

**THESE**

présentée pour l'obtention du titre de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ LOUIS PASTEUR DE  
STRASBOURG**

Spécialité : Physique de la matière condensée

par

**Adrian IOVAN**

---

***ELABORATION ET CARACTERISATION DE JONCTIONS TUNNEL A  
PLUSIEURS BARRIERES POUR L'INTEGRATION DANS UNE NOUVELLE  
GENERATION DE MEMOIRES MAGNETIQUES***

---

Soutenue : le 10 septembre 2004

devant la commission d'examen :

<b>A. Dinia</b>	<b>Rapporteur interne</b>
<b>A. Schuhl</b>	<b>Rapporteur externe</b>
<b>J.F. Bobo</b>	<b>Rapporteur externe</b>
K. Ounadjela	Directeur de thèse
D. Stoeffler	Co-directeur de thèse



## Remerciements

*Le travail présenté dans ce mémoire de thèse a été réalisé à l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg (IPCMS), au sein du Groupe d'Etude des Matériaux Métalliques (GEMM) ainsi que dans le laboratoire de recherche Siemens à Erlangen.*

*Un grand merci à Daniel Stoeffler, qui a suivi mon activité de recherche pendant ces années passées à Strasbourg, pour ses conseils scientifiques et pour l'agréable climat de travail. Je n'oublierai pas le grand soutien moral que j'ai eu de sa part pendant toutes ces années et particulièrement la dernière partie de la thèse. Il a eu la tranquillité (heureusement !) de lire ce manuscrit et de faire un travail de correction impressionnant en ce qui concerne la langue.*

*Je remercie tout particulièrement Victor Da Costa pour son savoir faire expérimental et les conseils scientifiques qu'il a partagé avec moi durant tout ce travail de thèse. Nous avons échangé beaucoup d'idées en physique et nous avons toujours réussi à nous mettre d'accord. J'ai aussi beaucoup apprécié son travail de correction du manuscrit. J'ai partagé vraiment de bons moments avec lui comme collègue et comme un ami.*

*Je remercie également Yves Henry pour la rigueur des mesures que nous avons faites ensemble et pour avoir partagé son savoir faire avec moi. J'ai vraiment apprécié les conseils scientifiques et les échanges d'idées que nous avons eu pendant ses années.*

*Je remercie également Mairbeck Chshiev (même si je n'ai pas compris tous ses calculs) pour avoir su partager avec nous ses idées physiques et l'importance de ces formules.*

*Je remercie aussi Kamel Ounadjela pour m'avoir offert la possibilité de réaliser cette thèse sur un sujet de thèse vraiment intéressant.*

*Je tiens à remercier Messieurs Aziz Dinia, Alain Schuhl et Jean Francois Bobo d'avoir accepté de rapporter ce mémoire et de participer au jury de ma thèse.*

*Je remercie également Coriolan Tiusan, qui a eu un rôle déterminant durant la première année de ma thèse pour m'avoir permis de bien comprendre le sujet de mon étude et pour avoir su me transmettre ses compétences scientifiques acquises pendant sa thèse.*

*Je n'oublie pas de remercier Theodoros Dimopoulos pour son aide précieuse lors de mon apprentissage de la lithographie.*

*J'adresse mes respectueux remerciements à François Bardou pour l'intérêt qu'il a porté à mon travail.*

*Je tiens également à remercier Christian Mény et Manu Acosta, pour la bonne collaboration que nous avons eu pendant ces années de thèse sur l'installation de dépôt cathodique.*

*Les images MET ont été obtenues avec l'aide de Gaby Ehret et l'amincissement des échantillons a été réalisé par Gérard Wurtz.*

*Je remercie Ludwig Bäer de Siemens à Erlangen qui m'a aidé à apprendre les techniques de la lithographie et a partagé tout son savoir-faire dans ce domaine.*

*Je remercie Joachim Wecker et Joachim Bangert de Siemens à Erlangen pour m'avoir donné la possibilité d'utiliser les techniques expérimentales de Siemens.*

*Ce travail de thèse a été soutenu financièrement par le Programme Européen NanoMEM (IST-1999-13741).*

*Je tiens à remercier tous ceux qui m'ont aidé et que j'ai rencontré au sein de ce laboratoire ; chacun avec un petit mot, un sourire ou un conseil ont contribué à une très bonne ambiance durant ces années de thèse. Grand merci à tous!*

## Table de matière

<i>Introduction générale</i> .....	1
<b>Chapitre 1 : Transport tunnel dans les structures à deux barrières : généralités</b> .....	<b>7</b>
1.1 Effet tunnel à travers une barrière isolante .....	7
1.2 Magnéto-résistance "tunnel" .....	10
1.3 Transport dans les barrières tunnel asymétriques.....	13
1.4 Rapport de rectification avec des jonctions tunnel à une et à deux barrières.....	15
1.5 Modèles de transport dans une jonction à deux barrières tunnel.....	18
1.5.1 Modèle de calcul du courant polarisé en spin pour une jonction tunnel à deux barrières soumise à un champ électrique.....	18
1.5.2 Transport par électrons "chauds" .....	23
1.5.3 Transport via les états discrets de la couche métallique intermédiaire .....	28
1.5.4 Transport avec blocage de Coulomb dans une structure à deux barrières .....	30
1.6 Transport dans les jonctions tunnel à deux barrières: état de l'art expérimental.....	32
1.7 Applications des jonctions tunnel.....	36
1.7.1 Mémoires magnétiques MRAM à base de JTM.....	36
1.7.2 Diode métal/isolant (MID) à base de barrières tunnel .....	38
1.7.3 Dispositif RAMMID .....	39
Conclusions .....	42
<b>Chapitre 2 : Techniques d'élaboration et de caractérisation des jonctions tunnel à deux barrières</b> .....	<b>45</b>
2.1 Techniques d'élaboration.....	45
2.1.1 La Technique de dépôt cathodique.....	45
2.1.2 Photolithographie : fabrication des jonctions tunnel.....	49
2.2 Techniques de caractérisation .....	52
2.2.1 Microscopie à force atomique (AFM).....	52
2.2.2 Mesures magnétiques: AGFM (Alternating Gradient Field Magnetometry).....	54
2.2.3 Microscopie électronique en transmission .....	55
2.2.4 Mesures de transport .....	57
<b>Chapitre 3 : Etude expérimentale de la diode MIMIM</b> .....	<b>61</b>
3.1 Choix de la structure et des matériaux de la diode MIMIM .....	61
3.2 Transport dans les systèmes à deux barrières avec une couche intermédiaire de Cu.....	63
3.2.1 Etude statistique du transport dans un système à deux barrières avec une couche intermédiaire de Cu .....	65
3.2.2 Asymétrie en courant dans les structures à deux barrières avec une couche intermédiaire de Cuivre .....	70

3.2.3 Étude en température de structure à deux barrières avec une couche intermédiaire de Cuivre .....	72
3.2.4 Interprétation possible des résultats .....	77
<i>3.3 Elaboration et caractérisation structurale des structures à deux barrières avec une couche intermédiaire d'aluminium.....</i>	<i>80</i>
3.3.1 Etude statistique du transport dans les systèmes à deux barrières avec une couche intermédiaire d'aluminium .....	82
3.3.2 Forte asymétrie dans les jonctions à deux barrières avec une couche intermédiaire d'aluminium .....	87
3.3.3 Etude en température de structures à deux barrières avec une couche intermédiaire d'aluminium .....	89
3.3.4 Interprétation possible des résultats pour une couche intermédiaire d'aluminium .....	93
<i>Conclusions .....</i>	<i>95</i>
<b>Chapitre 4 : Intégration de la diode MIMIM dans une structure RAMMID .....</b>	<b>99</b>
4.1 <i>Elaboration de la fonction mémoire RAM .....</i>	99
4.1.1 Propriétés magnétiques de la couche "dure" .....	99
4.1.2 Propriétés magnétiques de la couche "douce" dans la RAMMID.....	103
4.1.3 Qualité de la barrière tunnel et optimisation de la résistance de la RAM .....	104
4.2 <i>Elaboration de la fonction blocage : MID (Metal Insulator Diode).....</i>	<i>106</i>
4.3 <i>Elaboration d'une unité de mémoire RAMMID.....</i>	<i>108</i>
4.3.1 RAM-MID avec contacts macroscopiques et mesures de transport .....	108
4.3.2 Simulation de la RAM - MID (comportement série) .....	111
4.3.3 Système RAMMID intégré .....	115
4.3.4 Interprétation possible du comportement d'une RAMMID intégrée .....	119
4.3.5 Vision d'ensemble du comportement des systèmes RAMMID intégrés .....	122
<i>Conclusions .....</i>	<i>125</i>
<b>Chapitre 5 : Conclusion générale.....</b>	<b>129</b>
<b>Perspectives.....</b>	<b>135</b>
<b>Annexe : Autres types de couche intermédiaire pour la MIMIM .....</b>	<b>141</b>
<b>Références .....</b>	<b>147</b>





## Introduction générale

Après la découverte d'une grande magnéto-résistance tunnel (MRT) dans les jonctions tunnel magnétiques (JTM) à température ambiante <sup>[Miyazaki\_JMMM\_95], [Moodera\_PRL\_95]</sup>, beaucoup d'applications potentielles basées sur le transport polarisé en spin à travers une barrière isolante mince située entre deux électrodes constituées de métaux ferromagnétiques ont émergé. La magnéto-résistance tunnel est la variation relative de la résistance de la jonction lorsque l'aimantation d'une seule électrode métallique bascule dans un champ magnétique extérieur. Les derniers résultats en date montrent une MRT de presque 60 % à la température ambiante <sup>[Tsunoda\_APL\_02]</sup> et sont très prometteurs, en particulier, pour l'utilisation des jonctions tunnel au sein de mémoires magnétiques à accès aléatoire (MRAM) où les deux bits 0 et 1 correspondent aux deux états de résistances extrêmes. Cependant, les MRAM actuellement proposées, qui incorporent des jonctions tunnel magnétiques, nécessitent d'ajouter un commutateur semi-conducteur (un transistor CMOS ou une jonction *PN*) en série avec la cellule mémoire (JTM). En effet, dans une matrice de JTM, il faut supprimer (ou bloquer) les courants parasites provenant des autres éléments lors de la lecture de l'état d'un élément donné. Cependant, ce procédé est pénalisé par la difficulté technologique de combiner une partie semi-conductrice, où la conduction se fait dans une géométrie planaire, et une partie métal/oxyde. Un des moyens de contourner cette difficulté d'intégration est d'introduire une diode à base de multicouches métal/isolant. Ainsi, dans ce cas, on peut fabriquer des diodes avec la même taille latérale que les jonctions magnétiques ce qui va conduire à une augmentation de la densité de stockage de la MRAM.

Dans ce travail de thèse l'effet tunnel est utilisé pour réaliser différents dispositifs électroniques. En effet, utilisant plusieurs multicouches métal/isolant, il est possible de construire différents dispositifs électroniques et, chose remarquable, nous montrons qu'il est possible de réaliser un élément MRAM sans semi-conducteur. Un de nos objectifs est de pouvoir introduire le magnétisme dans les nouveaux dispositifs électroniques afin de tirer avantage de la propriété de non-volatilité de l'élément magnétique. Ainsi on peut envisager de réaliser des mémoires magnétiques à accès aléatoire utilisant des multicouches métal/isolant sans semi-conducteur.

L'enjeu principal de la réalisation de ce nouveau type d'unité de mémoire est la réduction de la dimensionnalité du système:

*"The size of an MRAM cell depends on a number of factors, including the dimensions of all the components in the cell and their interconnections in addition to the control line geometry, all of which determine the maximum packing density of the circuit. MRAM technology currently under development by several groups including major US and Japanese industry research groups adds an additional semiconductor switch in series with the memory cell to suppress parasitic signal paths. The IBM group has recently demonstrated the limits imposed by this solution. Integrating silicon p-n junctions with sub-micron MJT produces a system whose packing density is dominated not by the active memory cell size but by the 500nm minimum dimension needed by the lithographic technology to integrate the silicon sub-systems. This severely limits the potential of such systems for use in high capacity storage. NanoMEM includes two innovations to address this issue: the MIMRAM (patent of Siemens) and the TTRAM (patent of UHP and ULP)"<sup>1</sup>*

Le manuscrit est structuré en cinq chapitres et les conclusions sont présentées à la fin de chaque chapitre.

*Chapitre 1.* Dans ce premier chapitre, nous introduisons la problématique des dispositifs que nous avons étudié pendant ce travail de thèse. Les modèles décrits permettent de discuter les différents problèmes physiques qui sont posés dans une structure à deux barrières et de démontrer l'avantage du point de vue électronique que l'on peut retirer de la réalisation d'une structure à deux barrières en comparaison avec une structure à une seule barrière. Une courte revue des études expérimentales déjà menées sur les structures à deux barrières est présentée. Pour finir, les applications directes de structures à deux barrières sont abordées et les objectifs principaux de ce travail sont présentés.

*Chapitre 2.* Les techniques expérimentales utilisées pour l'élaboration des jonctions ainsi que celles utilisées pour l'analyse des échantillons sont sommairement décrites dans ce chapitre.

---

<sup>1</sup>Extrait du projet nanoMEM : [http://www.nanomem.u-nancy.fr/Non\\_volatile\\_memory.asp](http://www.nanomem.u-nancy.fr/Non_volatile_memory.asp)

*Chapitre 3.* Ce chapitre, qui est le chapitre principal de la thèse, est focalisé sur l'élaboration d'une structure à deux barrières asymétriques avec l'objectif d'obtenir une caractéristique de type diode à l'aide de multicouches métal-isolant (MIMIM). Le rôle essentiel joué par la couche intermédiaire, et plus particulièrement sa croissance et son épaisseur, sur les propriétés de transport est discuté. Les mesures de transport effectuées montrent qu'une structure à deux barrières avec une couche d'aluminium comme couche intermédiaire possède une asymétrie beaucoup plus grande que si elle est constituée de cuivre. L'interprétation des résultats est présentée à la fin du chapitre.

*Chapitre 4.* Ce chapitre traite de l'intégration de la diode MID (Metal Insulator Diode) ainsi obtenue en série avec une jonction tunnel magnétique (RAM) pour réaliser une unité de mémoire RAMMID. Dans un premier temps les éléments réalisés à l'aide de contacts macroscopiques entre RAM et MID et les simulations démontrent le fonctionnement d'une telle unité de mémoire magnétique MRAM. Dans un second temps l'élaboration de l'élément intégré a été réalisée et nous avons mesuré à la fois des caractéristiques asymétriques et de la magnétorésistance dans le même dispositif. Les difficultés d'intégration et des solutions possibles pour les contourner sont décrites à la fin du chapitre.

*Chapitre 5.* La conclusion générale de cette étude est présentée dans ce dernier chapitre suivi des perspectives.



## **Chapitre 1**

# **Transport tunnel dans les structures à deux barrières : généralités**



# Chapitre 1 : Transport tunnel dans les structures à deux barrières : généralités

## barrières : généralités

### 1.1 Effet tunnel à travers une barrière isolante

Le transport par effet tunnel est certainement l'un des processus de transmission "quantique" les plus étudiés. Le terme "effet tunnel" se rapporte au transport classiquement interdit d'une particule quantique à travers une région dans laquelle l'énergie de la particule est inférieure à la valeur du potentiel. Ce processus est illustré dans la figure 1.1.1 pour une particule d'énergie  $E$  traversant une barrière de potentiel de forme arbitraire et de hauteur supérieure à  $E$  dans un domaine fini. En mécanique classique, cette particule est complètement réfléchiée et ne peut pas franchir la barrière sans excitations thermiques. Par contre, en mécanique quantique, la probabilité de transmission est non nulle. En effet, l'équation qui gouverne le mouvement de la particule est l'équation de Schrödinger dans laquelle le potentiel peut être vu comme l'analogue électrodynamique d'une permittivité variant spatialement. En électrodynamique, la solution de l'équation d'onde doit satisfaire des conditions aux limites aux interfaces abruptes entre deux diélectriques de permittivités différentes. Ces conditions aux limites vont faire la liaison entre l'onde incidente, l'onde transmise et l'onde réfléchiée. De façon analogue, en mécanique quantique, la fonction d'onde et ces dérivées doivent satisfaire des conditions de continuité entre deux régions d'énergies potentielles différentes, et ces conditions vont faire la liaison entre les

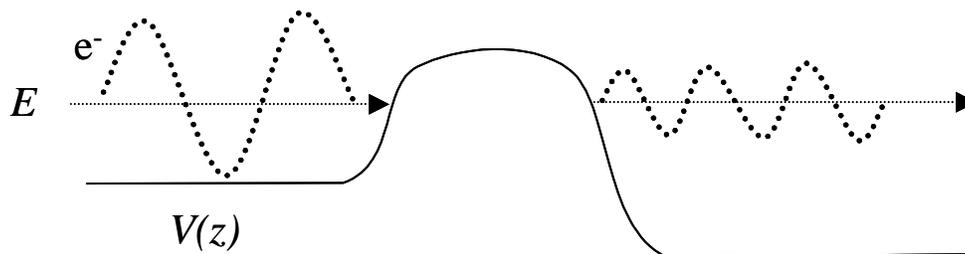
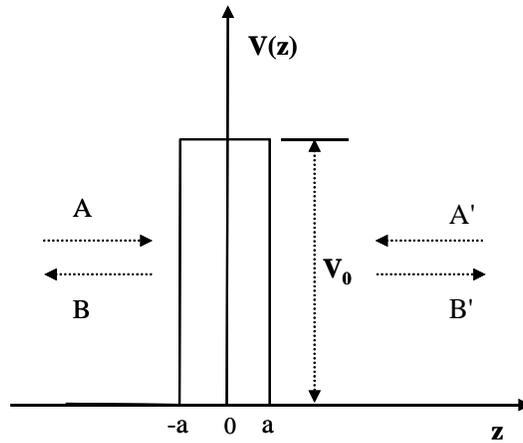


Figure 1.1.1 Effet tunnel à travers une barrière arbitraire <sup>[Ferry\_TN]</sup>.

fonctions d'onde incidente, transmise et réfléchi. Dans la figure 1.1.1 est représentée la fonction d'onde associée à une particule qui se propage de la gauche vers la droite. Puisque le carré du module de la fonction d'onde représente la densité de probabilité de trouver la particule dans une portion d'espace donnée, une particule incidente sur une barrière de potentiel a une probabilité finie de traverser cette barrière et de continuer sa propagation de l'autre côté de la barrière.

Dans le cas de barrières de forme simple <sup>[Ferry\_TN]</sup>, on peut calculer de façon analytique la transmission par effet tunnel à travers la barrière en utilisant le modèle des électrons libres où les électrons sont considérés comme étant libres c'est à dire qu'ils sont décrits par une onde plane en dehors de la région du potentiel mais ayant une masse effective différente pour les métaux et les isolants.

