 Oe. Dans le cas présent, cela veut dire qu'il est impossible d'écrire les jonctions sans l'assistance thermique.

Il est par contre très intéressant de remarquer que le centre des cycles mesurés change selon le sens du courant appliqué. L'asymétrie du décalage en champ pourrait être expliquée par un chauffage asymétrique avec le sens du courant. La relaxation inélastique des électrons s'effectue par effet tunnel d'un côté ou de l'autre de la barrière selon le signe de la tension appliquée. Cette barrière tunnel fait office de barrière thermique, et une électrode sera donc plus chaude que l'autre. Une asymétrie de chauffage pourrait donner une asymétrie de champ de décalage car le champ rayonné est différent selon le rapport des aimantations de la couche de référence synthétique, rapport qui dépend de la température. Une autre explication serait l'effet du couple de transfert de spin qui va favoriser un état par rapport à l'autre, selon le sens du courant appliqué.

#### 6.4.2 Écriture par couple de transfert de spin assistée thermiquement

Dans la section précédente, l'effet du chauffage sur le champ coercitif a déjà été démontré. Cependant, ce type de mémoire pourrait être fortement amélioré si aucun champ magnétique n'était nécessaire pour l'écriture : cela réduirait la consommation électrique et la compacité des cellules MRAM. Pour cela, il est nécessaire d'examiner l'effet du couple de transfert de spin sur l'aimantation de la couche libre.

Dans le cas où la jonction ne chauffe pas, l'application des impulsions de courant va stabiliser un état par couple de transfert de spin et déstabiliser l'autre. La transition

vers l'état favorisé se fera donc à un champ inférieur au champ coercitif. La transition vers l'état défavorisé par l'impulsion de courant se ferait à un champ plus important si le courant était appliqué de façon continue. Cependant, comme ici les impulsions ne sont appliquées que pendant 30 ns, la couche se retournera de toute façon au champ de retournement à tension nulle, pendant que le courant est coupé. Dans le cas où la jonction chauffe significativement, le champ de retournement vers l'état favorisé par le courant dépend du couple du transfert de spin, du chauffage et du champ appliqué, tandis que le champ de retournement vers l'état défavorisé par le courant ne dépend que du chauffage et du champ appliqué. La figure 6.10 présente, en fonction de la tension des impulsions appliquées, l'évolution des champs de retournement auxquels le champ dipolaire mesuré sur les cycles sans impulsion de courant a été retranché, pour une jonction de 110 nm de diamètre et ayant des caractéristiques électriques similaires à celle présentée dans la section précédente. L'état antiparallèle est favorisé par l'application d'une impulsion de tension positive, alors que l'application d'une tension négative favorise l'état parallèle (le champ de retournement vers un des états est plus faible à tension égale). La figure 6.10 semble également indiquer que le couple de transfert de spin est plus efficace pour retourner la couche vers l'état parallèle que pour retourner la couche vers l'état antiparallèle. En effet, la différence entre le champ de retournement vers l'état favorisé par le courant et le champ de retournement défavorisé par le courant est plus importante en tension négative. Cette asymétrie entre les deux sens de courant peut s'expliquer par la différence d'efficacité du couple de transfert de spin en fonction du sens du courant (en particulier le terme  $a_j$  de l'équation 1.13 peut être asymétrique[18, 19, 20]). Cependant, l'évolution du couplage dipolaire lors du chauffage de la jonction pourrait également s'ajouter à l'asymétrie du couple de transfert de spin.

Le couple de transfert de spin est relativement faible, puisque le retournement vers l'état favorisé par le couple de transfert de spin n'est changé que d'au maximum  $400(\pm 20)$  Oe pour l'état parallèle et  $200(\pm 20)$  Oe pour l'état antiparallèle. Ceci est insuffisant pour obtenir un renversement par couple de transfert de spin sans assistance par champ ou assistance thermique. En effet, à température ambiante le champ coercitif est de l'ordre de 1 400 Oe, et le décalage du cycle dû au couple de transfert de spin est donc au moins trois fois plus petit. Cependant, en ajoutant l'effet du chauffage il devient possible d'écrire par couple de transfert de spin cette jonction. La figure 6.11 présente les cycles d'hystérésis moyennés sur 100 cycles et normalisés, obtenus avec des impulsions de 30 ns et d'amplitude de  $\pm 1,1$  V,  $\pm 1,15$  V et  $\pm 1,2$  V. Les cycles effectués sous tension d'amplitudes égales mais de signes opposés sont décalés l'un de l'autre à cause du couple de transfert de spin. Sur cette figure, trois zones sont représentées. En zone nommée I et symbolisée par un rectangle vert foncé, le sens du courant détermine totalement l'état stable du système. En zone nommée II et symbolisée par un rectangle vert clair, la probabilité de retournement par couple de transfert de spin est de 1, mais une impulsion de courant dans le sens qui favorise l'état initial peut retourner la couche de stockage par effet d'activation thermique. Dans une cellule mémoire MRAM, cela veut dire que pour écrire un état il faut connaître l'état initial du système par une lec-