Le cas le plus simple est celui d'une barrière constante (ou rectangulaire) représentée dans la figure 1.1.2 :



**Figure 1.1.2** Cas simple d'une barrière constante (ou rectangulaire) <sup>[Ferry\_TN]</sup>.

La fonction d'onde des électrons est décrite par juxtaposition de trois fonctions (une par région):

$$\psi(z) = \begin{cases} Ae^{ikz} + Be^{-ikz}, & z < -a & \text{à gauche de la barrière} \\ Ce^{\gamma z} + De^{-\gamma z}, & -a < z < a & \text{dans la barrière} \\ A'e^{ikz} + B'e^{-ikz}, & z > a & \text{à droite de la barrière} \end{cases}$$

où  $k$  est  $\gamma$  sont les vecteurs d'onde correspondant aux électrons dans la région considérée:

$$k = \frac{\sqrt{2m^* E}}{\hbar}, \gamma = \frac{\sqrt{2m^* (V_0 - E)}}{\hbar}.$$

Les conditions de continuité pour la fonction d'onde et de sa dérivée relient les coefficients (A, B) et (A', B') par la relation matricielle:

$$\begin{bmatrix} A \\ B \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A' \\ B' \end{bmatrix}.$$

Si on considère une fonction d'onde qui vient de la gauche avec une amplitude A et qui est transmise avec une amplitude A', on peut écrire le flux incident  $f_{inc}$  sur la barrière et le flux transmis  $f_{trans}$  comme :

$$f_{inc} = |A|^2 \frac{\hbar k}{m^*} = v |A|^2, f_{trans} = |A'|^2 \frac{\hbar k}{m^*} = v |A'|^2, \text{ ou } v \text{ est une constante.}$$

Le facteur de transmission de la barrière est le rapport entre le flux transmis et le flux incident:

$$T(E) = \frac{f_{trans}}{f_{inc}} = \frac{|A'|^2}{|A|^2} = \frac{1}{|M_{11}|^2},$$

et dans le cas d'une barrière rectangulaire on obtient:

$$T(E) = \frac{1}{1 + \left( \frac{k^2 + \gamma^2}{2k\gamma} \right)^2 \sinh^2(2\gamma a)},$$

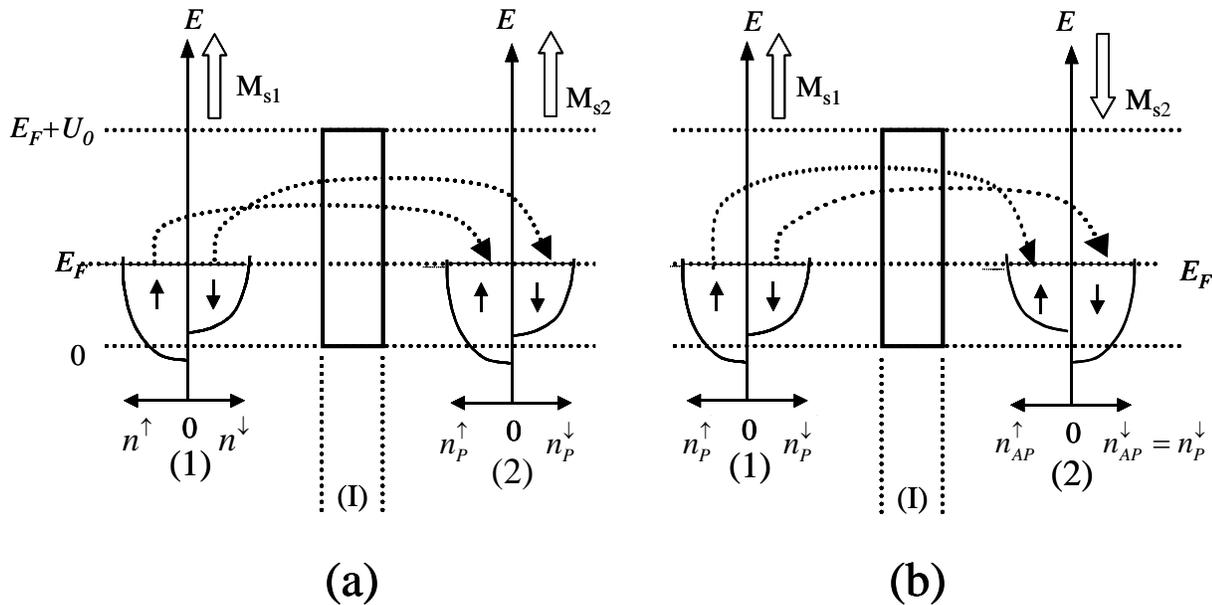
Dans la limite où  $2\gamma a \gg 1$ , on obtient:

$$T(E) \propto \exp\left(-\frac{2w}{\hbar} \sqrt{2m^* (V_0 - E)}\right).$$

Cette expression est celle qui est la plus utilisée pour décrire la transmission par effet tunnel à travers une couche mince isolante c'est à dire que la probabilité de transmission tunnel décroît exponentiellement avec l'épaisseur ( $w = 2a$ ) de la barrière et avec la racine carrée de la hauteur de la barrière ( $V_0 - E$ ) vue par la particule.

## 1.2 Magnétorésistance "tunnel"

Une jonction "tunnel" magnétique consiste en deux électrodes ferromagnétiques ((1) et (2) d'aimantations respectives  $\overline{M}_{s1}$  et  $\overline{M}_{s2}$ ) séparées par une couche fine d'isolant faisant office de barrière pour l'effet tunnel. Pour simplifier, nous allons considérer le courant "tunnel" traversant cette jonction en supposant que l'isolant forme une barrière rectangulaire de hauteur  $U_0$  et d'épaisseur  $w$ . L'application d'une tension  $V$  entre l'électrode (2) et (1) donne naissance à un courant résultant du transport par effet tunnel. Pour des électrodes ferromagnétiques, dans le modèle à deux courants, il y a un courant associé à chaque spin des électrons [Jullière\_PL\_75] : un qui correspond au spin majoritaire de l'électrode émettrice et l'autre qui correspond aux spin minoritaire.



**Figure 1.2.1** Schéma du transport dans une jonction tunnel magnétique constituée de deux électrodes ferromagnétiques (1) et (2) séparées par une couche isolante (I): (a) configuration parallèle et (b) configuration antiparallèle.

L'utilisation d'électrodes ferromagnétiques introduit une magnétorésistance qui est la variation du courant en fonction du champ magnétique extérieur agissant sur l'orientation relative des aimantations  $\overline{M}_{s1}$  et  $\overline{M}_{s2}$ .

L'effet de magnétorésistance peut être simplement compris en considérant le modèle le plus simple pour une jonction ferromagnétique soumise à une faible tension ( $V \approx 0$ ) appliquée. Dans la figure 1.2.1. sont représentés schématiquement les deux courants de spin et la structure électronique dans le modèle des électrons libres des électrodes selon l'orientation relative des aimantations. Les électrons de conduction ont une énergie approximativement égale à l'énergie Fermi<sup>2</sup> ( $E_F$ ) et on suppose qu'ils traversent la barrière en conservant leur spin. Donc, dans le cas où les aimantations de ces deux électrodes sont parallèles (P), la conductance électrique de cette jonction magnétique est approximativement donnée par:

$$\sigma_T^P \propto \exp(-WU_0^{1/2})[n_1^\uparrow(E_F)n_2^\uparrow(E_F + eV) + n_1^\downarrow(E_F)n_2^\downarrow(E_F + eV)],$$

où le terme exponentiel correspond à la probabilité de transmission des électrons par effet tunnel,  $W = (2\pi w/h)(2m)^{1/2}$  et  $n_i^\uparrow$  et  $n_i^\downarrow$  sont les densités d'états de l'électrode  $i$  pour les deux directions de spin dans la configuration P. Pour le cas antiparallèle (AP), où l'aimantation  $\overline{M}_{s2}$  est renversée, les électrons avec le spin  $\uparrow$  vont traverser la barrière de la bande majoritaire de l'électrode (1) vers la bande minoritaire de l'électrode (2) et les électrons avec le spin  $\downarrow$  de la bande minoritaire de l'électrode (1) vont aller vers la bande majoritaire de l'électrode (2). Dans ce cas, la conductance est approximativement donnée par :

$$\sigma_T^{AP} \propto \exp(-WU_0^{1/2})[n_1^\uparrow(E_F)n_2^\downarrow(E_F + eV) + n_1^\downarrow(E_F)n_2^\uparrow(E_F + eV)],$$

Finalement la magnétorésistance "tunnel" est donnée par:

$$MRT = \frac{(\sigma_T^P - \sigma_T^{AP})}{\sigma_T^P} = \frac{2(n_1^\uparrow - n_1^\downarrow)(n_2^\uparrow - n_2^\downarrow)}{(n_1^\uparrow n_2^\downarrow + n_1^\downarrow n_2^\uparrow)} = \frac{2 P_1 P_2}{(1 - P_1 P_2)},$$

où  $P_i = \frac{(n_i^\uparrow - n_i^\downarrow)}{(n_i^\uparrow + n_i^\downarrow)}$ ,  $i = 1, 2$  est la polarisation de chaque électrode ferromagnétique.

La MRT peut varier dans une large gamme de valeurs et dépend fortement de la polarisation des deux électrodes ferromagnétiques. Dans le cas le plus extrême, où  $P_1 = P_2 = 1$ , la MRT peut même être infiniment grande.

Typiquement, la structure électronique d'un métal ferromagnétique résulte de deux contributions majoritaires : (i) la bande des électrons  $d$ , qui est étroite, et peut être polarisée totalement ou partiellement et (ii) la bande des électrons  $s$ , qui est large, et qui a un degré de

<sup>2</sup> L'énergie de Fermi ( $E_F$ ) de l'électrode (2) est décalée par rapport à celle de l'électrode (1) de  $eV$  et la hauteur de la barrière ( $U_0$ ) est prise à partir de  $E_F$  pour  $V=0$ .

polarisation bien plus faible que la bande  $d$  puisqu'elle résulte de l'hybridation avec cette dernière. La polarisation  $P$  est reliée à la superposition de ces deux bandes au niveau de Fermi. Ainsi, si le caractère dominant dans la surface Fermi du métal ferromagnétique est la bande  $d$ , la polarisation en spin est généralement grande. Dans le cas opposé, si la bande  $s$  domine, selon l'importance de l'hybridation  $s-d$ , la polarisation en spin peut être petite ou grande. Etant donné que la polarisation est une grandeur donnée par les densités d'états au niveau de Fermi, l'aimantation peut être forte alors que la polarisation peut être faible. Les oxydes ferromagnétiques sont d'un grand intérêt en ce qui concerne la polarisation puisque le caractère orbital  $d$  domine au niveau de Fermi et qu'ils peuvent être demi-métallique c'est à dire que  $E_F$  tombe dans une bande interdite pour l'une des directions de spin.

La détermination expérimentale de la polarisation d'un métal ferromagnétique n'est pas une chose facile à réaliser. Pour mesurer la polarisation on a besoin d'une technique de spectroscopie qui permette de discriminer entre les deux états de spin  $\uparrow$  et  $\downarrow$ . Ainsi la photoémission résolue en spin <sup>[Tendrow\_PRL\_71]</sup> est capable de fournir une mesure exacte de la polarisation  $P$ . Une alternative à cette technique, est l'utilisation du transport "tunnel" polarisé en spin dans des jonctions en géométrie planaire où on peut balayer le spectre d'énergie au voisinage du niveau Fermi avec une précision de quelques meV.

Tedrow and Meservey <sup>[Tendrow\_PRL\_71]</sup> ont été les premiers à mener des expériences utilisant des jonctions supraconducteur/isolant/ferromagnétique. Les valeurs de la polarisation  $P$  mesurée sont présentées dans le tableau suivant :

Matériau magnétique	Polarisation en spin
Fe	+0.44
Co	+0.35
Ni	+0.23
Ni <sub>50</sub> Fe <sub>50</sub>	+0.45
Co <sub>50</sub> Fe <sub>50</sub>	+0.53

**Tableau.2.1** Polarisation en spin pour différents matériaux ferromagnétiques <sup>[Tendrow\_PRL\_71]</sup>.

### 1.3 Transport dans les barrières tunnel asymétriques

Si le calcul analytique du coefficient de transmission d'une barrière rectangulaire est possible à tension nulle, il devient impossible à tension finie lorsque la barrière devient trapézoïdale. En effet, la fonction d'onde dans la barrière est alors une superposition de fonctions d'Airy qui n'ont pas d'expression analytique simple. On utilise alors l'approximation WKB (Wentzel, Kramers, Brillouin) <sup>[WKB\_1926]</sup> qui suppose que la fonction d'onde dans la barrière prend la forme :

$$\psi_z = \frac{C}{\sqrt{k'(z)}} \exp\left(-\int k'(z, E_\perp) dz\right) \quad \text{avec} \quad k'(z, E_\perp) = \sqrt{\frac{2m(U(z) - E_\perp)}{\hbar^2}} \quad \text{où } E_\perp \text{ est la}$$

composante normale de l'énergie (perpendiculaire au plan de la barrière)

Le coefficient de transmission vaut alors:

$$D(E_\perp) = \exp\left(-2 \int_0^d k'(z, E_\perp) dz\right),$$

En dehors de la barrière, ce coefficient ne dépend pas des vecteurs d'onde (l'approximation consiste justement à considérer que leur influence est négligeable devant le terme exponentiel). Les intégrales ne peuvent être calculées que numériquement ou analytiquement au prix de simplifications supplémentaires.

Simmons <sup>[Simmons\_JAP\_63]</sup> base son calcul sur une hauteur moyenne de barrière (mesurée par rapport au niveau de Fermi). Le coefficient de transmission vaut alors :

$$D(E_\perp) = \exp(-A_1 d \sqrt{\varphi - E_\perp}) \quad \text{avec} \quad A_1 = 2\sqrt{2m}/\hbar = 10,2 eV^{-0.5} nm^{-1}$$

On obtient alors la formule usuelle pour le courant (valable tant que la barrière reste trapézoïdale):

$$I = \frac{e}{2\pi\hbar d^2} \left[ \left(\varphi_0 - \frac{1}{2} eV\right) \exp\left(-A_1 d \sqrt{\varphi_0 - \frac{1}{2} eV}\right) - \left(\varphi_0 + \frac{1}{2} eV\right) \exp\left(-A_1 d \sqrt{\varphi_0 + \frac{1}{2} eV}\right) \right],$$

où  $\varphi_0$  est la hauteur de barrière à tension nulle et  $d$  l'épaisseur de la barrière.

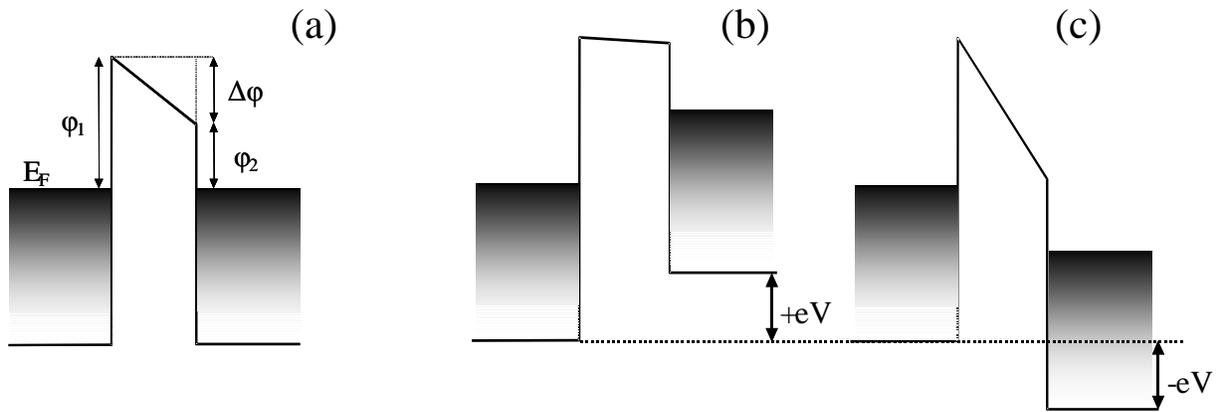
A basse tension, on retrouve un comportement linéaire avec une conductance surfacique égale à:

$$\left. \frac{dI}{dV} \right|_{V=0} = G(0) = \frac{e^2 \sqrt{2m}}{h^2} \frac{\sqrt{\varphi_0}}{d} \exp(-A_1 d \sqrt{\varphi_0}),$$

Brinkman et collaborateurs <sup>[Brinkmann\_JAP\_70]</sup> ont réalisé un développement limité en tension de la conductance différentielle pour une barrière trapézoïdale de hauteur moyenne  $\varphi_0$  et de différence de hauteur  $\Delta\varphi$  :

$$\left. \frac{dI}{dV} \right|_V = G(0) \left( 1 - \frac{A_1 d \Delta\varphi}{24\varphi_0^{3/2}} eV + \frac{d^2 A_1^2}{32\varphi_0} (eV)^2 \right),$$

Le minimum de conductivité peut donc se trouver décalé de la tension nulle lorsque la barrière est asymétrique.



**Figure 1.3.1** Profil de potentiel pour une barrière asymétrique en tension nulle (a), en polarisation directe (b) et en polarisation inverse (c).

Dans le cas d'une barrière trapézoïdale (figure 1.3.1) où les travaux d'extraction des électrons sont différents, on peut obtenir une caractéristique courant-tension asymétrique. En effet, pour la même tension appliquée en valeur absolue, le profil de potentiel de la barrière n'est pas le même selon que la tension est positive ou négative et va donner des courants différents. En général, il est expérimentalement très difficile d'obtenir des jonctions tunnel avec les mêmes interfaces même si les matériaux des deux électrodes sont identiques. En effet, la microstructure des deux interfaces ne va pas être semblable et va changer la structure électronique et donner des travaux d'extractions différents. Par exemple, Hartman <sup>[Hartman\_JAP\_64]</sup> a fabriqué des jonctions

tunnel Al/AlO<sub>x</sub>/Al avec les mêmes électrodes et a obtenu des travaux d'extractions des électrons très différents pour deux interfaces  $\varphi_1=2.40$  eV et  $\varphi_2=1.64$  eV.

On définit l'asymétrie du courant, ou rapport de rectification, comme le rapport entre la valeur absolue du courant en tension négative et le courant positif pour la tension opposée. Pour les barrières trapézoïdales le rapport de rectification n'est généralement pas très éloigné de 1.