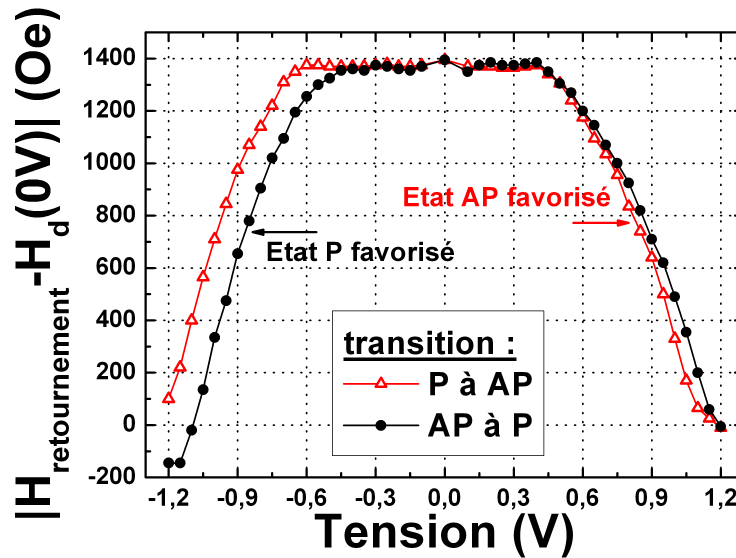


FIGURE 6.10 – Évolution de la valeur absolue des champs de retournement auxquels le champ de couplage dipolaire à tension nulle a été retranché en fonction de la tension des impulsions de 30 ns appliquées.

ture de résistance pour savoir s'il est nécessaire de changer l'état du point mémoire. Sans cette lecture préalable, l'application d'une impulsion peut induire une écriture parasite de l'état opposé à celui qui désire être écrit. Enfin, la zone nommée III et symbolisée par un rectangle violet est la zone dans laquelle l'état est totalement déterminé par le sens du champ magnétique appliqué. Dans les autres zones, l'écriture ne peut être faite de façon déterministe.

Seules les impulsions de 1,15 V permettent d'obtenir un retournement totalement déterminé par le sens du courant. A plus forte tension, le couple de transfert de spin semble moins efficace. Ce phénomène est vraisemblablement dû à un effet purement thermique : lorsque l'impulsion de courant est coupée, l'effet du couple de transfert de spin est tout de suite éteint, alors que la jonction met un certain temps à refroidir. Si ce refroidissement est trop lent, l'aimantation retombe dans le plan avant de retrouver son anisotropie perpendiculaire, et il est alors nécessaire d'ajouter en plus un champ magnétique pour écrire la jonction de façon déterministe. Pour contrer cet effet néfaste, il conviendrait d'étudier l'influence de la forme de l'impulsion de tension. En particulier, une descente plus lente du courant permettrait de moduler l'effet du chauffage proportionnel au carré du courant et l'effet du couple de transfert de spin qui est lui proportionnel au courant. La densité de courant associée à une écriture à 1,15 V est de  $4,6 \cdot 10^6 \text{ A.cm}^{-2}$ , ce qui est de l'ordre de grandeur des meilleurs systèmes présentés dans la littérature. Même si les densités de courant sont comparables, il convient de garder à l'esprit plusieurs choses :

- Cette structure est bien plus stable à température ambiante que les structures Ta/-CoFeB/MgO habituellement utilisés : dans cet exemple, l'énergie de barrière vaut  $162 k_B T$

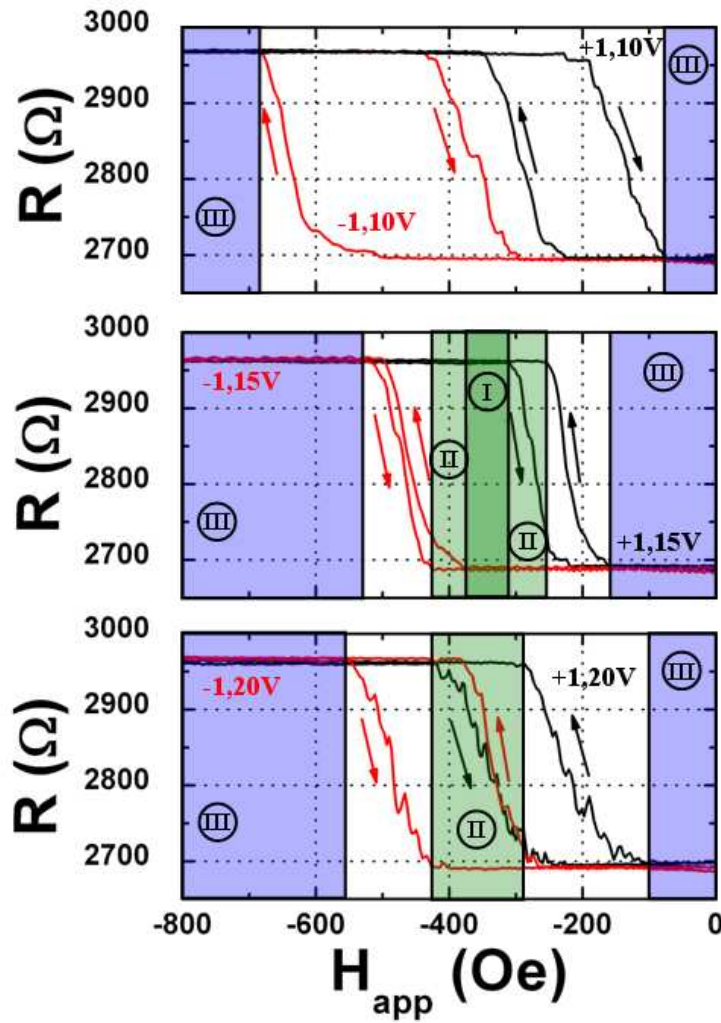


FIGURE 6.11 – Cycles d’hystérésis obtenus sous impulsions de 30 ns à 1,1 V (en haut), 1,15 V (au milieu) et 1,2 V (en bas), avec une tension positive (en noir) ou négative (en rouge). Chaque cycle représente la moyenne de 100 cycles individuels. La zone I (rectangle vert foncé) représente la zone pour laquelle la direction de l’aimantation de la couche libre est entièrement déterminée par le sens du courant, la zone II (rectangles verts clairs) celle pour laquelle la probabilité d’écriture par couple de transfert de spin est de 1 mais où l’application d’une impulsion de courant dans le sens favorisant l’état initial pour engendrer une écriture parasite, et la zone III celle où l’état de la jonction est entièrement déterminé par le sens du champ magnétique (rectangles violets).

pour ce pilier de 110 nm. Pour un pilier de 40 nm de diamètre, cela correspond à  $73 k_B T$ , à comparer aux  $43 k_B T$  obtenus par Ikeda et al.[21].