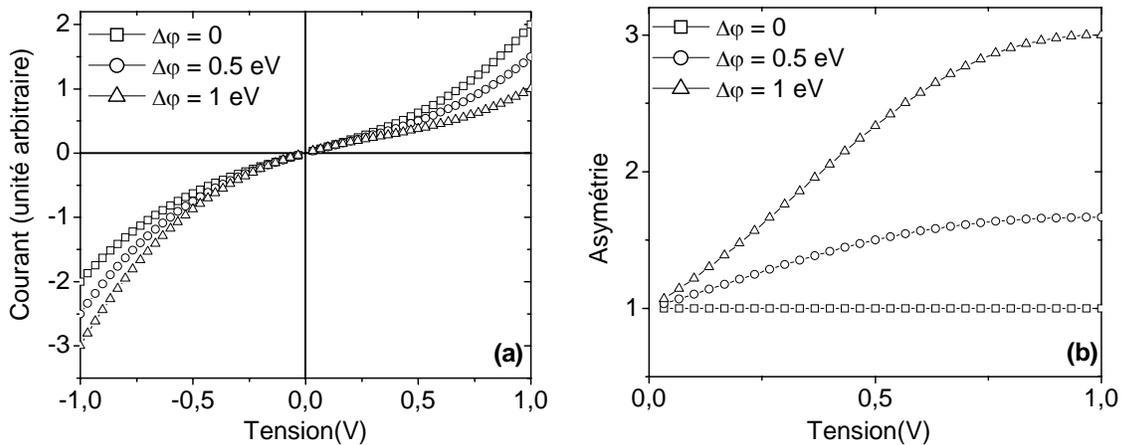
## 1.4 Rapport de rectification avec des jonctions tunnel à une et à deux barrières

En utilisant des jonctions tunnel dont les interfaces sont asymétriques on peut obtenir des caractéristiques courant-tension faiblement asymétriques. Dans la formule de Brinkmann [Brinkmann\_JAP\_70] pour le courant dans les jonctions tunnel à une barrière, on observe que la source d'asymétrie est la différence de potentiel  $\Delta\varphi$  entre les travaux d'extraction des électrons des deux interfaces :

$$I = G(0) \left( V - \frac{A_1 d \Delta\varphi}{24\varphi_0^{3/2}} eV^2 + \frac{d^2 A_1^2}{32\varphi_0} e^2 V^3 \right),$$

que l'on peut simplifier en:

$$I(V) = \alpha V + \beta \Delta\varphi V^2 + \gamma V^3 ,$$



**Figure 1.4.1** (a) Caractéristiques courant-tension simulées pour différentes barrières trapézoïdales et (b) asymétrie du courant obtenues.

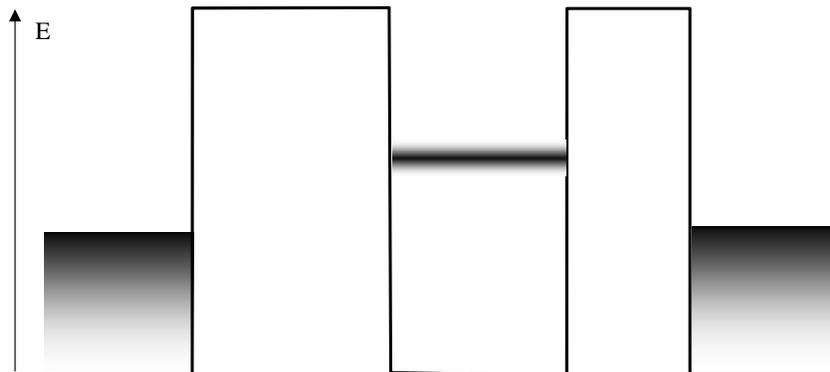
Pour des différences de hauteurs de barrière croissantes (0, 0.5 eV et 1 eV), on passe de caractéristiques courant-tension symétriques vers des caractéristiques asymétriques (figure 1.4.1.a).

Le calcul de l'asymétrie (ou du rapport de rectification) :

$$Asymetrie = \left| \frac{I(-V)}{I(+V)} \right|,$$

permet de mieux apprécier l'asymétrie des caractéristiques obtenues (figure 1.4.1.b). Nous en concluons, qu'étant donné notre limitation dans les valeurs de  $\Delta\phi$ , on ne peut pas obtenir de grandes asymétries dans le cas de barrières uniques (maximum 3 à 4).

Ceci peut être amélioré en utilisant plusieurs barrières et notamment deux barrières (figure 1.4.2). Une structure à deux barrières tunnel séparées par une couche métallique intermédiaire peut avoir un facteur d'asymétrie significativement élevé et permet d'obtenir des caractéristiques courant-tension proches de celles de diodes : de véritables régimes de blocage et de conduction peuvent être obtenus. En effet, la couche métallique intermédiaire se comporte comme un puits de potentiel, des ondes stationnaires de niveaux d'énergie discrets sont créées donnant naissance à des résonances dans la transmission. Si l'énergie des électrons correspond à un des niveaux de résonance, on a une augmentation du courant transmis à travers le système. La position de ce niveau et les épaisseurs des barrières vont définir le facteur d'asymétrie et le sens de conduction et de blocage du courant. Ce niveau de résonance peut être excité à l'aide de la tension appliquée sur le système.

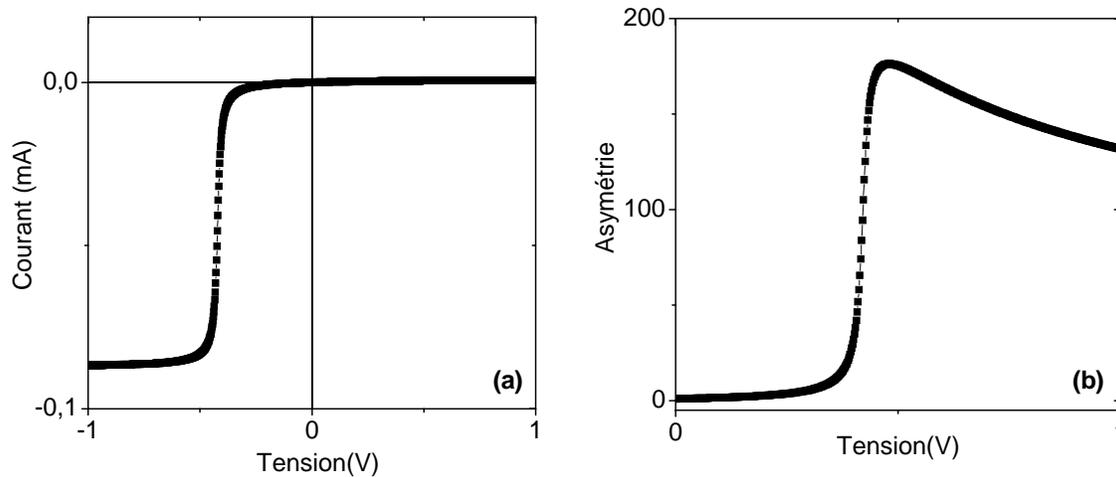


**Figure 1.4.2** Profil de potentiel du système asymétrique à deux barrières avec un seul niveau de résonance en tension nulle.

Afin de modéliser notre système, nous prenons une approche à un seul niveau d'énergie identique à celle suivie par Peterson <sup>[Peterson\_JPC\_01]</sup>. L'expression du courant peut s'écrire :

$$I(V) = I_0 \left\{ \arctan[\theta (E_0 + peV)] - \arctan[\theta (E_0 + (1-p)eV)] \right\}$$

où  $I_0$  est le courant de saturation,  $E_0$  est la position énergétique du niveau de résonance,  $p$  est le centre de gravité qui est lié à l'asymétrie de la barrière et  $\theta$  est le paramètre de couplage tunnel.



**Figure 1.4.3** (a) Courbes courant-tension simulées dans un système à deux barrières via un seul niveau de résonance et (b) asymétrie correspondante.

Si on compare les courbes courant-tension obtenues pour une barrière unique (figure 1.4.1.a) et pour une structure à deux barrières (figure 1.4.3.a), on observe (i) une très forte augmentation de l'asymétrie et (ii) un maximum d'asymétrie autour de 0.5 V ce qui laisse envisager son utilisation pour des applications en électronique.

Cette simulation montre que l'on peut obtenir des caractéristiques de type diode à l'aide de structure à deux barrières métal/isolant sans utiliser un semi-conducteur.

## 1.5 Modèles de transport dans une jonction à deux barrières tunnel

### 1.5.1 Modèle de calcul du courant polarisé en spin pour une jonction tunnel à deux barrières soumise à un champ électrique

Rappelons qu'une structure à deux barrières est constituée de deux barrières isolantes séparées par une fine couche métallique (qu'on désignera comme intermédiaire) prises en sandwich entre les deux électrodes métalliques. Pour des électrodes ferromagnétiques, le courant à travers la structure a une dépendance en spin c'est à dire qu'il varie en fonction du champ magnétique appliqué sur la structure.

En mécanique quantique un électron a une probabilité finie de traverser une barrière de potentiel par effet tunnel. Pour une structure à deux barrières, le comportement peut se compliquer selon la nature et l'épaisseur de la couche intermédiaire. Ainsi, si la couche intermédiaire est mince, on peut avoir un phénomène d'interférence des fonctions d'onde des électrons dans la couche intermédiaire qui donne lieu à des états de résonance. Ces états de résonance se traduisent par un maximum de transmission à travers la structure et vont correspondre à une augmentation du courant.

Pour le calcul du courant dans une structure à deux barrières, la méthode la plus simple est celle de la matrice de transfert en supposant que les électrons se comportent comme des électrons libres dans un métal. <sup>[Harrison\_PR\_61], [Slonczewski\_PRB\_89], [Esaki\_APL\_73]</sup>. Si les électrodes sont ferromagnétiques, le calcul du courant polarisé en spin et de la magnétorésistance est basé sur le modèle à deux courants. Les deux courants "up" et "down" vont avoir chacun une contribution indépendante l'une de l'autre et le courant total est la somme des deux courants. Pour une structure à deux barrières FM/I/FM/I/FM soumise à une tension externe  $V$ , on considère le profil de potentiel comme dans la figure 1.5.1.

Dans ce modèle, la partie longitudinale de l'Hamiltonien pour un électron s'écrit:

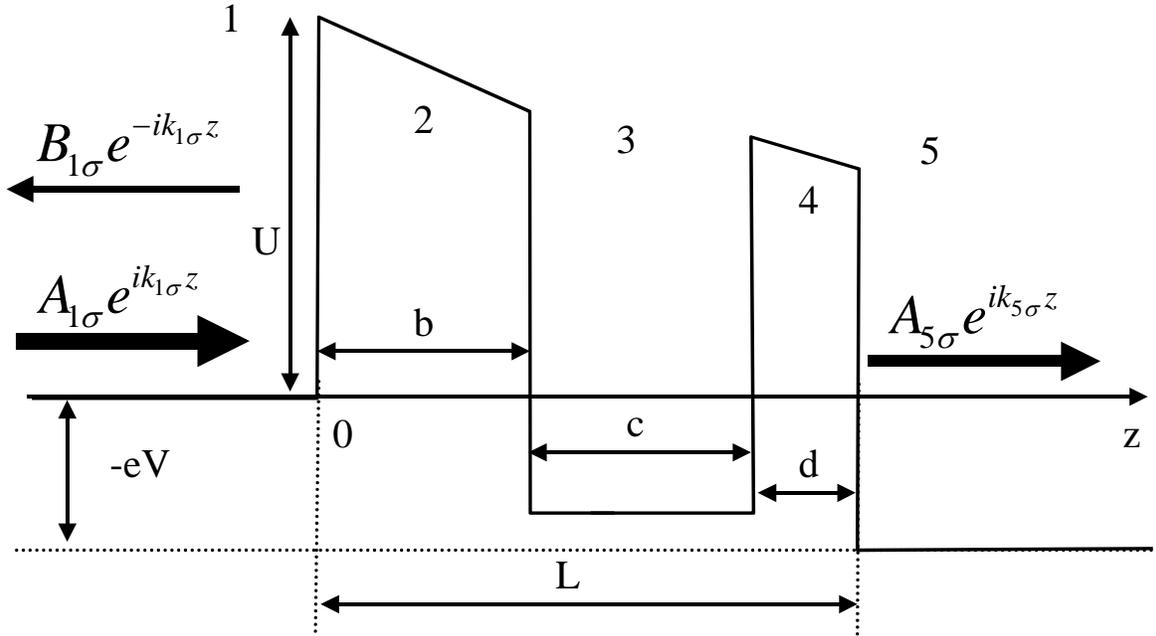
$$H = (\hbar^2 / 2m_j^*)(d^2 / dz^2) - F(z, V) + U(z) - h(z)\sigma,$$

avec :

$$h(z) = \begin{cases} \sigma h_0, & z < 0 \\ 0, & 0 < z < b \\ \sigma h_0, & b < z < b+c \\ 0, & b+c < z < b+c+d \\ \sigma h_0, & z > b+c+d \end{cases}, \quad U(z) = \begin{cases} 0, & z < 0 \\ U, & 0 < z < b \\ 0, & b < z < b+c \\ U, & b+c < z < b+c+d \\ 0, & z > b+c+d \end{cases},$$

$$F(z,V) = \begin{cases} 0, & z < 0 \\ eVz/(L-c), & 0 < z < b \\ eVb/(L-c), & b < z < b+c \\ eV(z-c)/(L-c), & b+c < z < b+c+d \\ eV, & z > b+c+d \end{cases}$$

où  $h(z)$  est le champ moléculaire, traduisant la configuration magnétique des électrodes,



**Figure 1.5.1** Schéma du potentiel pour une structure à deux barrières soumise à une tension appliquée.  $U$  représente la hauteur des barrières,  $L$  l'épaisseur de la structure entière,  $b$  et  $d$  les épaisseurs des deux barrières,  $c$  l'épaisseur de la couche métallique intermédiaire et  $V$  la tension appliquée <sup>[Zhang\_PRB\_97]</sup>.

$m_j^*$  représente la masse effective des électrons dans les 5 régions,  $U(z) - F(z, U)$  est le profil de potentiel tel que défini dans la figure 1.5.1.

L'équation de Schrödinger pour une barrière soumise à une tension a comme solution les fonctions d'Airy :  $Ai[\rho(z)]$  et son complément  $Bi[\rho(z)]$ . Si on considère les 5 régions d'une structure à deux barrières, on peut écrire la fonction d'onde associée :

$$\psi_{j\sigma}(z) = \begin{cases} A_{1\sigma}e^{ik_{1\sigma}z} + B_{1\sigma}e^{-ik_{1\sigma}z}, & z < 0 \\ A_{2\sigma}Ai[\rho_{2\sigma}(z)] + B_{2\sigma}Bi[\rho_{2\sigma}(z)], & 0 < z < b \\ A_{3\sigma}e^{ik_{3\sigma}z} + B_{3\sigma}e^{-ik_{3\sigma}z}, & b < z < b+c \\ A_{4\sigma}Ai[\rho_{4\sigma}(z)] + B_{4\sigma}Bi[\rho_{4\sigma}(z)], & b+c < z < b+c+d \\ A_{5\sigma}e^{ik_{5\sigma}z} + B_{5\sigma}e^{-ik_{5\sigma}z}, & z > b+c+d \end{cases},$$

où les vecteurs d'onde associés à chaque canal de spin  $\sigma = \pm 1$  sont:

$$\begin{aligned} k_{1,\sigma} &= \sqrt{2m_1^*(E + h_0\sigma)} / \hbar, \\ k_{3,\sigma} &= \sqrt{2m_3^*(E + eVb/(L-c) + h_0\sigma)} / \hbar, \\ k_{5,\sigma} &= \sqrt{2m_5^*(E + eV + h_0\sigma)} / \hbar. \end{aligned}$$

Les coefficients  $A_{j\sigma}$  et  $B_{j\sigma}$  sont à déterminer tandis que les fonctions  $\rho_{j\sigma}(z)$ , sont données par :

$$\begin{aligned} \rho_{j\sigma}(z) &= \frac{z}{\lambda_{0j}} + \beta_{0j,\sigma}, \\ \lambda_{0j} &= \left[ -\frac{(L-c)\hbar^2}{2m_j^*eV} \right]^{1/3}, \\ \beta_{0j,\sigma} &= \begin{cases} \frac{(L-c)(E-U)}{eV\lambda_{0j}}, & j=2, \\ \frac{(L-c)[E-U - eVc/(L-c)]}{eV\lambda_{0j}}, & j=4. \end{cases} \end{aligned}$$

On appliquant la condition de continuité pour les fonctions d'onde  $\psi_{j\sigma}$  et pour les dérivées normalisées  $(1/m_j^*)(d\psi_{j\sigma}/dz)$  aux interfaces, les coefficients de la fonction d'onde incidente  $A_{1\sigma}$  et  $B_{1\sigma}$  et les coefficients de la fonction d'onde transmise  $A_{5\sigma}$  et  $B_{5\sigma}$  sont reliés par l'expression matricielle :

$$\begin{bmatrix} A_{1\sigma} \\ B_{1\sigma} \end{bmatrix} = S_{total} \begin{bmatrix} A_{5\sigma} \\ B_{5\sigma} \end{bmatrix},$$

où la matrice de transfert s'écrit:

$$S_{total} = \frac{k_{5,\sigma}}{k_{1,\sigma}} \begin{bmatrix} ik_{1,\sigma} & \frac{m_1^*}{\lambda_{02} m_2^*} \\ ik_{1,\sigma} & -\frac{m_1^*}{\lambda_{02} m_2^*} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} Ai[\rho_{2,\sigma}(z=0)] & Bi[\rho_{2,\sigma}(z=0)] \\ Ai'[\rho_{2,\sigma}(z=0)] & Bi'[\rho_{2,\sigma}(z=0)] \end{bmatrix} \times ST(z)$$

$$\times \begin{bmatrix} Ai[\rho_{4,\sigma}(z=b+c+d)] & Bi[\rho_{4,\sigma}(z=b+c+d)] \\ Ai'[\rho_{4,\sigma}(z=b+c+d)] & Bi'[\rho_{4,\sigma}(z=b+c+d)] \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} ik_{5,\sigma} & \frac{m_1^*}{\lambda_{04} m_4^*} \\ ik_{5,\sigma} & -\frac{m_1^*}{\lambda_{04} m_4^*} \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} e^{-ik_{5,\sigma}(b+c+d)} & 0 \\ 0 & e^{-ik_{5,\sigma}(b+c+d)} \end{bmatrix}^{-1},$$

$$\text{où : } ST(z) = S^{-1}[\rho_{2,\sigma}(z=b)] \times T[k_3, c] \times S[\rho_{2,\sigma}(z=b+c)],$$

$$S[\rho_{j,\sigma}(z)] = \begin{bmatrix} Ai[\rho_{j,\sigma}(z)] & Bi[\rho_{j,\sigma}(z)] \\ Ai'[\rho_{j,\sigma}(z)] & Bi'[\rho_{j,\sigma}(z)] \end{bmatrix},$$

$$T(k_j, z) = \begin{bmatrix} \cos(k_j z) & -\frac{m_j^*}{k_j m_{(j+1)}^* \lambda_{(j+1)}} \sin(k_j z) \\ \frac{k_j m_{(j-1)}^* \lambda_{(j-1)}}{m_j^*} \sin(k_j z) & \frac{m_{(j-1)}^* \lambda_{(j-1)}}{m_{(j+1)}^* \lambda_{(j+1)}} \cos(k_j z) \end{bmatrix}.$$

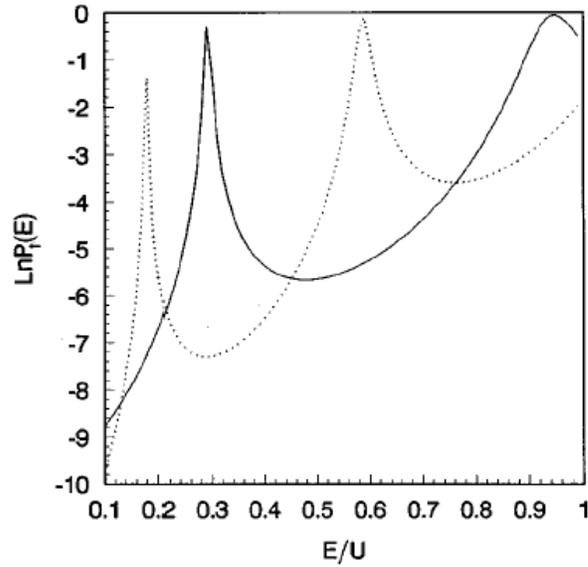
La transmission à travers la structure entière s'exprime en fonction de l'élément  $S_{total}^{11}$  de la matrice :

$$P_\sigma = \frac{k_{5,\sigma}}{k_{1,\sigma}} \left| \frac{1}{S_{total}^{11}} \right|^2$$

qui a une dépendance en spin comme illustrée par la figure 1.5.2 .

Dans le cadre du modèle des électrons libres, le courant par unité de surface en configuration parallèle s'écrit pour chaque canal de spin:

$$J_\sigma = \frac{em_j k_B T}{2\pi^2 \hbar^3} \int_0^\infty P_\sigma(E, V) \times \ln \left\{ \frac{1 + \exp((E_F^\sigma - E)/k_B T)}{1 + \exp((E_F^\sigma - E - eV)/k_B T)} \right\} dE,$$



**Figure 1.5.2** Transmission  $\ln(P(E))$  d'après Zhang <sup>[Zhang\_PRB\_97]</sup> pour une structure à deux barrières ( $b = d = 5 \text{ \AA}$ ,  $c = 10 \text{ \AA}$ ) avec  $V=0.4 \text{ V}$  et  $U=1.32 \text{ eV}$ . La courbe continue représente l'état parallèle et la courbe pointillée représente l'état antiparallèle où l'aimantation de la couche intermédiaire est orientée antiparallèle à l'aimantation des couches externes.

Le courant total à travers la structure est la somme des deux courants et la conductance par unité de surface s'écrit :

$$G = \sum_{\sigma} J_{\sigma} / V,$$

Finalement la magnétorésistance s'obtient par :

$$MRT = (G_{\uparrow\uparrow} - G_{\uparrow\downarrow}) / G_{\uparrow\uparrow},$$

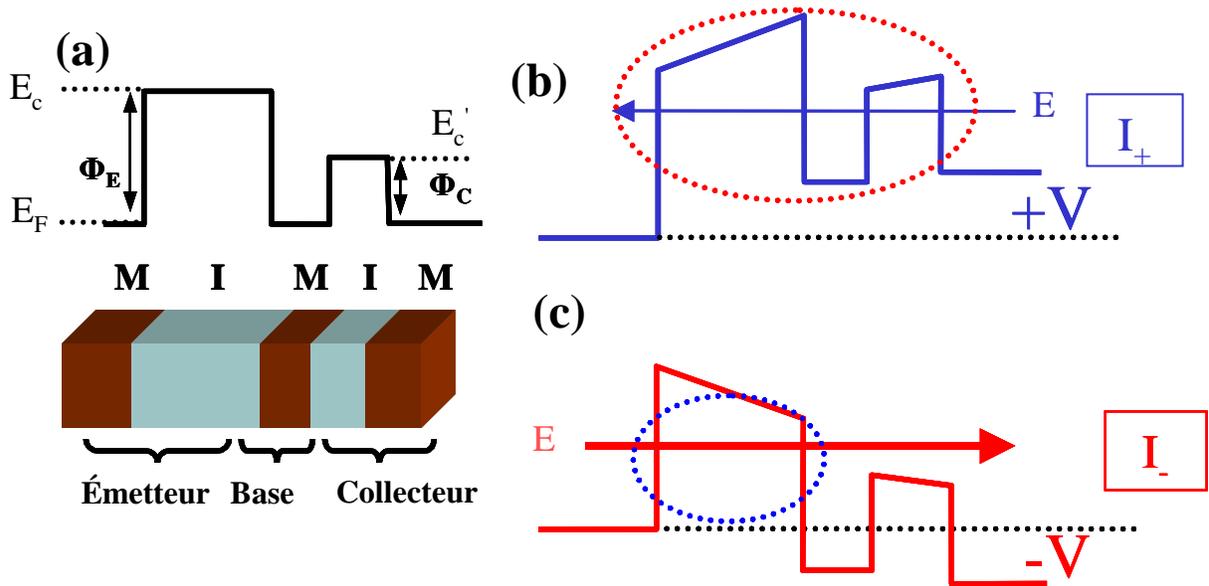
où  $G_{\uparrow\uparrow}$  ( $G_{\uparrow\downarrow}$ ) est la conductivité pour l'état parallèle (antiparallèle).

Ce modèle prévoit une grande magnétorésistance tunnel avec une dépendance oscillante avec la tension. Expérimentalement, cette dépendance oscillante de la MRT avec  $V$  n'a pas été mise en évidence pas plus que la forte augmentation de la MRT due à la résonance.

## 1.5.2 Transport par électrons "chauds"

Dans une structure à deux barrières pour laquelle les barrières sont asymétriques en épaisseur et en hauteur <sup>[Heiblum\_SSE\_81]</sup>, on peut imaginer un transport par "électrons chauds". Pour cela, il faut que le dispositif génère des électrons avec une énergie suffisante pour "passer au dessus" de la deuxième barrière. Dans notre cas, c'est la première barrière tunnel (que l'on va appeler émetteur) qui va générer ces électrons "chauds". Ces électrons vont traverser la couche métallique intermédiaire et si celle-ci est assez fine, vont être "thermalisés" dans le collecteur après être "passés au dessus" de la seconde barrière.

Le principe de ce mode de transport est présenté dans la figure 1.5.2:



**Figure 1.5.2** a) Schéma de potentiel pour une structure à deux barrières asymétriques b) Polarisation directe: transport des électrons par effet tunnel à travers les deux barrières. c) Polarisation inverse: transport par électrons "chauds" au dessus de la seconde barrière.

Dans le profil de potentiel de la figure 1.5.2 (a) les couches métalliques sont identifiées par leur énergie de Fermi  $E_F$  et les isolants par le bas de leur bande de conduction  $E_c$ .

Si une chute de tension  $V_{BE}$  est appliquée entre la base et l'émetteur, les électrons vont traverser la première barrière tunnel et vont arriver dans la base avec une énergie proche de

l'énergie de Fermi du métal émetteur ( $E_F$ ). Dans la base, ces électrons vont subir des collisions électrons-phonons, électron-électron et électron-impureté. Le paramètre qui va caractériser ces collisions est le libre parcours moyen électronique ( $l_e$ ). Si on considère un modèle unidimensionnel où l'épaisseur de la base est plus petite que  $l_e$  et pour  $V_{BE}$  telle que  $\Phi_C \leq E_{\perp} \leq eV_{BE}$ , où  $E_{\perp}$  est l'énergie cinétique des électrons dans la direction perpendiculaire au plan des couches, une fraction de ces électrons va voir leur énergie "thermalisée" jusqu'au niveau de Fermi de la base et la fraction restante des électrons va traverser la seconde barrière en tant qu'électrons "chauds". Dans la suite on notera  $\alpha = I_C/I_E$  le rapport de transfert c'est à dire le rapport entre les courants collecteur et émetteur.

Le rapport de transfert peut être unitaire si on considère que la distribution en énergie du courant tunnel injecté est fine et qu'en même temps les collisions et les réflexions peuvent être négligées. Dans une structure réelle, plusieurs mécanismes peuvent avoir lieu dans lesquels les électrons perdent de l'énergie <sup>[Heiblum\_SSE\_81]</sup> : (a) la diffusion quantique pour le courant tunnel, (b) la diffusion électronique pour le courant provenant des collisions électroniques dans la bande de conduction de l'oxyde  $O_1$  (émetteur-base), (c) les pertes d'énergie dans la base, (d) les réflexions quantiques à l'interface base-oxyde  $O_2$ , (e) la transmission par la bande de conduction de l'oxyde  $O_2$  base-collecteur, (f) les réflexions quantiques dans l'interface du collecteur à l'interface  $O_2$ -métal.

Dans la suite de ce paragraphe chaque mécanisme qui peut diminuer le rapport de transfert est détaillé afin de mieux comprendre chaque phénomène :

(a) *La diffusion quantique du courant tunnel* : La distribution en énergie du courant électronique qui "émerge" de la barrière par effet tunnel est quasiment monoénergétique avec un pic centré sur l'énergie de Fermi du métal émetteur. C'est le résultat direct de la diminution de la densité d'état électronique au dessus du niveau de Fermi et de la réduction de la probabilité de transmission par effet tunnel pour les électrons de faible énergie.

La distribution du courant dans l'espace des énergies s'écrit généralement <sup>[Duke\_TS]</sup>:

$$J_{EB}(E_{\perp}, E_p) dE_{\perp} dE_p = \frac{4\pi m_E^* e}{h^3} n_E(E_{\perp}) f_E(E) (1 - f_B(E)) dE_{\perp} dE_p,$$

où  $J_{EB}(E_{\perp}, E_p)$  est la distribution du courant, dans l'espace des énergies, des électrons transmis de l'émetteur vers la base par effet tunnel,  $E_{\perp}$  est la composante normale de l'énergie

(perpendiculaire au plan de la jonction),  $E_p$  est la composante transverse de l'énergie (dans le plan de la jonction),  $f_E(E)$  est la distribution de Fermi-Dirac dans l'émetteur,  $f_B(E)$  est la distribution de Fermi-Dirac dans la base. On suppose que la masse effective des électrons  $m_E^*$  dans les métaux est la même pour l'émetteur et la base.

Le courant résultant vaut:  $|J| = |J_{EB}| - |J_{BE}|$ ;

$$\text{avec : } J_{EB}(E)dE = \frac{4\pi m_E^* e}{h^3} f_E(E)(1 - f_B(E))dE \int_0^E n_E(E_\perp) dE_\perp.$$

$$\text{Pour } T=0 \text{ K, on a: } J_{EB}(E_\perp) = \frac{4\pi m_E^* e}{h^3} \begin{cases} V_{BE} n_E(E_\perp); & E_\perp < \mu_E - eV_{BE} \\ (\mu_E - E_\perp) n_E(E_\perp); & \mu_E - eV_{BE} < E_\perp < \mu_E \\ 0; & \mu_E < E_\perp \end{cases}$$

La dépendance en énergie de la distribution du courant est assez large mais elle a un maximum qui est localisé toujours au dessus du niveau de Fermi de l'électrode.

(b) *Diffusion électronique pour le courant due à des collisions électroniques dans la bande de conduction de l'oxyde  $O^1$  (émetteur-base).*

Dans le cas d'une grande tension  $V_{BE}$  appliquée, les électrons vont passer du temps dans la bande de conduction de l'oxyde  $O_1$  où ils vont subir des collisions avec des phonons (plus particulièrement avec les phonons optiques) qui vont induire une perte d'énergie et un changement de vecteur d'onde. Les pertes d'énergie ne sont pas grandes (de l'ordre de 0.1 eV par collision) et on peut considérer ces collisions comme étant élastiques. Le plus grand effet de ces collisions n'est donc pas la perte d'énergie mais bien la variation de la distribution de l'énergie normale  $E_\perp$  qui va donner une diminution du courant collecté.

(c) *Les pertes d'énergie dans la base.*

Les collisions dans la base peuvent venir de défauts ou d'impuretés, de phonons ou d'électrons. Chacun va induire des pertes d'énergie différentes:

Les collisions *électron - impureté* neutre sont indépendantes de la température et le libre parcours moyen associé à ces collisions est proportionnel au carré de l'énergie cinétique. Dans le cas où les impuretés sont ionisées la dépendance en température est  $T^{3/2}$ . Le libre parcours moyen pour les *collisions électron-phonon* est inversement proportionnel à la température et a une dépendance linéaire avec l'énergie cinétique de l'électron:

$$l_{e-ph} = \lambda_\sigma (E_k / E_F)^2,$$

où  $\lambda_\sigma$  est le libre parcours moyen pour les électrons thermalisés et  $E_k$  est l'énergie cinétique des électrons "chauds". A partir de la conductivité métallique  $\sigma$ , on peut calculer  $\lambda_\sigma$  comme

$$\lambda_\sigma = \frac{m_E^* v}{ne^2} \sigma, \text{ où } v \text{ est la vitesse thermique pour les électrons de conduction et } n \text{ est leur densité.}$$

Pour les collisions *électron-électron*, on peut estimer le libre parcours moyen des électrons à partir de la densité d'états. Si on suppose que les collisions sont complètement inélastiques, les électrons "chauds" perdent la même quantité d'énergie que ce que gagnent les électrons thermalisés et le temps de collision va diminuer lorsque l'énergie des électrons "chauds" augmente. Le nombre d'électrons qui peuvent interagir avec les électrons "chauds" en conjonction avec le nombre des états vers lesquels les électrons thermalisés peuvent être excités donnent une dépendance en  $(E-E_F)^{-2}$  du temps de collision. Comme le libre parcours moyen est égal au produit du temps de collision et de la vitesse des électrons "chauds", le libre parcours moyen dû aux collisions *électron – électron* vaut:

$$l_{e-e} \propto E^{1/2} (E - E_F)^{-2},$$

Cette relation est beaucoup simplifiée puisque les collisions que nous avons décrites ici peuvent être élastiques ou inélastiques et peuvent être regardées comme une perte d'énergie dans la couche intermédiaire. Le libre parcours moyen combiné  $l_T$  est une combinaison de toutes ces contributions :

$$l_T = \left[ \sum_i (l_{e-i})^{-1} \right]^{-1},$$

où  $l_{e-i}$  est le libre parcours moyen pour chaque mécanisme de collision. Cette équation n'est valable que si la dépendance en énergie des mécanismes de collisions est similaire, ce qui n'est vérifié que dans un intervalle d'énergie très étroit.

(d) *Réflexions quantiques à l'interface base – oxyde O<sub>2</sub>.*

En mécanique classique, si l'énergie des électrons "chauds" est plus grande que la seconde barrière  $\Phi_C$  du collecteur on n'a pas de réflexions à cette interface. En mécanique quantique, on a toujours de la réflexion mais elle devient de plus en plus faible si l'énergie des électrons devient de plus en plus grande par rapport à  $\Phi_C$ .

Ces réflexions varient fortement avec le gradient de la barrière de potentiel et avec la masse effective des électrons des deux cotés de l'interface où a lieu la réflexion.

La transmission du courant peut s'écrire comme :

$$T = \left| \frac{A_t}{A_i} \right|^2 \frac{m_i^*}{m_t^*},$$

où  $A$  est l'amplitude de la fonction d'onde et  $m^*$  est la masse effective (les indices  $i$  et  $t$  correspondent aux valeurs incidentes et transmises). Sze [Sze\_JAP\_66] a calculé numériquement  $T$  pour une interface métal - semiconducteur et a montré que pour un excès d'énergie par rapport à la barrière de 0.1 à 0.4 eV, une réflexion de 25% est inévitable.

Le cas d'une barrière rectangulaire possède le coefficient de réflexion le plus grand: ainsi, pour une barrière avec une hauteur de  $\Phi_C = 0.5$  eV et une épaisseur  $d=15$  Å, le coefficient de transmission vaut 50% pour un excès d'énergie de 0.3 eV pour les électrons au dessus de la barrière alors que si on diminue l'épaisseur à  $d = 10$  Å, on obtient un facteur de transmission de  $T \cong 90\%$ . La prise en compte de la forme de la barrière, de la profondeur de pénétration du champ électrique dans les électrodes et de l'écrantage de Thomas-Fermi va réduire le gradient de potentiel aux interfaces et le facteur de transmission  $T$  va augmenter jusqu'à 60% pour un excès d'énergie de 0.1 eV. Dans une interface métal-oxyde on a  $m_i^* > m_t^*$  et le facteur de transmission  $T$  va augmenter en tenant compte du rapport des masses effectives.

(e) *Transmission dans la bande de conduction de l'oxyde  $O_2$  (base - collecteur).*

Si on peut générer des électrons avec une énergie comprise entre  $\Phi_C$  et  $\Phi_C + E_{ph}$  où  $E_{ph}$  est l'énergie des phonons optiques dans l'oxyde  $O_2$ , on obtient une forte transmission à travers la deuxième couche d'oxyde  $O_2$  et les seules pertes d'énergie vont se faire avec les phonons acoustiques.

(f) *Réflexions quantique à l'interface oxyde  $O_2$  - collecteur.*

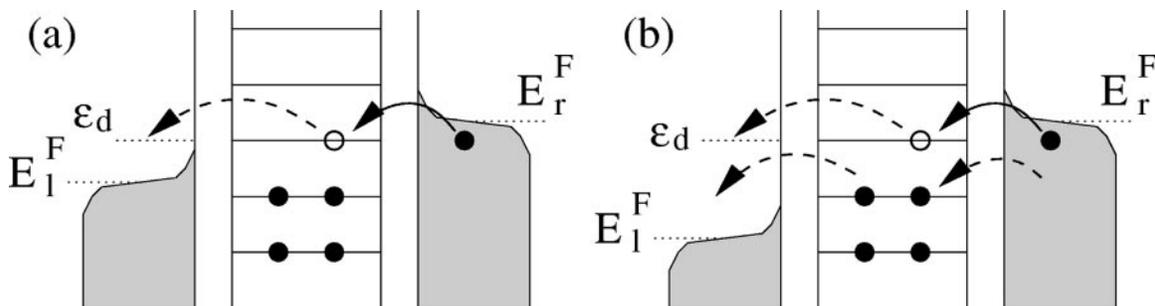
En mécanique classique on n'a pas de réflexions à cette interface. MacCall [MacColl\_PR\_62] a traité ce problème de manière assez rigoureuse prenant en compte le métal comme un potentiel périodique qui se termine par une barrière de potentiel à la surface. D'après ses calculs, la réflexion et la transmission dépendent sensiblement de l'énergie incidente et de l'amplitude du potentiel périodique. Dans le cas où  $m_i^* ; m_t^*$  les réflexions peuvent varier d'une fraction à quelques pourcent.

Si on a une asymétrie des hauteurs de barrière, un modèle de transport par électrons chauds dans une structure à deux barrières peut donner des asymétries en courant en fonction de la tension appliquée.

### 1.5.3 Transport via les états discrets de la couche métallique intermédiaire

Aujourd'hui, il est possible de construire des dispositifs transistor à l'échelle nanométrique où les électrons vont traverser des particules avec des états quantiques bien définis. Dans une géométrie transistor, la tension  $V_{EC}$  et la tension  $V_{BC}$  peuvent être ajustées de telle manière que l'énergie des électrons corresponde à un seul état quantique. En changeant les deux tensions, les électrons peuvent transiter par d'autres états quantiques qui vont donner aux électrons des chemins supplémentaires pour le transport. Ces états quantiques sont bien définis dans les puits quantiques semiconducteurs, dans les particules métalliques ou dans les molécules. Lorsque plusieurs états quantiques dans une particule métallique contribuent, le transport tunnel devient très compliqué du fait de la multitude des combinaisons possibles des états hors équilibre qui peuvent être excités et de la possibilité de relaxation de ces états <sup>[Bonet\_PRB\_02]</sup>.