- L’amortissement de Gilbert est vraisemblablement bien plus important quand des mul-

## 6 Écriture assistée thermiquement de jonctions tunnel magnétiques perpendiculaires

ticouches (Co/Pd) sont utilisées. L'amortissement mesuré par Sajitha et al.[16] dans la structure  $\text{CoFeB}_1/(\text{Pd}_1/\text{Co}_{0,3})_6$  est de 0,15 alors que celui des structures Ta/CoFeB/MgO utilisée par Ikeda et al.[21] est seulement de 0,013, soit un ordre de grandeur plus faible.

- L'effet du couple de transfert de spin sera vraisemblablement bien plus efficace si la magnétorésistance tunnel était augmentée, la fonction  $g(\theta)$  étant reliée à ce paramètre.
- L'aimantation à saturation de la couche libre est de  $1200(\pm 50) \text{ emu.cm}^{-3}$ , alors qu'elle n'est que de  $900 \text{ emu.cm}^{-3}$  au maximum pour du CoFeB[22].

D'après les équations 1.18 et 1.19, sans effet d'assistance thermique et en négligeant la différence en polarisation en spin des différents systèmes (qui doit pourtant être importante), le courant critique de commutation de l'électrode présentée dans cette section nécessiterait un courant critique 25 fois supérieur au système Ta/CoFeB/MgO, ce qui n'est pas le cas. Une comparaison succincte avec les systèmes présentés dans la littérature est présentée dans le tableau 6.1.

Réf.	matériau	$J_C(30 \text{ ns})$ ( $\text{A.cm}^{-2}$ )	$\Delta$ (300K, d=40nm)	$J_C/\Delta$ ( $\text{A.cm}^{-2}$ )	TMR (%)	$\alpha$
[17]	CoFeB/TbFeCo	$4,9 \cdot 10^6$	10	$49 \cdot 10^4$	10	?
[21]	MgO/CoFeB/Ta	$3,8 \cdot 10^6$	43	$9 \cdot 10^4$	120	0,013
[22]	Ta/CoFeB/MgO	$2,8 \cdot 10^6$	20	$14 \cdot 10^4$	43	0,04
Ce travail	CoFeB/(Pd/Co)	$4,6 \cdot 10^6$	73	$6 \cdot 10^4$	10	0,15

TABLE 6.1 – Résumé des différentes performances obtenues par différentes équipes sur l'écriture par couple de transfert de spin de jonctions tunnel à aimantation perpendiculaire en terme de stabilité  $\Delta = E_B/k_B T$ , de densité de courant critique  $J_C$ , de courant critique normalisé par l'énergie de barrière  $J_C/\Delta$ , de magnétorésistance tunnel et d'amortissement de Gilbert  $\alpha$ .

Les valeurs obtenues dans ce tableau sont en général extrapolées à partir des valeurs présentées dans les articles. En particulier, la stabilité  $\Delta = E_B/k_B T$  d'un point mémoire de 40 nm sont extrapolées des valeurs d'anisotropies mesurées sur un pilier plus large, sauf pour la référence [21]. De même, le courant critique pour une impulsion de 30 ns est déduite de valeur obtenues à un temps différent par la relation[23, 24] :

$$J_C = J_{C0} \left( 1 - \frac{1}{\Delta} \ln(t_i f_0) \right) \quad (6.15)$$

où  $t_i$  est la durée d'impulsion et  $J_{C0}$  le courant critique extrapolé à 0 s.

Le tableau 6.1 montre que malgré tous les problèmes décrits précédemment, la méthode d'écriture faisant l'objet de cette thèse est particulièrement efficace, car c'est elle qui possède le meilleur facteur de mérite  $J_C/\Delta(300K)$ . L'assistance thermique est donc une voie particulièrement attrayante pour la fabrication de dispositifs à faible consommation électrique. Pour une cellule mémoire MRAM, il conviendrait d'optimiser la résistance

de l'empilement pour diminuer la consommation : la résistance doit être un compromis entre l'effet du chauffage et celui du couple de transfert de spin. Il faudrait également optimiser l'électrode de référence de telle sorte à ce qu'elle ne rayonne aucun champ à la température d'écriture. Enfin, l'insertion de barrières thermiques optimisées permettrait de réduire la consommation, mais pourrait poser problème du point de vue du temps de refroidissement de la jonction.

### 6.4.3 L'effet du chauffage avec une électrode de référence CoTb

Les jonctions utilisant une électrode de référence de CoTb présentent des magnétorésistances bien plus élevées que les jonctions présentées ici. Cependant, ces jonctions ne sont pas adaptées à l'écriture assistée thermiquement. En effet, bien que le couplage dipolaire soit relativement faible dans ces structures à température ambiante (champ de couplage inférieure à 100 Oe), il augmente lors du passage d'un courant de chauffage. Dans les structures testées avec une électrode à basculement d'anisotropie à 150°C et une électrode de référence CoTb, l'application d'une impulsion de courant ne permet d'écrire que l'état parallèle, indépendamment du champ appliqué ou du sens du courant. Les champs rayonnés par l'électrode de référence lorsque la température de la jonction augmente sont trop importants pour que le couple de transfert de spin puisse contrer le couplage dipolaire. Les électrodes de référence CoTb ne sont donc pas adaptées à l'écriture avec assistance thermique, mais sont efficaces si cette assistance n'est pas nécessaire. Nistor présente dans sa thèse[25] des résultats de commutations par couple de transfert de spin de jonctions possédant de telles électrodes de référence et une couche libre Ta/CoFeB/MgO pour lesquelles le chauffage est négligeable à la tension d'écriture.