Dans l'hypothèse où les barrières ont des résistances plus grandes que  $h/e^2$  et où la relaxation interne peut être négligée, le transport tunnel via plusieurs états accessibles peut être analysé dans l'idée d'un transport séquentiel utilisant une équation de taux de transfert <sup>[Averin\_JLTP\_86]</sup>. Dans ce cas on peut montrer que, si un état ou plusieurs états de particule participent au transport tunnel, les valeurs de la tension pour lesquelles les résonances du courant sont obtenues peuvent dépendre de la température. Dans le cas où on a de multiples états qui participent au transport tunnel, les effets hors équilibre et les variations des interactions *électron-électron* peuvent introduire un pic supplémentaire ou élargir les résonances.



**Figure 1.5.3** (a) Transport tunnel via un seul état discret, (b) Participation de plusieurs états discrets au transport à l'aide de la tension appliquée <sup>[Bonet\_PRB\_02]</sup>.

Dans ce modèle, on fait quelques hypothèses : (a) l'énergie thermique est supposée petite par rapport à l'écart entre les niveaux énergétiques, (b) l'écart entre les niveaux est plus petit que l'énergie coulombienne de charge  $e^2/(2C_\Sigma)$  dûe aux îlots métalliques et (c) les barrières tunnel sont plus grandes que  $h/e^2$  pour que les processus de "co-tunnel"<sup>3</sup> puissent être négligés.

Dans le cas de la figure 1.5.3 on peut comprendre comment se produit le transport tunnel à travers la structure : (a) les électrons peuvent passer à travers la structure quand le niveau de Fermi de l'électrode correspond au niveau de la résonance, (b) on peut avoir deux niveaux qui contribuent au transport tunnel si on applique une tension supplémentaire sur la base.

Le cas où les niveaux des résonances sont très éloignés les uns des autres, en comparaison avec l'énergie thermique  $k_B T$ , est très intéressant puisqu'un seul niveau d'énergie va participer au transport. Dans ce cas, on aura des intensités de courant différentes selon que la tension appliquée est positive ou négative :

$$I_+ = 2|e| \frac{\gamma_r \gamma_l}{2\gamma_r + \gamma_l},$$

$$I_- = -2|e| \frac{\gamma_r \gamma_l}{\gamma_r + 2\gamma_l},$$

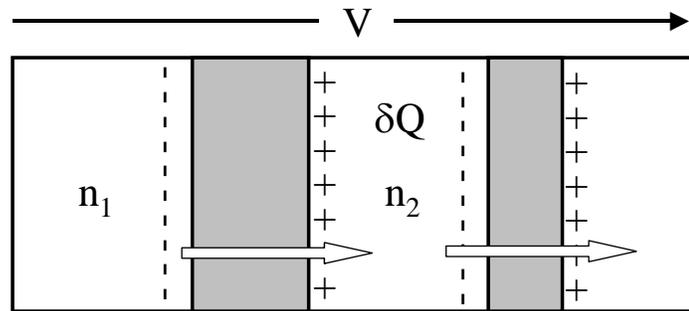
où  $\gamma_r$  ( $\gamma_l$ ) est la probabilité pour qu'un électron passe de l'électrode de droite (de gauche) vers l'état discret par effet tunnel.

Avec ce modèle de transport via des états de résonance, on montre que la valeur du courant tunnel maximal varie avec le signe de la tension appliquée. Dans certains régimes de transport, les positions en tension des pics de résonance vont être fortement dépendantes de la température alors que pour le cas d'un seul niveau qui participe au transport, on n'a pas de dépendance en température de la position du pic.

<sup>3</sup> C'est le processus de transport d'électrons via un état virtuel dans l'amas ; l'amas conserve l'énergie pendant ce processus de transport (si un électron entre dans l'amas il y a un autre électron d'un autre état qui en sortira) .

### 1.5.4 Transport avec blocage de Coulomb dans une structure à deux barrières

Considérons le dispositif <sup>[Mathieu\_PSCE]</sup> de la figure 1.5.4.1 constitué de deux jonctions tunnel en série et polarisé par un générateur idéal de tension. La tension aux bornes de l'ensemble, imposée par le générateur égale à la valeur  $V$ , se distribue entre les deux jonctions en fonction de leurs capacités et d'une éventuelle charge  $\delta Q$  injectée dans l'électrode centrale.



**Figure 1.5.4.1** Système à deux barrières tunnel en série soumis à une tension donnée  $V$  <sup>[Mathieu\_PSCE]</sup>.

En l'absence d'effet tunnel  $Q = C_1 V_1 = C_2 V_2$  avec  $V = V_1 + V_2$  de sorte que les tensions  $V_1$  et  $V_2$  valent:

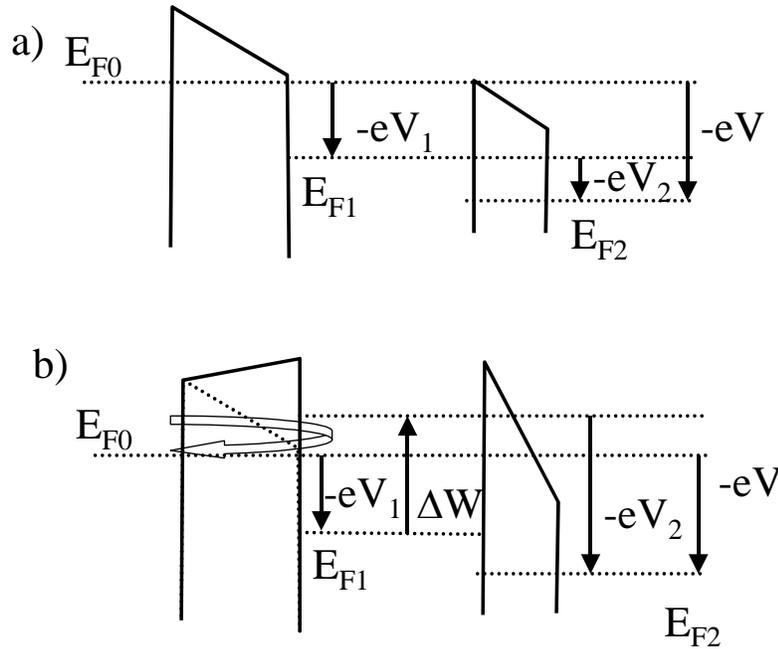
$$V_1 = \frac{C_2}{C_1 + C_2} V \text{ et } V_2 = \frac{C_1}{C_1 + C_2} V ;$$

Le diagramme énergétique est représenté sur la figure 1.5.4.2 (a). Compte tenu des positions relatives des niveaux de Fermi, les électrons peuvent passer de l'électrode de gauche vers l'électrode de droite par effet tunnel à travers chaque jonction. Si on appelle  $n_1$  et  $n_2$  les nombres d'électrons qui traversent respectivement les jonctions (1) et (2), la variation de charge de l'îlot central associée à ces transferts s'écrit  $\delta Q = -e(n_1 - n_2)$ . Les tensions  $V_1$  et  $V_2$ , dont la somme reste égale à  $V$ , s'écrivent alors :

$$V_1 = \frac{C_2}{C_1 + C_2} V + \frac{\delta Q}{C_1 + C_2} = \frac{C_2}{C_1 + C_2} V - e \frac{n_1 - n_2}{C_1 + C_2},$$

$$V_2 = \frac{C_1}{C_1 + C_2} V - \frac{\delta Q}{C_1 + C_2} = \frac{C_1}{C_1 + C_2} V + e \frac{n_1 - n_2}{C_1 + C_2}.$$

Le passage d'un électron à travers la jonction (1), représenté par la figure 1.5.4.2 (b) avec  $n_1=1$  et  $n_2=0$ , entraîne une diminution de  $V_1$  et une augmentation de  $V_2$  de la quantité  $\frac{e}{C_1 + C_2}$ .



**Figure 1.5.4.2** (a) Distributions des tensions dans une structure à deux barrières et (b) blocage de Coulomb dans la même structure <sup>[Mathieu\_PSCE]</sup>.

Ainsi, comme dans le cas de la jonction unique, le niveau de Fermi de l'îlot central remonte de  $\Delta W = e^2 / 2(C_1 + C_2)$ . Si la tension  $V_1$ , avant le transfert, est inférieure à  $e / 2(C_1 + C_2)$ , le transfert de l'électron entraîne une remontée du niveau de Fermi de l'îlot central  $E_{F1}$  au-dessus de  $E_{F0}$  et l'électron repasse alors dans l'électrode de gauche : l'effet tunnel est inhibé. La condition de déblocage est donc  $V_1 > e / 2(C_1 + C_2)$  ce qui entraîne  $V > e / 2C_2$ . Si la polarisation est inversée, le processus se produit dans l'autre sens avec une tension de seuil égale à  $e / 2C_1$ .

Supposons maintenant le système très dissymétrique avec la résistance de la première jonction très inférieure à celle de la seconde  $R_1 \ll R_2$ . En d'autres termes, le taux de transfert par effet tunnel est beaucoup plus grand pour la deuxième jonction que pour la première. Les

électrons arrivent plus facilement dans l'îlot central qu'ils n'en partent : ils ont donc tendance à s'y accumuler. Mais à mesure que le nombre d'électrons dans cet îlot augmente, le niveau de Fermi  $E_{F1}$  monte. L'îlot central va donc se remplir de  $n$  électrons si le  $(n+1)^{\text{ème}}$  électron fait passer  $E_{F1}$  au dessus de  $E_{F0}$ . Un nouvel électron ne pourra entrer dans l'îlot que lorsqu'un électron en sera sorti. Les électrons passent donc de manière corrélée à travers le dispositif qui se comporte comme une écluse laissant passer les électrons l'un après l'autre à un rythme commandé par  $R_1$ .

## 1.6 Transport dans les jonctions tunnel à deux barrières: état de l'art expérimental

Expérimentalement, le transport par effet tunnel à travers une barrière isolante offre une large gamme de processus physiques : interactions électrons-phonon dans la barrière, piégeage des électrons,... Dans le cas d'électrodes magnétiques, on ajoute encore des processus comme l'interaction avec les magnons et la MRT. Tous ces processus se retrouvent dans le cadre d'une jonction à deux barrières mais on a des phénomènes physiques supplémentaires provenant de la présence de la couche intermédiaire : le blocage de Coulomb, les états de résonance, le transport par électrons "chauds",... Pour caractériser un système à deux barrières tunnel du point de vue du transport électronique, il y a deux voies possibles :

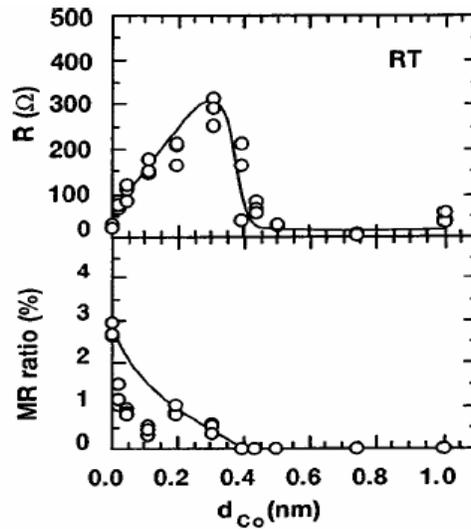
i) Etude du transport des électrons en configuration à *deux contacts* : elle consiste à n'appliquer la tension qu'aux extrémités de la structure. Cette étude est efficace si on connaît très bien la nature et la qualité des barrières et de la couche intermédiaire. Cependant, un désavantage de cette configuration est l'incapacité du contrôle de la tension sur la couche métallique intermédiaire.

ii) Etude du transport des électrons dans une configuration à *trois contacts* : par rapport au cas précédent elle consiste à ajouter un contact sur la couche intermédiaire. Ce contact supplémentaire va permettre la mesure de la réponse de chaque jonction et le contrôle de la tension intermédiaire dans la structure. La difficulté majeure dans ce cas est la nécessité d'arrêter

précisément la gravure dans la couche intermédiaire qui n'est épaisse que de quelques nanomètres. Détaillons un peu plus ce qui a été réalisé jusqu'à présent pour chaque voie.

Pour une structure à deux barrières et à deux contacts, Sousa et Freitas <sup>[Sousa\_MRSSP\_98]</sup> ont été les premiers à obtenir expérimentalement de la MRT avec une couche intermédiaire ferromagnétique. Pour la plupart des échantillon étudiés, ils n'ont pu mesurer qu'une seule jonction, l'autre étant court-circuitée. Dans le cas où les deux barrières sont isolantes, ils ont observé que la MRT est divisée de moitié pour une tension de 0,5 V ce qui est une réduction plus grande que dans les jonctions simples. Une asymétrie de la MRT entre les caractéristiques directes et inverses a été observée ce qui n'a pas été le cas pour une jonction simple. Montaigne et collaborateurs <sup>[Montaigne\_APL\_98]</sup> observent trois niveaux de résistance dans une structure à deux barrières qui correspondent aux trois configurations magnétiques de la structure. La tension pour laquelle la MRT est divisée de moitié vaut 0.8 V ce qui est très prometteur en ce qui concerne l'utilisation de ces structures dans une matrice de mémoire MRAM. Les derniers résultats qui montrent une grande tension pour laquelle la MRT est divisée de moitié ont été publiés par Colis et collaborateurs <sup>[Colis\_APL\_03]</sup> où la tension indiquée est de 1.33 V. Ils ont utilisé des barrières symétriques, une couche "douce" constituée d'une multicouche CoFe/NiFe/CoFe entre les deux barrières et les couches "dures" sont constituées d'une couche de CoFe dont l'aimantation est figée par anisotropie d'échange avec une couche de IrMn. Puisque les électrodes magnétiques de CoFe ont une grande polarisation, de grandes valeurs de la MRT de l'ordre 50% à température ambiante ont été obtenues. Tous ces échantillons ont des caractéristiques communes : ils ont été déposés par la même technique de dépôt (dépôt cathodique), ils ont les deux barrières de même épaisseur et leur couche intermédiaire est assez épaisse. L'évolution des résultats d'une étude à l'autre est une conséquence du choix des matériaux qui va donner une configuration magnétique optimale et le système est vu comme constitué de deux barrières en série.

Les choses ne sont pas évidentes si on essaye de diminuer l'épaisseur de la couche intermédiaire afin d'augmenter la MRT par effet de résonance. Des études ont été menées afin d'analyser l'influence de l'épaisseur de la couche intermédiaire sur la MRT. Des anomalies dans les caractéristiques ont été observées par Tanue et collaborateurs <sup>[Tanue\_JAP\_00]</sup> en variant l'épaisseur d'une couche de Co insérée dans une barrière d'alumine. La résistance de la jonction augmente jusqu'à une épaisseur autour de 0.3 nm de Co et puis elle chute (figure 1.6.1). Ceci est



**Figure 1.6.1** Dépendance de la résistance et de la MRT en fonction de l'épaisseur  $d_{Co}$  de la couche intermédiaire de Co pour une structure à deux barrières d'après Tanue <sup>[Tanue\_JAP\_00]</sup>.

expliqué par la formation successive de trois composés : une phase d'oxyde de Co, une phase demi métallique pour une épaisseur de 0.3 nm, ici nous avons un oxyde de Co avec excès Co, et une phase Co métallique. Pour cette dernière phase, la dépendance en température de la MRT est interprétée comme résultant d'un processus par effet tunnel en deux étapes. Pour une épaisseur de 0.3 nm de Co, des anomalies dans la MRT sont obtenues et les caractéristiques mesurées en fonction de la température ressemblent beaucoup à celles obtenues pour un transport à travers des amas. Fettar et collaborateurs <sup>[Fettar\_PRB\_02]</sup> ont étudié des systèmes à deux barrières en fonction de la température et de la tension pour lesquels la couche intermédiaire est constituée de Co et de Cu dans la limite d'amas isolés ou d'amas à la percolation. La dépendance en température de la résistance peut être attribuée à la conduction par deux canaux parallèles différents : un canal passant par les amas et un autre via les impuretés dans la barrière. Pour des températures basses et de petits voltages, la MRT est grande et est attribuée à la combinaison du blocage de Coulomb à travers les amas et de la configuration magnétique établie entre les amas magnétiques et les électrodes. Ainsi, dans ces échantillons, la MRT reste grande pour de grandes tensions appliquées.

Les jonctions à deux barrières ont des propriétés magnétiques intéressantes mais elles peuvent aussi présenter des caractéristiques courant-tension qui les rendent très prometteuses

pour l'utilisation en électronique. Ainsi, nous examinons dans ce travail la capacité d'utiliser des jonctions à deux barrières pour obtenir des caractéristiques courant-tension de type diode. Jusqu'à présent, il n'y a pas eu de diode fabriquée à partir de structures entièrement métal-isolant du fait de la difficulté d'obtenir une croissance de grande qualité de multicouches avec de fines couches de métal et l'isolant. D'après la littérature, un seul système de type diode similaire à une multicouche métal-isolant a été réalisé: il est composé de  $\text{CoSi}_2$  (métal) et  $\text{CaF}_2$  (isolant) [Strahberger\_PB\_99], mais dans ce cas une des électrodes n'est pas métallique mais correspond à un substrat de Si. L'effet tunnel résonnant dans une structure métal (Ag-Ti)/isolant (MgO) a été démontré par Kado et collaborateurs [Kado\_APL\_02]. Dans leur étude, ils expliquent la nécessité de réaliser des structures à trois barrières tunnel pour mieux observer les états de résonance à travers la structure.

Vue la complexité des systèmes à deux barrières et l'impossibilité du contrôle précis de la croissance d'une fine couche de métal sur un isolant, il faut envisager une nouvelle approche pour caractériser électriquement le système. Une des approches qui va favoriser le contrôle du système est de réaliser trois contacts, c'est à dire qu'on réalise un contact électrique au niveau de la couche intermédiaire en plus des deux contacts au niveau des électrodes inférieure et supérieure. En contrôlant la tension au niveau de la couche intermédiaire, on peut contrôler l'énergie des électrons injectés dans la seconde barrière. On peut aussi agir sur les collisions via la dépendance des collisions en fonction de l'énergie des électrons. Dans le cadre des structures à deux barrières, les processus de collisions dans la couche intermédiaire deviennent vraiment importants et il peuvent avoir un poids dans la résistance totale beaucoup plus important que les barrières. Cette étude a été réalisée par Zhang [Zhang\_JAP\_00] où il montre l'influence de la relaxation des électrons dans la couche intermédiaire sur le courant total.

La technique de réalisation d'une géométrie à trois contacts est décrite par Stein et collaborateurs [Stein\_SSC\_01] et Lacour [Lacour\_thèse] où le contact intermédiaire est pris sur une couche métallique de 10 nm. A l'aide de cette technique, Stein et collaborateurs ont fabriqué un nouveau dispositif, appelé MAGTID (magnetic tunneling injection device), afin de réaliser l'injection de spins. Ce dispositif est constitué de deux jonctions tunnel magnétiques en contact avec la couche intermédiaire ferromagnétique. Une des jonctions sert de détecteur et l'autre est utilisée pour injecter du courant dans la couche ferromagnétique. L'accumulation de spin peut influencer la

magnétorésistance et en même temps les chutes de tension sur les jonctions. Dans un système comme celui ci, il est montré que la MRT varie lorsqu'on augmente le courant injecté.