## 6.5 Conclusion

Dans ce chapitre, la stabilité de jonctions de taille nanométrique a été étudiée. La difficulté de cette étude réside dans le fait que le modèle de variation de la barrière d'énergie en fonction du champ appliqué n'est pas exactement connu. Selon le modèle utilisé, la hauteur de barrière obtenue varie significativement. La mesure du champ d'anisotropie dépend quant à elle relativement peu du modèle utilisé (variations de l'ordre de 10%) et permet d'obtenir une indication plus fiable de l'anisotropie des piliers. Il est clair cependant que la commutation de la couche libre s'effectue par le renversement d'un volume magnétique de diamètre inférieur à 100 nm puis propagation, et que la gravure de la jonction diminue l'anisotropie des couches magnétiques. L'optimisation du procédé de fabrication des jonctions devrait permettre d'éviter ce problème.

L'efficacité de l'assistance thermique a ensuite été démontrée, que ce soit pour l'écriture par champ ou par couple de transfert de spin. Pour cette dernière, la densité de courant utilisée est plus faible comparée à des systèmes étudiés dans la littérature ayant une stabilité thermique équivalente, alors que l'amortissement de Gilbert est plus fort. De nombreuses améliorations pouvant être faites à ce niveau. Le potentiel de cette méthode

d'écriture est donc encore loin d'être pleinement exploité. De plus, l'optimisation de la résistance de la barrière, de la forme de l'impulsion électrique ou l'ajout de barrières thermiques optimisées devrait permettre une diminution de la consommation d'écriture. L'amélioration de la magnétorésistance tunnel et de la structure de l'électrode de référence seront également des points essentiels pour utiliser ce système comme base dans les futures mémoires MRAM.





# Bibliographie

- [1] Cette méthode a été introduite au laboratoire SPINTEC par Cristian Papusoi.
- [2] E. Gapihan, Thèse, Université Joseph Fourier, Grenoble (2010)
- [3] R. H. Koch, J. A. Katine and J. Z. Sun, Phys. Rev. Lett. **92**, 088302 (2004)
- [4] R. Heindl, W. H. Rippard, S. E. Russek, M. R. Pufall and A. B. Kos, J. Appl. Phys. **109**, 073910 (2011)
- [5] W. Wernsdorfer, E. Bonet Orozco, K. Hasselbach, A. Benoit, B. Barbara, N. Demoncy, A. Loiseau, H. Pascard and D. Mailly, Phys. Rev. Lett. **78**, 1791-1794 (1997)
- [6] J. Kurkijärvi, Phys. Rev. B **6**, 932-935 (1972)
- [7] J. B. C. Engelen, M. Delalande, A. J. le Fèvre, T. Bolhuis, T. Shimatsu, N. Kikuchi, L. Abelman and J. C. Lodder, Nanotechnology **21**, 035703 (2010)
- [8] V. Kamerský, P. de Haan, J. Šimšovič, S. Porthun, R. Gemperle and J. C. Lodder, J. Magn. Magn. Mater. **157/158**, 301-302 (1996)
- [9] Z. Li and S. Zhang, Phys. Rev. B **69**, 134416 (2004)
- [10] R. H. Victora, Phys. Rev. Lett. **89**, 457-460 (1989)
- [11] J. J. M. Ruigrok, R. Coehoorn, S. R. Cumpson and H. W. Kesteren, J. Appl. Phys. **87**, 5389-5403 (2000)
- [12] A. Lyberatos and K. Guslienko, J. Appl. Phys. **94**, 1119-1129 (2003)
- [13] H. J. Richter, J. Phys. D : Appl. Phys. **40**, R149-R177(2007)
- [14] J. C. Suits, D. Rugar and C. J. Lin, J. Appl. Phys. **64**, 252-261 (1988)
- [15] F. J. A. M. Greidanus, W. B. Zeper, F. J. A. den Broeder, W. F. Godlieb and P. F. Carcia, Appl. Phys. Lett. **54**, 6267-6269 (1996)
- [16] E. P. Sajitha, J. Walowski, D. Watanabe, S. Mizukami, F. Wu, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando and T. Miyazaki, IEEE Trans. Magn. **46**, 2056-2059 (2010)
- [17] M. Nakayama, T. Kai, N. Shimomura, M. Amano, E. Kitagawa, T. Nagase, M. Yoshikawa, T. Kishi, S. Ikegawa and H. Yoda, J. Appl. Phys. **103**, 07A710 (2008)
- [18] I. Theodonis, A. Kalitsov, N. Kioussis, M. Chshiev and W. H. Butler, Phys. Rev. Lett. **97**, 237205 (2006)
- [19] M. Chshiev, I. Theodonis, A. Kalitsov, N. Kioussis and W. H. Butler, IEEE Trans. Magn. **44**, 2543-2546 (2008)

- [20] A. Kalitsov, M. Chshiev, I. Theodonis, N. Kioussis and W. H. Butler, *Phys. Rev. B* **79**, 174416 (2009)
- [21] S. Ikeda, K. Miura, H. Yamamoto, K. Mizunuma, H. D. Gan, M. Endo, S. Kanai, J. Hayakawa, F. Matsukura and H. Ohno, *Nature Mater.* **9**, 721-724 (2010)
- [22] D. C. Worledge, G. Hu, D. W. Abraham, J. Z. Sun, P. L. Trouilloud, J. Nowak, S. Brown, M. C. Gaidis, E. J. O'Sullivan and R. P. Robertazzi, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 022501 (2011)
- [23] M. Pakala, Y. Huai, T. Valet, Y. Ding and Z. Diao, *J. Appl. Phys.* **98**, 056107 (2005)
- [24] S. C. Oh, S. Park, A. Manchon, M. Chshiev, J. Han, H. Lee, J. Lee, K. Nam, Y. Jo, Y. Kong, B. Dieny and K.-J. Lee, *Nature Phys.* **5**, 898-902 (2009)
- [25] L. E. Nistor, Thèse, Université Joseph Fourier, Grenoble (2011)

# Conclusion et perspectives

Ces travaux de thèse s'inscrivent dans le contexte du stockage de l'information au moyen de mémoires magnétorésistives à accès direct. L'augmentation de la densité de stockage des données passe par la réduction de la taille latérale des points mémoires. Cette réduction ne doit pas se faire au détriment de la rétention de l'information. Ceci nécessite une augmentation de l'anisotropie des matériaux utilisés pour compenser la perte de volume. Les matériaux à aimantation perpendiculaire sont idéaux de ce point de vue. Cependant, cette augmentation d'anisotropie va nécessiter également une augmentation de l'énergie nécessaire à l'écriture d'un point mémoire. Pour contourner ce problème, une approche originale a été proposée par le laboratoire SPINTEC et est développée dans cette thèse. Elle consiste à utiliser une assistance thermique lors de l'écriture. Il est alors possible d'obtenir des cellules mémoires présentant à la fois une forte stabilité thermique sur la gamme de température de fonctionnement, et une faible consommation à la température d'écriture.

Pour réaliser un tel dispositif, plusieurs étapes clés ont été abordées dans cette thèse. En premier lieu, il a été nécessaire de développer et d'optimiser des matériaux présentant une forte anisotropie perpendiculaire. Ces matériaux sont les multicouches (Co/Pt) et (Co/Pd) et les alliages ferrimagnétiques TbCo. Ensuite, il a été nécessaire d'adapter ces matériaux afin d'obtenir des jonctions tunnel magnétiques possédant des caractéristiques électriques convenables. L'étude de la variation de l'anisotropie en fonction de la température a été une étape importante pour la fabrication d'électrodes dites "à basculement d'anisotropie", caractéristique essentielle pour l'écriture assistée thermiquement. Enfin, la validité du concept a été démontrée dans le dernier chapitre.

L'étude des multicouches (Co/Pt) et (Co/Pd) a été l'occasion d'approfondir la connaissance de ces systèmes. En particulier, il a été démontré que l'interface inférieure apportait une anisotropie un ordre de grandeur supérieur à celle apportée par l'interface supérieure. L'interdiffusion apparaissant à cette interface peut dégrader l'anisotropie de couches magnétiques lorsque celles-ci sont d'épaisseur inférieure à 1 nm. Cette interdiffusion peut être bloquée par l'insertion d'une fine couche d'un matériau immiscible avec le cobalt comme le cuivre. Il a également été démontré que les multicouches (Co/Pd) présentaient une stabilité au recuit et une anisotropie effective plus importante que les systèmes utilisant du platine.

Le développement de multicouches (Co/Tb) a permis d'obtenir des couches très dures

magnétiquement (champs coercitifs supérieurs à 15 000 Oe). Les caractéristiques de tels matériaux sont très sensibles à la composition, à l'épaisseur et au traitement thermique subit. Leur optimisation doit se faire en prenant en compte tous ces paramètres.

La fabrication de jonctions tunnel magnétiques à partir des matériaux cités précédemment n'est pas aussi évidente qu'elle y paraît de prime abord. En effet, de nombreuses contraintes sont imposées pour obtenir une forte magnétorésistance et une faible résistivité. Un des problèmes rencontrés est le désaccord structural entre les multicouches (Co/Pt) ou (Co/Pd) et la barrière tunnel. Ce problème peut être résolu en insérant une fine couche d'un matériau amorphe tel le tantale entre l'électrode de CoFeB et la multicouche pour réaliser une transition cristallographique tout en gardant un fort couplage magnétique. Dans le dispositif final qui possède des dimensions nanométriques, le couplage dipolaire entre électrodes peut poser un problème important, en particulier parce que les deux états du système ne présenteront pas la même stabilité. L'utilisation de structures antiferromagnétiques synthétiques ou d'alliages ferrimagnétiques à faible aimantation permet de résoudre ce problème.

Le contrôle de la variation de l'anisotropie en fonction de la température est un enjeu majeur pour le concept faisant l'objet de cette thèse. Les lois théoriques développées dans le passé ne peuvent s'appliquer dans notre cas, ce qui est préjudiciable pour le développement des électrodes à basculement d'anisotropie. Bien que la loi gouvernant la variation d'anisotropie en température ne soit pas connue, la connaissance de variables de cette loi permet tout de même d'ajuster la température de basculement d'anisotropie par tâtonnement. La loi d'évolution de l'anisotropie avec la température mériterait d'être étudiée plus en profondeur à la fois théoriquement et expérimentalement, ce qui permettrait de modéliser le système.