Utilisant cette géométrie à trois contacts, Hehn et collaborateurs <sup>[Hehn\_PRB\_02]</sup> ont proposé un nouveau type de transistor magnétique basé sur le transport par électrons "chauds" à travers la seconde barrière. Ce type de transistor est intéressant d'un point de vue fondamental pour étudier les propriétés hors-équilibre des électrons "chauds" et aussi d'un point de vue industriel pour l'électronique de spin. Le contrôle de la transmission des électrons "chauds" dans la structure est essentiel pour obtenir des caractéristiques de type diode ou transistor.

## 1.7 Applications des jonctions tunnel

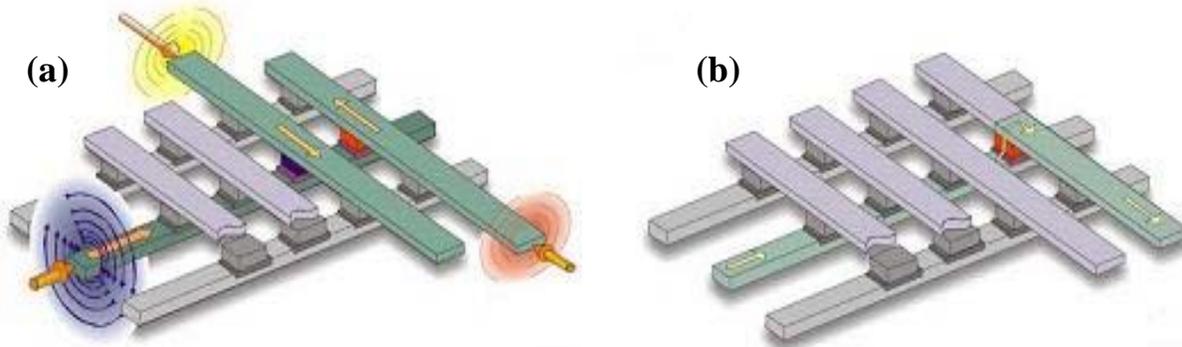
### 1.7.1 Mémoires magnétiques MRAM à base de JTM

Un des défis de l'électronique d'aujourd'hui est de produire des mémoires de plus en plus denses c'est à dire avec des composants ayant une taille latérale de plus en plus petite, de plus en plus économes, ayant un temps d'accès de plus en plus court et une durée de vie de plus en plus longue. Si on ajoute à ces objectifs, la propriété de non-volatilité (capacité à garder l'information sans aucune source d'énergie) et la résistance aux radiations, on a défini une mémoire presque idéale. A l'heure actuelle, le composant susceptible de réunir toutes ces propriétés est la mémoire magnétique à accès aléatoire (MRAM) <sup>[Parkin\_APL\_99], [Tehrani\_JAP\_99]</sup>.

L'unité élémentaire de mémoire magnétique MRAM typique consiste en la juxtaposition d'une fonction mémoire basée sur l'effet de magnétorésistance (jonction tunnel magnétique) et d'une fonction blocage du courant (transistor C-MOS <sup>[Parkin\_APL\_99]</sup>, diode <sup>[Sousa\_APL\_99]</sup>).

Le stockage de l'information dans la JTM est réalisé à partir des deux états de résistance extrême des configurations d'aimantation parallèle (P) et antiparallèle (AP) des électrodes magnétiques. Une matrice MRAM utilise la combinaison de lignes métalliques orthogonales pour "écrire" et pour "lire" l'information stockée en adressant chaque unité de mémoire à l'intersection des deux lignes. Ainsi, pour "écrire", la combinaison de champs magnétiques orthogonaux

généralisés dans ces lignes par des pulses de courant va créer un champ magnétique de direction variable suffisamment fort pour orienter l'aimantation de la couche ferromagnétique "douce" de la JTM et placer la JTM dans un état magnétique donné (P ou AP). Etant donné que le courant qui circule dans une ligne ne peut pas être très grand pour ne pas perturber l'état magnétique des autres jonctions qui sont sur cette ligne, la combinaison de plusieurs champs magnétique sur la même unité de mémoire est une solution efficace permettant de créer un champ magnétique local qui ne va retourner que l'aimantation de la couche "douce" de la jonction magnétique cible (figure 1.7.1.a). La corrélation temporelle de ces champs et leurs intensités sont les facteurs déterminants dans la réussite de l'écriture dans une matrice de mémoires MRAM. On peut ainsi écrire des bits "0" ou "1" dans n'importe quel élément de la matrice. Ces bits étant liés aux configurations magnétique, ils sont non-volatiles : l'information reste stockée dans la mémoire même si le courant est coupé.



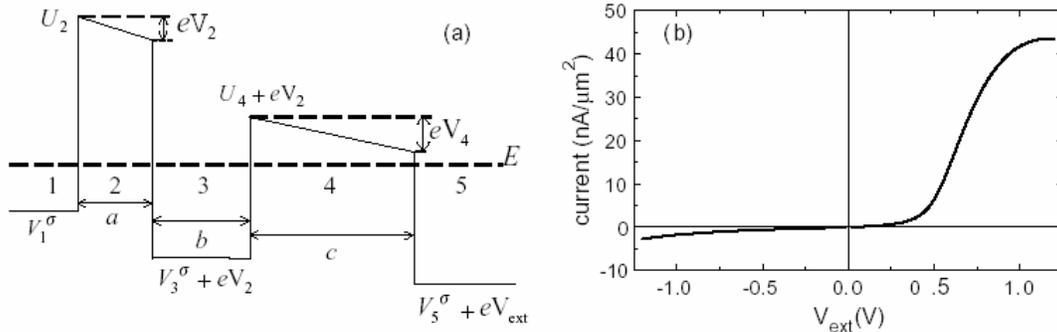
**Figure 1.7.1** (a) Mode d'écriture dans une matrice de mémoires MRAM (b) Lecture de l'information dans une matrice de mémoires <sup>[Parkin\_APL\_99]</sup>.

Une fois écrite l'information dans une matrice de mémoire, on a besoin de pouvoir la lire. Ceci est réalisé en appliquant une tension sur les lignes de contacts correspondantes et en mesurant le courant qui passe à travers la jonction cible (figure 1.7.1). Cependant, une fois cette tension appliquée, il y a d'autres chemins parasites que peut suivre le courant et qui vont perturber la lecture du signal magnétorésistif de l'élément. Pour éviter ces chemins parasites, une fonction de blocage des courants parasites est nécessaire afin d'assurer un bon fonctionnement de la matrice de mémoires. Plusieurs dispositifs électroniques peuvent réaliser cette fonction de blocage (transistor MOS, diode semiconductrice). Dans le cadre du projet nous concernant (projet

*nanoMEM*), nous avons proposé un tout nouveau dispositif que nous allons décrire dans les paragraphes suivants, basé sur une diode métal/isolant MID intégrée directement avec l'élément mémoire.

### 1.7.2 Diode métal/isolant (MID) à base de barrières tunnel

Le concept proposé par Chshiev et collaborateurs de l'IPCMS <sup>[Chshiev\_EPL\_02]</sup> est une solution qui repose sur une structure constituée de deux barrières isolantes asymétriques  $M_1/\Phi_1/M_2/\Phi_2/M_3$  ( $M_i$  et  $\Phi_i$  sont respectivement les couches magnétiques métalliques et les couches d'oxyde isolantes) qui se comporte comme un dispositif de blocage du courant. Pour une telle structure avec des barrières asymétriques, les caractéristiques I-V calculées montrent un comportement de type diode avec un rapport de rectification allant jusqu'à une centaine et, en même temps, de la MRT. Ce comportement trouve son origine dans l'existence d'états quantifiés dans la couche métallique intermédiaire  $M_2$  qui sont à l'origine de résonances dans le courant. L'application d'une tension est nécessaire pour faire apparaître ces résonances dans le courant dont l'intensité dépend du signe de la tension appliquée. Afin d'obtenir une réponse I-V asymétrique, il est indispensable d'avoir des barrières asymétriques en résistance (c'est à dire en épaisseur et/ou en hauteur) pour que les états quantifiés dans la couche  $M_2$  soient déplacés significativement (ou non) pour donner lieu (ou non) à une résonance dans le courant selon le signe de la tension appliquée. Ainsi, si les électrons traversent d'abord la barrière peu résistive, où la chute de tension est négligeable, ils auront une très faible probabilité que leur énergie corresponde à celle de la résonance quelle que soit la tension appliquée. Alors que, s'ils traversent d'abord la barrière fortement résistive où la chute de tension est presque égale à la tension appliquée, la probabilité de croiser la résonance en énergie lorsque la tension appliquée varie, est beaucoup plus forte. De plus, le rapport de rectification peut être changé par application d'un champ magnétique menant au concept d'une diode contrôlée par un champ magnétique.



**Figure 1.7.2** (a) Profil de potentiel pour une structure à deux barrières et (b) calcul de la courbe courant-tension pour une structure asymétrique  $\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3(7 \text{ \AA})/\text{Cu}(5.5 \text{ \AA})/\text{Al}_2\text{O}_3(21 \text{ \AA})/\text{Cu}$  avec  $U_2 - E_F = U_4 - E_F = 3 \text{ eV}$  d'après Chshiev <sup>[Chshiev\_EPL\_02]</sup>.

Un des objectifs de ce travail de thèse est de valider expérimentalement le concept de diode sans semi-conducteur en utilisant des structures à plusieurs barrières tunnel.

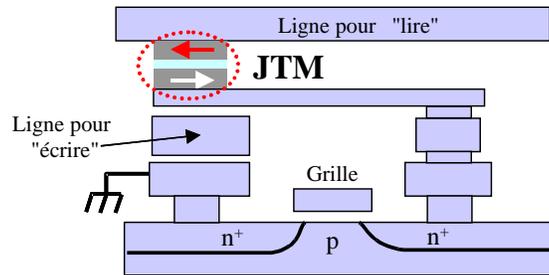
### 1.7.3 Dispositif RAMMID

Dans la fabrication de matrices de mémoires magnétiques MRAM, de nombreux problèmes doivent être surmontés : compatibilité électrique et compatibilité des processus de fabrication. L'introduction de la JTM dans une structure MRAM introduit quelques nouvelles contraintes <sup>[Hirota\_GMRD]</sup> :

- a) Il faut faire des contacts électriques sur les électrodes sans détruire la barrière,
- b) Il faut développer des affinités métallurgiques entre la JTM et les circuits,
- c) Les substrats doivent avoir une rugosité très faible (c'est une propriété cruciale dans la fabrication d'une jonction tunnel alors que ce n'est pas aussi critique dans le cas de composants à base de silicium).
- d) La température pour faire un éventuel recuit thermique<sup>4</sup> des jonctions tunnel magnétiques doit être inférieure à la température de destruction des transistors intégrés.

<sup>4</sup> Recuit nécessaire pour augmenter la magnétorésistance (thèse Dimopoulos <sup>[Dimopoulos\_thèse]</sup>)

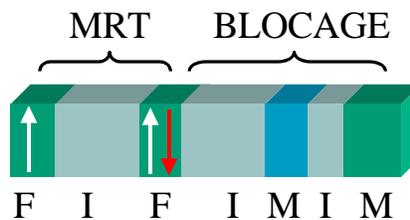
Avec une technologie semiconductrice, une unité de mémoire MRAM consiste en la juxtaposition d'un transistor de taille minimale et d'une JTM comme illustré par la figure 1.7.3.1 :



**Figure 1.7.3.1** Unité de mémoire MRAM utilisant la technologie semiconductrice <sup>[MRAM\_Motorola]</sup>.

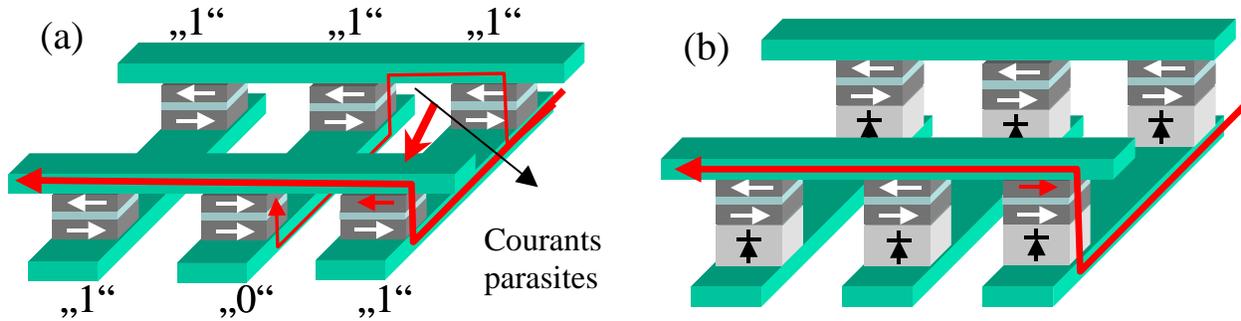
Dans ce cas, les tailles latérales de la JTM ne sont pas critiques vu que le transistor est beaucoup plus grand. Par contre, on va perdre en densité du stockage ce qui est un facteur très important en ce qui concerne la miniaturisation des nouveaux dispositifs électroniques.

Vues la complexité d'intégration de la technologie semiconductrice avec la technologie métal/isolant de la jonction tunnel magnétique et les limites quant à la densité de stockage, nous avons proposé une autre idée pour réaliser une matrice de mémoires. Cette idée consiste à faire operer la fonction blocage par une diode MIMIM (voir le paragraphe précédent). La nouvelle unité de mémoire ainsi obtenue (appelée RAMMID, figure 1.7.3.2) n'est constituée que de multicouches métal/isolant et intègre les deux fonctions nécessaires au fonctionnement de la MRAM : fonction mémoire (JTM) et fonction blocage (MID). Dans ce cas, les tailles latérales



**Figure 1.7.3.2** RAMMID à base de multicouches metal/isolant où M est une couche métallique, I une couche isolante et F une couche métallique ferromagnétique.

de la diode et de la jonction sont tout à fait comparables. Ainsi, la même technologie sert à obtenir les deux fonctions intégrées sans étape supplémentaire dans le processus de lithographie.



**Figure 1.7.3.3** (a) Lecture dans une matrice de mémoires et exemples de courants parasites associés (b) Blocage des courants parasites dans la même matrice à l'aide d'une diode MIMIM en série avec chaque JTM.

Utilisant les unités de mémoire RAMMID dans une matrice de mémoires magnétiques, on peut éliminer les courants parasites qui perturbent la lecture. Ce mode de blocage est illustré dans la figure 1.7.3.3 (b) où la diode bloque tous les courants qui circulent des électrodes supérieures vers les électrodes inférieures .

## Conclusions

L'effet tunnel a un très grand potentiel en ce qui concerne son utilisation dans les dispositifs électroniques. Dans ce chapitre, nous avons sommairement détaillé les modèles qui permettent de déterminer l'asymétrie dans une structure à deux barrières tunnel et nous avons montré que l'asymétrie est beaucoup plus importante que celle obtenue avec juste une seule jonction. Utilisant des structures avec plusieurs barrières, nous avons montré qu'il est théoriquement possible d'intégrer la propriété de magnétorésistance et la propriété d'asymétrie du courant (la rectification) qui peuvent avoir comme application directe dans les mémoires magnétiques à accès aléatoire.

Les modèles qui sont présentés dans ce chapitre nous éclairent quant à la variété des phénomènes physiques qui peuvent être rencontrés dans une structure à deux barrières et leur rôle dans le processus de transport d'un point de vue théorique. Tous ces modèles donnent un courant asymétrique en tension dans le cas où les barrières sont asymétriques. On peut identifier deux origines différentes pour l'asymétrie: (i) une asymétrie provenant de résonances sur des états discrets dans la couche intermédiaire lorsque les barrières ont la même hauteur mais des épaisseurs différentes, (ii) une asymétrie provenant du transport par électrons "chauds" au dessus de la seconde barrière lorsque celle-ci a une hauteur plus "faible que la première". Les études théoriques réalisées par Chshiev <sup>[Chshiev\_EPL\_02]</sup> nous montrent explicitement que l'on peut avoir un effet diode en utilisant une structure à deux barrières. Tous ces modèles nous ont encouragé à élaborer des structures à deux barrières avec l'espoir d'obtenir de fortes asymétries et un effet diode significatif et utilisable.

La diode ainsi obtenue peut être utilisée dans une matrice de mémoires MRAM, pour remplir la fonction de blocage des courants parasites lors de la lecture de l'information. L'avantage de cette diode est qu'elle ne contient pas de semi-conducteur et qu'il devient alors possible d'avoir des tailles comparables pour les dispositifs remplissant la fonction mémoire (jonction tunnel magnétique) et la fonction blocage ce qui va déboucher sur une augmentation de la densité de stockage dans la matrice de mémoires MRAM.

## **Chapitre 2**

# **Techniques d'élaboration et caractérisation des jonctions tunnel à deux barrières**



## Chapitre 2 : Techniques d'élaboration et de caractérisation des jonctions tunnel à deux barrières

### 2.1 Techniques d'élaboration

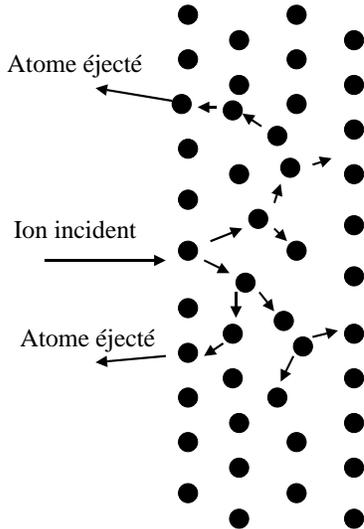
#### 2.1.1 La Technique de dépôt cathodique

La technique de dépôt cathodique <sup>[Vossen\_TFP]</sup> est une technique largement utilisée pour l'élaboration de couches minces. Ces couches minces sont utilisées pour étudier les propriétés physiques de systèmes de dimensions réduites ou en microélectronique pour réaliser des supports d'enregistrement magnétique, des capteurs, des dispositifs électroniques,...

La pulvérisation cathodique utilise le processus d'érosion de la surfaces des cibles à l'aide de particules énergétiques accélérées produisant l'éjection des atomes de la cible. Le dépôt

cathodique n'est pas autre chose que le dépôt de ces atomes éjectés des cibles sur un substrat.

Après l'impact de particules de grande énergie cinétique (entre quelques eV et 1keV), la surface d'un solide subit un certain nombre de processus secondaires : on a des processus d'implantations d'ions, des effets chimiques, du mélange des ions et de la destruction du réseaux cristallin mais le phénomène le plus important pour la croissance des couches minces est l'émission des particules. Les particules émises sont principalement des atomes neutres et une petite fraction est constituée de molécules.