Le dernier chapitre a été l'occasion d'étudier les propriétés magnétiques et électriques de jonctions de taille nanométrique. Il a en particulier été démontré que la commutation de l'aimantation de la couche libre se faisait par renversement d'un volume magnétique inférieur au volume physique de la cellule. La stabilité thermique de cette couche a pu être estimée à partir de la probabilité de renversement de l'aimantation sous champ. Enfin, l'intérêt de l'assistance thermique a été démontré, que ce soit pour une écriture par champ magnétique ou par couple de transfert de spin. Dans ce dernier cas, la consommation est inférieure aux systèmes présentés dans la littérature, alors que la structure pourrait encore être optimisée sur de nombreux points. Le potentiel de la méthode d'écriture présentée dans ce manuscrit est encore loin d'être totalement exploité, mais montre pourtant déjà sa supériorité comparé aux méthodes classiques d'écriture par couple de transfert de spin.

Bien que cette méthode d'écriture permette une réduction de la consommation d'écriture, de nombreuses améliorations restent à accomplir pour que ce genre de système ait un avenir industriel. Tout d'abord, les applications MRAM nécessitent une magnéto-

résistance tunnel d'au moins 100% pour que les deux niveaux de résistances puissent être discriminés aisément. Ce problème devrait être résolu en optimisant les matériaux déposés, d'autres équipes ayant obtenu des signaux magnétorésistifs supérieurs à 100% dans des structures similaires à celle présentée dans ce manuscrit. Ensuite, il sera nécessaire d'obtenir des caractéristiques reproductibles entre les différentes jonctions, que ce soit en termes de stabilité, de tension d'écriture, de signal magnétorésistif, de tension de claquage, etc. Enfin, le système à écriture par basculement d'anisotropie ne sera viable que si ses performances compensent le coût de fabrication plus élevé par rapport aux jonctions Ta/CoFeB/MgO/CoFeB/Ta actuellement en plein développement, ou alternativement si le palladium actuellement utilisé est remplacé par un matériau moins onéreux, de l'ordre du prix du tantale. Cependant, malgré ces difficultés, les résultats présentés dans cette thèse ouvrent la voie au développement de nouveaux matériaux fonctionnels permettant d'améliorer encore les performances des mémoires MRAM en termes de capacité de stockage et de consommation.



# Annexe 1 : Fabrication des nanopiliers

La fabrication de nanopiliers est une étape essentielle pour les mesures effectuées dans cette thèse. J'ai réalisé ces nanopiliers à la Plateforme Technologique Amont (PTA) au CEA. Les étapes de fabrications ont été développées par Ricardo Sousa, Laurent Vila et Marie-Thérèse Delaye. Voici le déroulement de la fabrication :

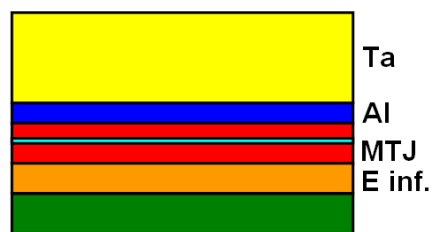


FIGURE 12 – Etape 1 : dépôt par pulvérisation cathodique de l'électrode inférieure de 30 nm de CuN (en orange), puis de la jonction tunnel magnétique (en rouge) puis du masque dur  $\text{Al}_5/\text{Ta}_{170}$  (respectivement en bleu et jaune).

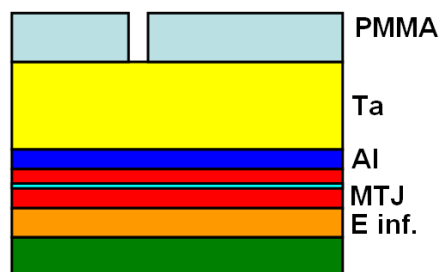


FIGURE 13 – Etape 2 : dépôt de résine positive PMMA à 2% (en bleu ciel), recuite à  $180^\circ\text{C}$  5 minutes puis insolée par lithographie électronique pour définir des piliers de diamètre variant de 50 à 1 000 nm. Cette résine est ensuite développée avec du MIBK dilué pendant 45 s.

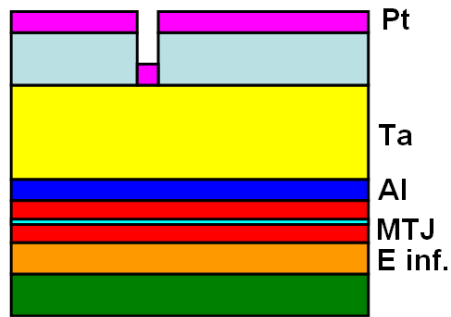


FIGURE 14 – Etape 3 : dépôt de 20 nm de platine (en rose) par évaporation.

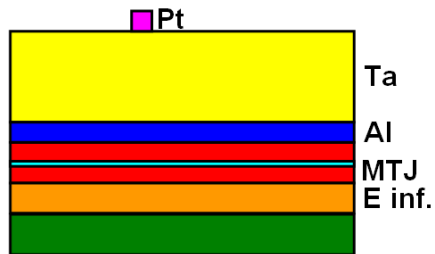


FIGURE 15 – Etape 4 : délaquage de la résine restante dans un bain d'acétone et ultrasons. Seul le platine s'étant déposé dans les trous laissés dans la résine précédemment reste sur la plaque.

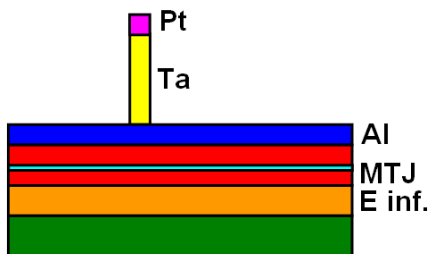


FIGURE 16 – Etape 5 : gravure réactive ionique du masque dur de tantale. Les parties recouvertes de platine ne sont pas attaquées.



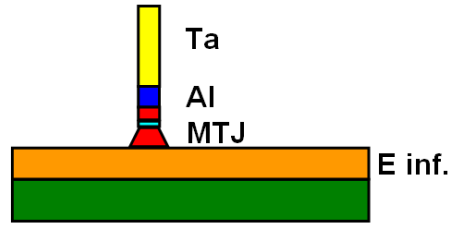


FIGURE 17 – Etape 6 : gravure par faisceau d'ion des piliers de la jonction tunnel magnétique. Le plasma a une puissance de 250 W, la gravure se fait sous angle à  $45^\circ$ , le porte substrat étant mis en rotation. La base du piliers obtenu a une forme conique.

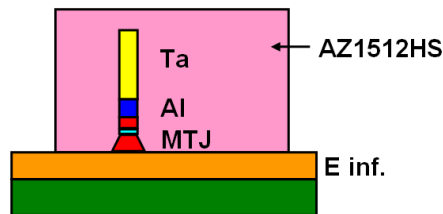


FIGURE 18 – Etape 7 : dépôt de résine positive AZ1512HS (rose clair) recuite à  $100^\circ\text{C}$  1 minute 30 s, puis lithographie optique permettant de définir l'électrode inférieure, puis développement à l'AZ développeur, et enfin recuit de la résine restante 2 minutes à  $120^\circ\text{C}$ .

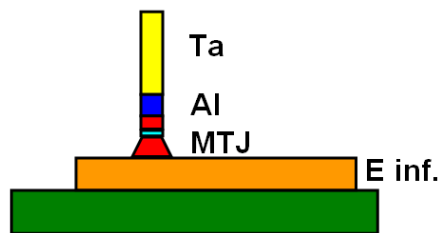


FIGURE 19 – Etape 8 : gravure par faisceau d'ion de l'électrode inférieure jusqu'au substrat de silicium. La partie recouverte de résine est protégée de la gravure par la résine. Cette résine résiduelle est ensuite retirée par une gravure ionique réactive en plasma d'oxygène et un bain d'acétone et ultrasons.

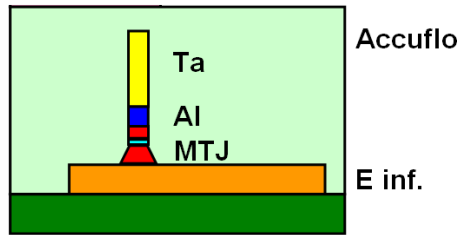


FIGURE 20 – Etape 9 : dépôt de 400 nm du polymère planarisant et isolant Accuflo (vert clair). Ce polymère va servir à isoler l'électrode supérieure et l'électrode inférieure. Il est déposé sur un promoteur d'adhérence, puis recuit à 250°C 10 minutes.

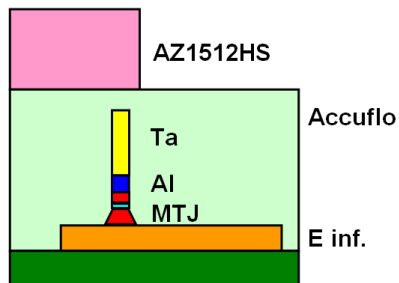


FIGURE 21 – Etape 10 : dépôt de résine positive AZ1512HS (rose clair) recuite à 100°C 1 minute 30 s, puis lithographie optique permettant de définir une zone d'isolation autour du pilier, puis développement à l'AZ développeur.

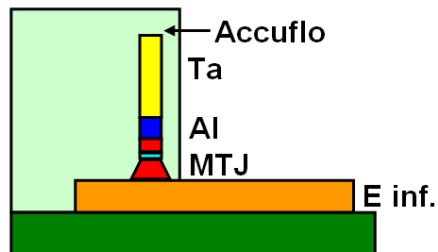


FIGURE 22 – Etape 11 : gravure ionique réactive en plasma d'oxygène du polymère isolant, puis délaquage de la résine résiduelle dans un bain d'acétone et ultrasons.

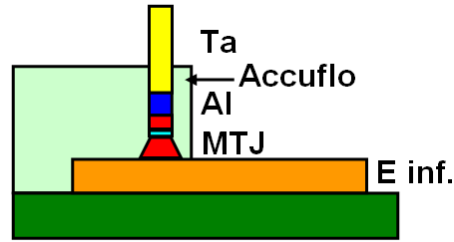


FIGURE 23 – Etape 12 : Amincissement par gravure ionique réactive en plasma d'oxygène de l'accuflo à une épaisseur de 90 à 130 nm pour faire sortir le pilier de tantale.

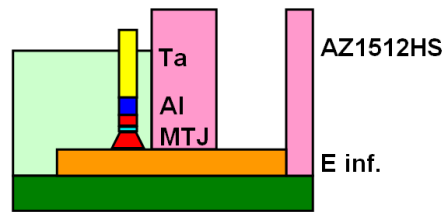


FIGURE 24 – Etape 13 : dépôt de résine positive AZ1512HS (rose clair) recuite à 100°C 1 minute 30 s, puis lithographie optique permettant de définir l'électrode supérieure, puis développement à l'AZ développeur.

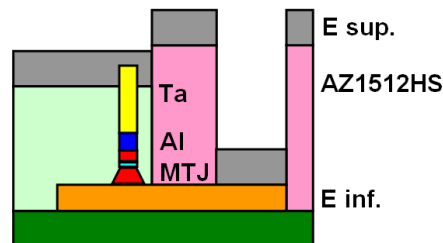


FIGURE 25 – Etape 14 : dépôt de l'électrode supérieure Cr/Al par évaporation.