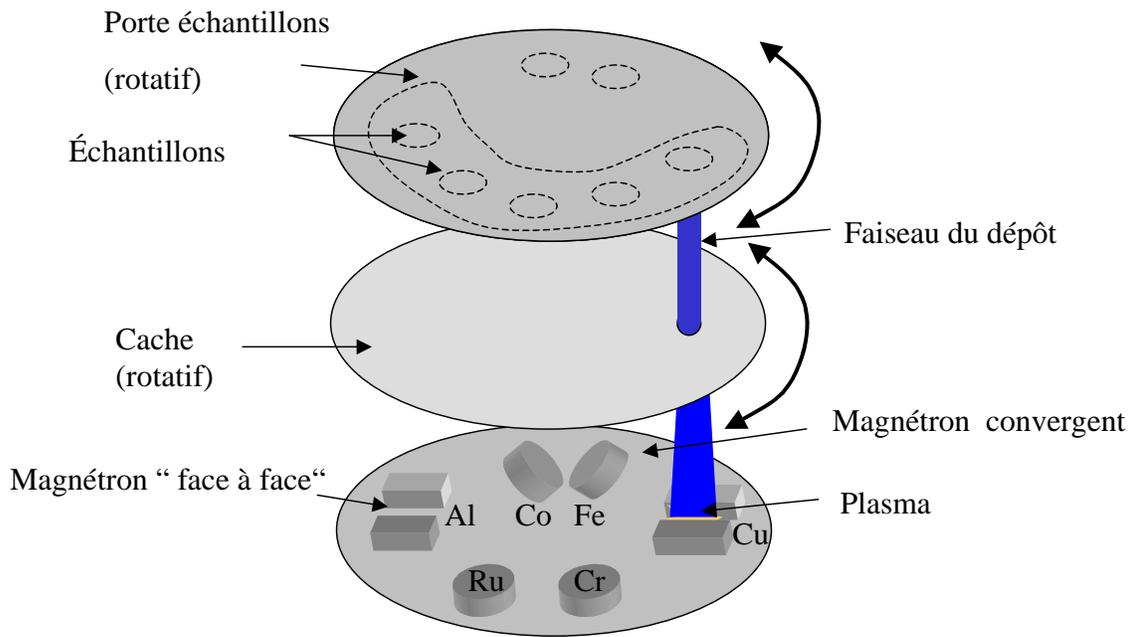
**Figure 2.1.1.1** Processus de pulvérisation.

Le paramètre qui conditionne le transfert d'impulsion et d'énergie est le rapport entre les masses des ions accélérés et des atomes de la cible : pour un transfert optimal, les deux masses doivent être égales. Si les atomes de la cible ont différentes masses, ils sont pulvérisés avec des taux différents ce qui modifie la concentration des atomes en surface de la cible. Cependant, tous les atomes finissent par être pulvérisés puisque ceux qui ont un taux faible deviennent prédominant à la surface de la cible. Ainsi, le dépôt conserve la stœchiométrie de la cible. Ceci représente un très grand avantage pour le dépôt d'alliages et de composés. Le taux de pulvérisation est maximal pour les ions qui ont une énergie similaire à l'énergie de liaison entre atomes de la cible. Ainsi, la distribution en énergie des particules qui sont pulvérisées a un plateau pour des énergies juste au dessus de l'énergie de liaison entre atomes de la cible. Ce plateau peut être déplacé et beaucoup élargi vers des énergies plus basses en exploitant les collisions avec les atomes du gaz (argon dans notre cas) entre la cible et le substrat. On va avoir une thermalisation des particules pulvérisées qui peut être contrôlée par la pression totale dans l'enceinte. Cette pression est donnée par le débit d'argon introduit dans l'enceinte.

Les particules énergétiques bombardant la cible peuvent être produites par différents moyens utilisant, soit une source d'ions, soit des décharges électriques dans la chambre à vide. Le moyen le plus simple pour obtenir des particules énergétiques dans la chambre de dépôt est de produire une décharge électrique utilisant la cible comme cathode et le substrat comme anode. L'essentiel de la décharge a lieu dans le voisinage de la cathode où un champ électrique intense accélère les ions positifs. Ces ions bombardent la surface produisant la pulvérisation des particules et des électrons secondaires qui sont réutilisés pour produire de nouvelles décharges. Cependant, cette méthode a de multiples désavantages qui sont liés à la pression qui doit être très grande, au très grande voltage nécessaire pour produire la décharge, au très grand bombardement par les électrons et à sa limitation aux cibles métalliques. Néanmoins, ces désavantages peuvent être éliminés en utilisant une décharge radio – fréquence (RF) ou en utilisant une décharge continue soutenue par un émetteur additionnel. Avec une décharge RF, il devient possible d'utiliser un isolant comme cible.

Le principal désavantage de la technique d'établissement d'un plasma à l'aide d'une décharge électrique est le faible taux d'ionisation. Cependant ce taux peut être augmenté en utilisant des magnétons. Nous avons utilisé un bâti d'évaporation équipé de six magnétons de configurations différentes: deux magnétons convergents sont utilisés pour le dépôt des alliages

$\text{Co}_x\text{Fe}_{1-x}$ , deux magnétons "face à face" sont utilisés pour le dépôt de d'aluminium et du cuivre avec un flux de dépôt faible et deux magnétons "plans" sont utilisés pour le dépôt du Cr et du Ru. Dans la figure 2.1.1.2 nous avons présenté la répartition des magnétons dans le bâti ainsi que le porte-échantillons. L'intérêt de ce bâti vient de la possibilité de déposer plusieurs échantillons en même temps avec différentes structurations en couches. Ceci est réalisé par rotation du porte-échantillons pour aligner l'échantillon désiré et l'orifice du cache sélectionnant la cible du matériau à déposer.



*Figure 2.1.1.2 Schéma du bâti d'évaporation pour le dépôt cathodique.*

Cette flexibilité est cependant perdue lorsqu'on réalise les barrières d'alumine du fait de l'oxydation. En effet, l'oxydation se fait à l'aide d'un plasma réactif créé entre le cache et le porte-échantillons par introduction d'oxygène dans le bâti. Durant l'oxydation, le porte-échantillons et tous les échantillons qui sont dans la chambre vont être oxydés avec le même temps d'oxydation. Il est donc impossible d'élaborer des échantillons dans la même série avec des barrières différentes.

La température est un facteur important dans le processus de croissance de couches minces puisqu'elle influence énormément le mode de croissance de ces couches. Pour avoir la

même croissance d'une série d'échantillons à l'autre, nous avons déposé tous les échantillons à la température optimale de 50° C.

Masse atomique du gaz	Pression partielle (mbar)
2 (H <sub>2</sub> )	3.63×10 <sup>-9</sup>
18 (H <sub>2</sub> O)	1.70×10 <sup>-7</sup>
28 (N <sub>2</sub> ou CO)	7.72×10 <sup>-8</sup>
32 (O <sub>2</sub> )	5.84×10 <sup>-8</sup>
44 (CO <sub>2</sub> )	7.56×10 <sup>-9</sup>

**Tableau 2.1.1.3** Pressions partielles des gaz avant le dépôt.

Le vide créé dans le bâti joue aussi un rôle essentiel dans le processus d'élaboration et un vide de 7.10<sup>-9</sup> mbar a été atteint comme point de départ avant le dépôt. On peut aussi surveiller la pression partielle des gaz "parasites" à l'intérieur du bâti (voir tableau Tab 2.1.1.3) pour avoir une reproductibilité des échantillons d'une série à l'autre.

CIBLE	POLARISATION DC	POLARISATION RF	FLUX (Å/s)
Cu	I = 100 mA		0.54
Cr	I = 100 mA		0.65
Ru	I = 100 mA		0.74
Al		P = 290 W	0.26
		cc = 86 ca = 52	
Fe		P = 110 W	0.55
		cc = 63 ca = 76	
Co	I = 200 mA		0.67

**Tableau 2.1.1.4** Paramètres utilisés pour les différentes cibles pendant le dépôt (où I est l'intensité du courant, P est la puissance appliquée aux magnétons RF, cc est la condition de charge et ca la condition d'accord pour le magnétron RF).

Avant le dépôt de chaque série, nous avons fait une gravure des substrats pendant 20 minutes en réalisant un plasma entre le porte-échantillons et le cache afin de "nettoyer" les substrats.

Un autre facteur qui va être crucial pour la reproduction de nos résultats est l'ensemble des paramètres de dépôt pour chaque cible : ces paramètres déterminent la vitesse de dépôt pour chaque matériau et sont présentés dans le tableau 2.1.1.4.

Le dépôt se fait dans un flux de 15 s.c.c.m (standard cubic centimeters per minute) d'argon et les quantités de matière déposées sont déterminées par différentes méthodes ex-situ: diffraction de rayons X, image MET et des mesures magnétiques.

## 2.1.2 Photolithographie : fabrication des jonctions tunnel

La fabrication de circuits intégrés nécessite une technique qui s'applique aussi bien à des systèmes en couches qu'à des dispositifs électroniques le plus souvent à base de semi-conducteur. Cette technique est la lithographie <sup>[Choudhury\_HMMM]</sup> qui est généralement utilisée pour réaliser des dispositifs semi-conducteurs. La technique de la lithographie consiste en un transfert du schéma d'un circuit électrique sur l'échantillon à lithographier. Par exemple, le transfert d'un circuit électrique dessiné sur un masque sous la forme d'un film de résine polymère déposé sur l'échantillon est en conséquence une reproduction du circuit sur une couche mince conductrice ou isolante. La photolithographie, qui utilise une radiation ultraviolette pour réaliser le transfert du dessin d'un masque sur une résine positive est aujourd'hui la technique dominante pour fabriquer des circuits électroniques. La nano-lithographie (par exemple la lithographie électronique) commence à devenir une technique très importante pour différentes applications comme les têtes de lecture et les mémoires magnétiques où les tailles latérales des objets doivent encore être diminuées afin d'augmenter la densité de stockage. Pour fabriquer nos dispositifs à plusieurs barrières tunnel, nous avons utilisé la lithographie optique (photolithographie), mise à disposition par la compagnie Siemens AG (Erlangen, Allemagne) dans le cadre du projet *nanoMEM*. Les dispositifs réalisés ont des dimensions comprises entre  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  et  $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ .

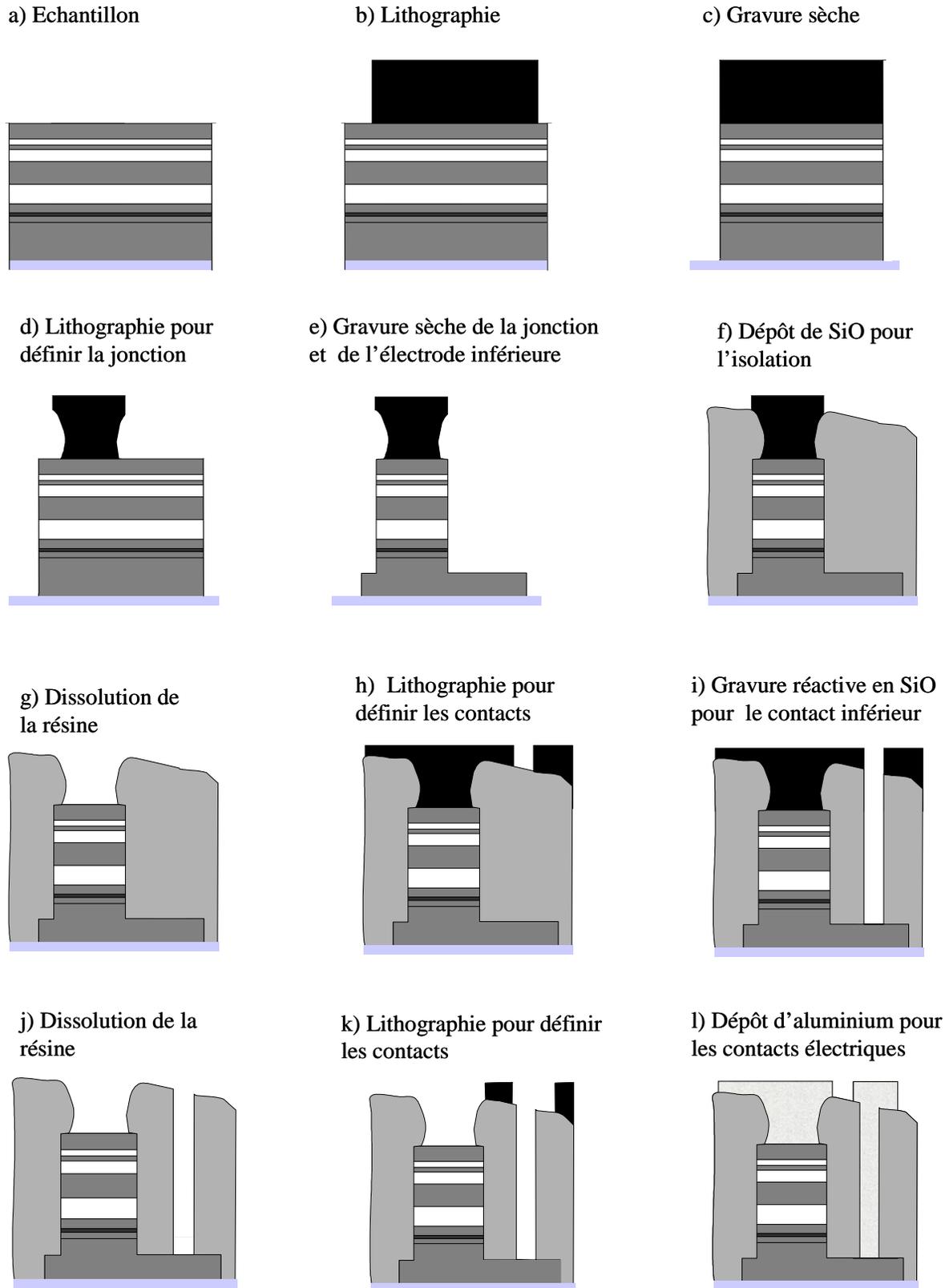
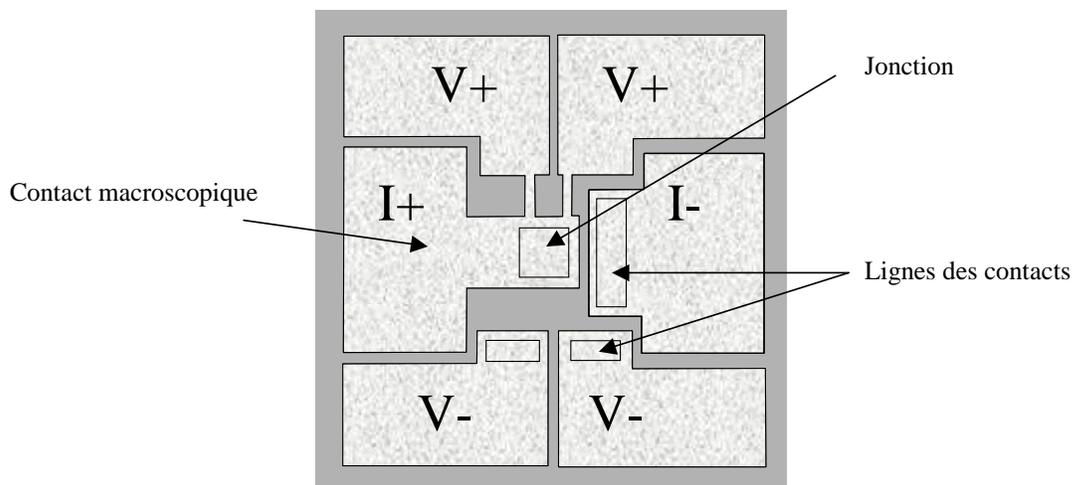


Figure 2.1.2.1 Etapes utilisées pour la photolithographie.

La photo-résine employée peut être utilisée en mode positif ou en mode négatif. Dans le mode positif, les parties qui sont exposées à la lumière sont solubles dans le révélateur tandis que dans le processus négatif, après un traitement thermique de la résine et une exposition à la lumière, les parties exposées ne sont pas solubles. Les masques de chrome utilisés permettent d'obtenir des jonctions tunnel avec des tailles latérales de quelques micromètres. Les structures sont définies à l'aide d'une gravure ionique sèche et la gravure des contacts est réalisée à l'aide d'une gravure réactive en atmosphère de  $\text{CH}_4$  avec un contrôle de l'arrêt de la gravure dans la couche de Cu qui fait office de contact inférieur. L'isolation des jonctions est faite en déposant un oxyde de silicium par la technique de dépôt cathodique. Les contacts externes sont aussi déposés par dépôt cathodique : du niobium est d'abord déposé pour un bon mouillage puis de l'aluminium. Toutes les étapes de la lithographie sont présentées dans la figure 2.1.2.1. Finalement, les connexions électriques externes sont faites avec des fils d'aluminium.



**Figure 2.1.2.2** Jonction tunnel après la lithographie (vue en surface).

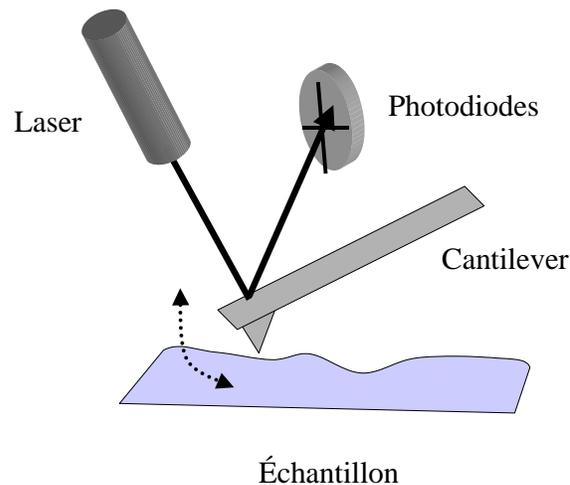
Dans la figure 2.1.2.2 on présente une image d'une jonction tunnel après les étapes de la lithographie. On distingue bien les contacts supérieurs ( $V+$ ,  $I+$ ) et les contacts inférieurs de la jonction ( $V-$ ,  $I-$ ).

## 2.2 Techniques de caractérisation

### 2.2.1 Microscopie à force atomique (AFM)

Pour la caractérisation de la rugosité des substrats et des échantillons nous avons utilisé un microscope à force atomique. En effet, les substrats étant le point de départ de toute la structure que l'on va déposer, il faut avoir les meilleurs substrats possibles en terme de rugosité. La technique de caractérisation à l'aide d'un AFM <sup>[Binnig\_PRL\_86]</sup> est une technique puissante qui nous offre des résultats précis en ce qui concerne la rugosité moyenne sur une surface assez large du substrat.