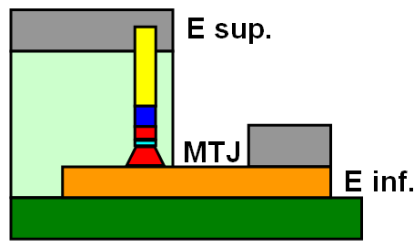


FIGURE 26 – Etape 15 : délaquage de la résine résiduelle dans un bain d’acétone et ultrasons.

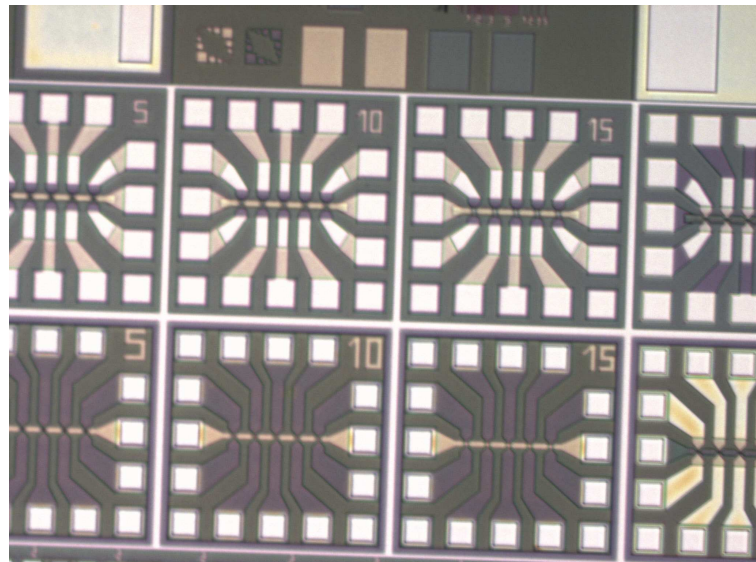


FIGURE 27 – Vue au microscope optique des puces de test. Il y a 5 jonctions par puce.

## Annexe 2 : Conversion des unités cgs en unités SI

grandeur physique	symbole	C.G.S.	S.I
champ magnétique	H	1 Oe	$10^3 \text{ A.m}^{-1}$
induction magnétique	B	1 G	$10^{-4} \text{ T}$
aimantation	M	$1 \text{ emu.cm}^{-3}$	$10^3 \text{ A.m}^{-1}$
moment magnétique	$\mu$	1 emu	$10^{-3} \text{ A.m}^2$
énergie volumique	$K_V$	$1 \text{ erg.cm}^{-3}$	$10^{-1} \text{ J.m}^{-3}$
énergie surfacique	$K_S$	$1 \text{ erg.cm}^{-2}$	$10^{-3} \text{ J.m}^{-2}$
énergie d'échange	A	$1 \text{ erg.cm}^{-1}$	$10^{-5} \text{ J.m}^{-1}$
énergie	E	1 erg	$10^{-7} \text{ J}$



# Résumé

---

Dans le cadre de l'augmentation de la densité de stockage des mémoires magnéto-résistives à accès direct (MRAM), les matériaux à anisotropie magnétique perpendiculaire sont particulièrement intéressants car ils possèdent une très forte anisotropie. Cependant, cette augmentation d'anisotropie induit également un accroissement de la consommation d'écriture. Un nouveau concept d'écriture assistée thermiquement a été proposé par le laboratoire SPINTEC. Le principe est de concevoir une structure très stable à température ambiante, mais qui perd son anisotropie lorsqu'elle est chauffée, facilitant ainsi l'écriture. Le but de cette thèse est de valider expérimentalement ce concept.

Les premiers chapitres sont consacrés à l'optimisation des matériaux à anisotropie perpendiculaire que sont les multicouches (Co/Pt), (Co/Pd) et (Co/Tb). Leur intégration dans une jonction tunnel magnétique est ensuite présentée. L'évolution de l'anisotropie en température, paramètre crucial au bon fonctionnement de l'assistance thermique, a également été étudiée. Enfin, il est démontré que l'écriture thermiquement assistée est particulièrement efficace : les structures développées présentent une consommation d'écriture réduite par rapport aux structures classiques et une forte stabilité à température ambiante.

**Mots clés** : électronique de spin, jonction tunnel magnétique, anisotropie magnétique perpendiculaire, MRAM, couple de transfert de spin, retournement assistée thermiquement.

## Abstract

---

In order to increase the storage density of magnetoresistive random access memories (MRAM), magnetic materials with perpendicular anisotropy are very appealing thanks to high anisotropy. However, the enhancement of anisotropy induces an increase of writing consumption as well. A new thermally assisted switching concept has been proposed by SPINTEC laboratory. The principle is to design a highly stable structure at stand-by temperature which loses its anisotropy when heated, making thus the switching easier. The aim of this thesis is to validate experimentally this concept.

The first chapters describe the optimisation of out-of-plane magnetic materials such as (Co/Pt), (Co/Pd) and (Co/Tb) multilayers. Their integration in magnetic tunnel junctions is then presented. The evolution of anisotropy with temperature is a critical parameter for thermally assisted writing and has been therefore studied. Finally, the efficiency of this thermally assisted writing is demonstrated : the developed structures present a reduced consumption compared to standard structures and high stability at room temperature.

**Keywords** : spintronics, magnetic tunnel junction, perpendicular magnetic anisotropy, MRAM, spin transfer torque, thermally assisted switching.