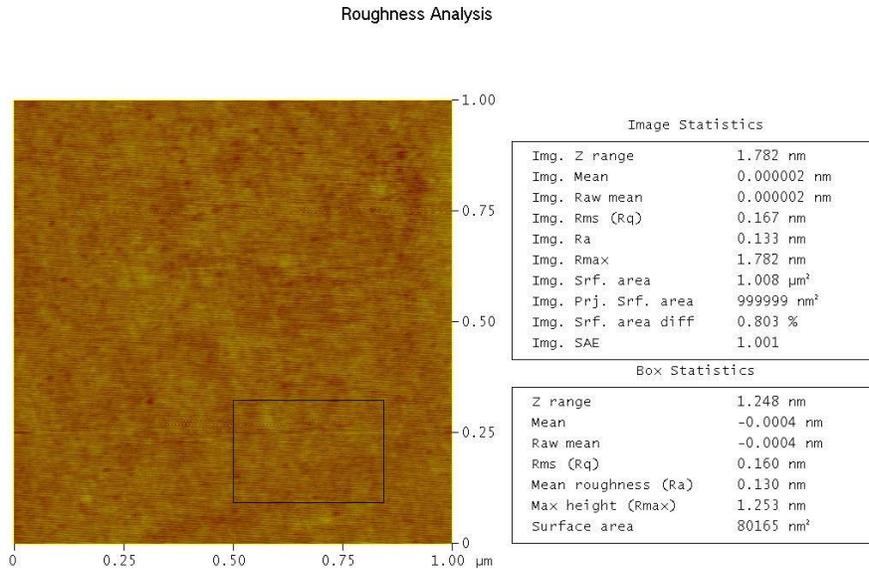
Un microscope à force atomique peut être utilisé en deux modes : mode "contact" et mode "tapping". Pour caractériser nos échantillons nous avons utilisé le mode "tapping". Cette technique permet la formation d'image topographique de haute résolution. Le mode "tapping" surmonte des problèmes liés à la friction, à l'adhérence, aux forces électrostatiques et d'autres difficultés qui interviennent dans les méthodes conventionnelles d'utilisation d'un AFM.



**Figure 2.2.1.2** Schéma de fonctionnement d'un microscope à force atomique.

Le principe de fonctionnement d'un microscope à force atomique repose sur l'interaction électrostatique entre la surface d'un échantillon et les atomes d'une pointe fixée à l'extrémité

d'un cantilever. Quand la distance entre la pointe et l'échantillon est modifiée, l'intensité de la force électrostatique varie. Ainsi, la fréquence d'oscillation est directement proportionnelle au degré de rugosité de l'échantillon. Cette oscillation est déterminée à l'aide de la lumière laser réfléchiée sur le cantilever et détectée par des photodiodes. Cette technique de détection de la lumière offre une sensibilité très grande pour déterminer les mouvements du cantilever.



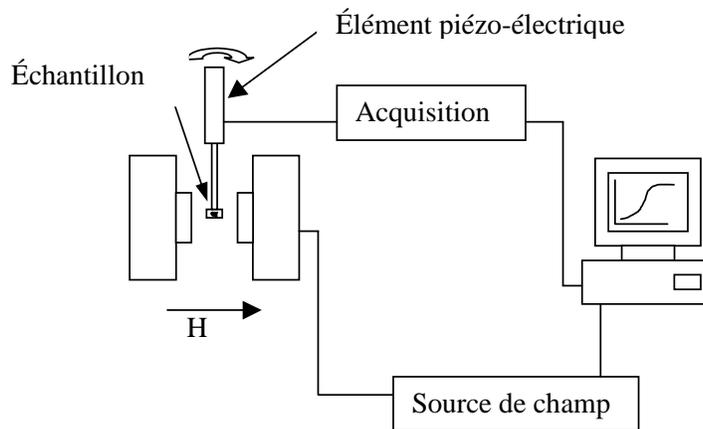
**Figure 2.2.1.3** Analyse de la rugosité d'un substrat de Si/SiO utilisé.

Utilisant cette technique, on peut obtenir une cartographie de la rugosité du substrat ou de l'échantillon ce qui permet de se faire une idée de la qualité de la surface sur laquelle on va faire croître les multicouches. Pour obtenir de bonnes barrières tunnel, nous avons besoin d'une rugosité très petite avec un écart quadratique moyen en-dessous de  $2\text{\AA}$  (figure 2.2.1.3). De plus, si la rugosité est grande, les électrodes ferromagnétiques peuvent être couplées par un "couplage peau d'orange" [Néel\_AcadSci\_62]. Ces couplages empêchent le retournement indépendant de l'aimantation des électrodes magnétiques et vont réduire le signal de magnétorésistance de la jonction tunnel magnétique. De même, une rugosité grande va dégrader la qualité de la barrière isolante et diminuer la magnétorésistance du système.

Les substrats que nous avons utilisés, ont été vérifiés avec l'AFM et l'analyse de rugosité nous donne un écart quadratique moyen d'environ  $0.17\text{\AA}$  ce qui est tout à fait acceptable pour déposer des multicouches sur une surface de Si/SiO.

## 2.2.2 Mesures magnétiques: AGFM (Alternating Gradient Field Magnetometry)

Les mesures magnétiques ont été faites avec un magnétomètre modèle 2900 MicroMag (figure 2.2.2) utilisant une technique modifiée par rapport à la magnétométrie conventionnelle de l'échantillon vibrant. Ce modèle 2900 de MicroMag utilise un gradient de champ alternatif pour produire une force périodique sur l'échantillon qui est monté sur une tige d'extension attachée à un élément piézo-électrique. Le gradient alternatif exerce une force alternative sur l'échantillon proportionnelle à l'importance de la zone de gradient et de l'aimantation de l'échantillon. L'oscillation résultante de la tige d'extension est transmise à l'élément piézo-électrique et le signal de sortie du piézo-électrique est analysé par l'ordinateur. Le signal fourni par l'élément piézo-électrique est considérablement amplifié par le fonctionnement près de la fréquence de résonance mécanique de l'assemblage. Une fonction intégrée au logiciel détermine automatiquement la résonance mécanique et la fréquence de fonctionnement pour l'étude de l'échantillon.



**Figure 2.2.2** Le principe de mesure pour le magnétomètre 2900 MicroMag.

A l'aide de l'AGFM <sup>[Flanders\_JAP\_88]</sup>, nous avons une réponse rapide et précise quant aux propriétés magnétiques des multicouches ferromagnétiques de notre système. Ainsi, on peut étudier les modes de retournement de l'aimantation des couches, estimer les champs coercitifs et aussi apprécier le degré de couplage antiferromagnétique entre les couches ferromagnétiques

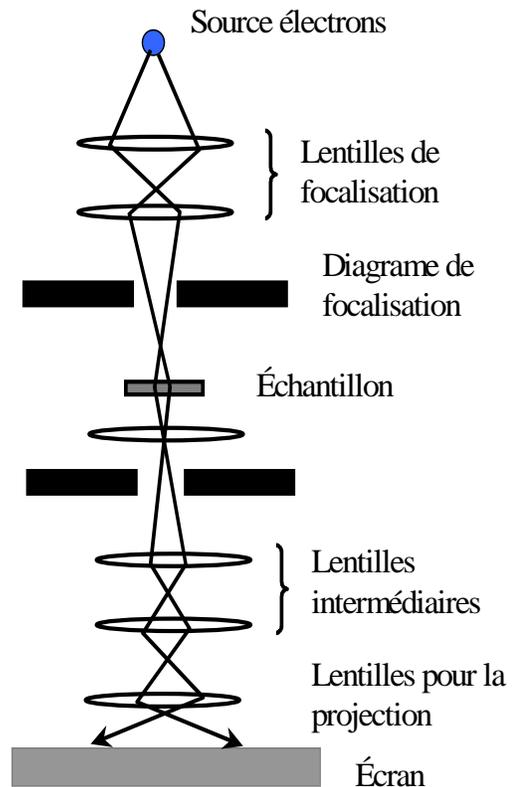
séparées par une fine couche de Ru qui constitue l'électrode "dure" du point de vue magnétique des jonctions réalisées.

### 2.2.3 Microscopie électronique en transmission

La microscopie électronique en transmission est une technique de mesure qui nous permet de visualiser l'empilement des multicouches déposées et d'estimer avec précision l'épaisseur des couches. Dans nos échantillons, l'information fondamentale qui a été obtenue avec cette technique est le degré de continuité des barrières isolantes et de la couche intermédiaire dans les systèmes à deux barrières. Ainsi, à l'aide de cette technique nous avons pu estimer la taille et la forme des amas qui se forment pendant la croissance.

Le mode de fonctionnement d'un microscope à transmission est présenté dans la figure 2.2.3.1. Le principe consiste à faire traverser un échantillon très fin par un faisceau d'électrons et d'imager les effets de cette transmission sur un écran. Le faisceau d'électrons est focalisé sur l'échantillon à l'aide de lentilles et les électrons avec un angle d'incidence trop grand sont éliminés par un diaphragme de focalisation. Une partie des électrons

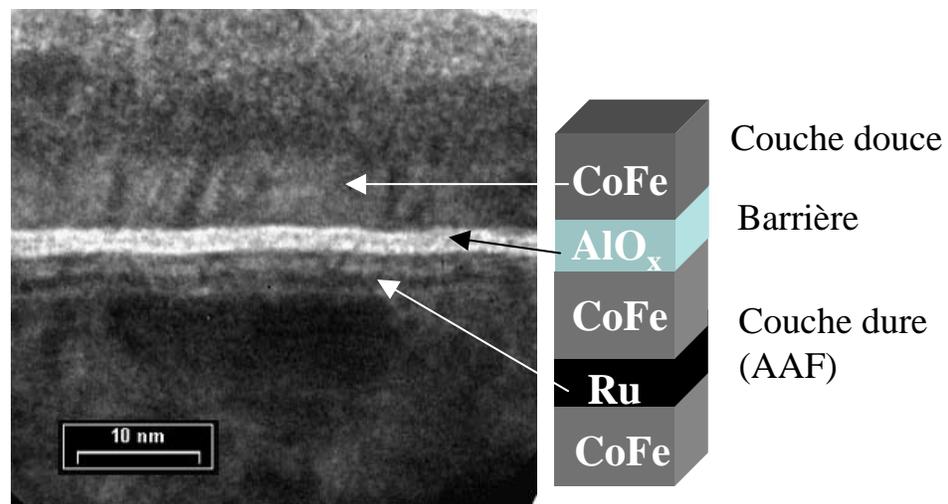
incidents avec une grande énergie sont transmis à travers l'échantillon et l'image est projetée sur l'écran à l'aide de lentilles intermédiaires et de lentilles de projection. Les portions noires de l'image obtenue sont des zones où on a un faible passage des électrons et correspondent aux



**Figure 2.2.3.1** Schéma du fonctionnement d'un microscope électronique à transmission (MET).

régions avec une grande épaisseur ou aux régions "denses" de l'échantillon (numéro atomique élevé ou forte densité d'atomes); les régions blanches de l'image correspondent aux régions de forte transmission des électrons et sont des zones avec une faible "densité" ou une faible épaisseur d'échantillon. Ainsi les oxydes apparaissent généralement en blanc sur les clichés de microscopie électronique à transmission.

Le microscope utilisé est un TOPCON-002B avec une tension d'accélération des électrons de 200kV. Les échantillons ont été amincis de telles façons que les électrons puissent les traverser en section transverse. Dans ce mode, on obtient une image permettant d'étudier la taille des amas, la qualité des interfaces et l'épaisseur des couches déposées. Les images MET ont été faites à l'IPCMS par Gaby Ehret et l'amincissement des échantillons a été réalisé par Gérard Wurtz.



**Figure 2.2.3.2** Image MET d'une jonction tunnel magnétique que nous avons élaboré au cours de cette étude.

Utilisant cette technique de caractérisation, nous pouvons distinguer les différentes couches déposées, l'épaisseur de ces couches et la nature de ces couches. Dans la figure 2.2.3.2, qui correspond à une image MET d'une jonction tunnel magnétique, on voit clairement la grande qualité de la barrière d'alumine en terme de continuité et de rugosité ainsi que le contraste entre les couches métalliques de l'AAF où on peut distinguer la couche fine de Ru (couche plus foncée

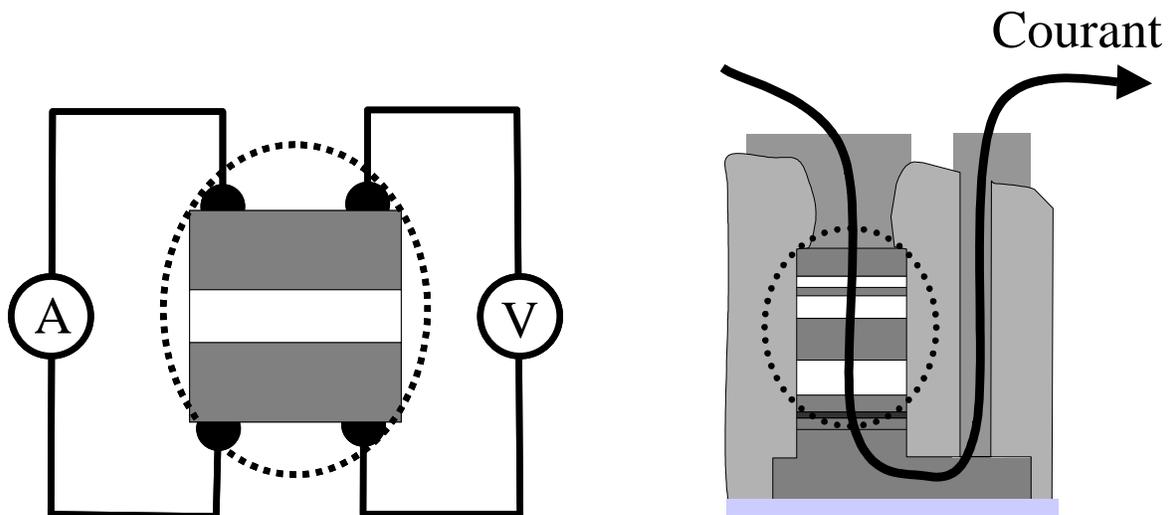
sur l'image) à travers laquelle s'établit le couplage antiferromagnétique au sein de la "couche dure".

### 2.2.4 Mesures de transport

Pour caractériser les échantillons du point de vue du transport électrique, nous avons effectué des mesures avec le courant perpendiculaire au plan de croissance en utilisant la technique à "quatre points" comme représenté par la figure 2.2.4

Cette technique à "quatre points" permet d'éliminer la résistance des fils électriques qui sont impliqués dans la mesure et de ne mesurer que la résistance du dispositif.

Durant la mesure, on peut aussi appliquer un champ magnétique compris entre +12000 Oe et -12 000 Oe afin d'étudier la dépendance en champ de la résistance du dispositif.



**Figure 2.2.4** *Mesure de transport à "quatre points" et ligne de courant à travers la jonction.*

Toutes ces mesures peuvent être réalisées à une température allant de la température ambiante jusqu'à de basses températures ( $\sim 6$  K) utilisant un cryostat fonctionnant à l'He liquide.



## **Chapitre 3**

# **Etude expérimentale de la diode MIMIM**



## Chapitre 3 : Etude expérimentale de la diode MIMIM

Nous avons vu dans le premier chapitre de ce manuscrit que les modèles de transport prédisent qu'il est possible d'obtenir des caractéristiques courant-tension  $I(V)$  asymétriques en utilisant le transport tunnel au sein de multicouches constituées uniquement de métaux et d'isolants. Tous ces modèles ont un point commun: ils nécessitent un système à deux barrières de transmissions bien différentes. On parlera donc de systèmes asymétriques à deux barrières. Pour construire un système asymétrique, on peut jouer uniquement sur les épaisseurs des barrières, ou uniquement sur les hauteurs de barrières ou encore sur les deux paramètres à la fois. Pour le cas où l'on ne joue que sur les épaisseurs, même si à première vue il paraît simple de déposer des barrières d'épaisseurs différentes, il faut calibrer le temps d'oxydation pour chaque épaisseur afin d'obtenir deux barrières de qualité optimale. Pour les cas où l'on ne joue que sur les hauteurs de barrières, il faut introduire une barrière alternative à celle habituellement utilisée ( $AlO_x$ ) c'est à dire un autre oxyde. Un autre point assez délicat est le choix de la couche intermédiaire qui joue un rôle aussi important que celui des deux barrières. En effet, l'épaisseur et la nature de cette couche vont déterminer la "qualité" du système MIMIM et ses propriétés de transport.

Dans ce chapitre, nous allons explorer les approches mentionnées ci-dessus pour obtenir des caractéristiques courant-tension asymétriques utilisant un système à deux barrières. L'optimisation la diode MIMIM en vue d'une éventuelle utilisation dans une MRAM y est également décrite.

### 3.1 Choix de la structure et des matériaux de la diode MIMIM

Pour initier la croissance de systèmes à deux barrières, nous avons bénéficié de l'expérience accumulée au sein de l'IPCMS durant deux thèses, ayant comme sujet l'élaboration de jonctions tunnel. Pour avoir une faible rugosité des interfaces, nécessaire à l'élaboration de jonctions tunnel, nous avons utilisé un buffer standard qui a été optimisé par Tiusan <sup>[Tiusan\_thèse]</sup> et a ensuite été utilisé dans les études de Dimopoulos <sup>[Dimopoulos\_thèse]</sup> pour l'élaboration de jonctions

tunnel magnétiques simples. Ce buffer est constitué de plusieurs couches métalliques : Cr(1.6nm)/Fe(6nm)/Cu (30nm) déposées sur un substrat de SiO. Il a été montré que ce buffer se comporte comme un très bon point de départ pour la croissance de jonctions tunnel et que la couche de Cu va permettre d'établir le contact électrique inférieur après la phase de lithographie des jonctions.

Comme l'objectif final sera d'intégrer une jonction tunnel avec la diode MIMIM, nous avons conservé l'électrode magnétique inférieure traditionnellement employée et réalisée à l'aide d'une multicouche (CoFe(1.5nm)/Ru(0.8nm)/CoFe(3nm) (Artificial antiferromagnet AAF ([Van den Berg\_JMMM\_97], [Van den Berg\_IEEE\_96], [Tiusan\_PRB\_00]) faisant office de couche "dure" magnétique. Dans ce cas, cette multicouche magnétique va composer l'électrode inférieure du système à deux barrières. Cette électrode peut jouer un rôle du point de vue magnétique si la couche métallique entre les deux barrières est elle même magnétique et dans ce cas, l'AAF va être l'électrode d'aimantation "dure". Dans tous les cas, l'AAF permet d'avoir une faible rugosité pour y déposer les barrières.

Les barrières utilisées sont constituées d'alumine ( $\text{AlO}_x$ ) et sont réalisées par oxydation d'une couche d'aluminium par plasma réactif [Greiner\_JAP\_71] dans une atmosphère composée d'un mélange d'argon et d'oxygène. La calibration [Dimopoulos\_APL\_2001] des temps d'oxydation est très importante et va conditionner la qualité des barrières obtenues. Une sous-oxydation des couches d'Aluminium va produire des barrières avec des hauteurs faibles et un transport mettant en jeu des contributions complexes. Ainsi, on peut avoir des parties métalliques d'aluminium qui ne sont pas oxydées et qui vont modifier le processus de transport à travers la barrière. De même, une sur-oxydation de la barrière entraînera un début d'oxydation de l'électrode métallique inférieure et, dans ce cas, la barrière devient trapézoïdale mais surtout la polarisation magnétique d'interface de l'électrode est partiellement perdue. Dans tous les cas, la barrière utilisée dans une jonction magnétorésistive doit résulter d'une oxydation optimale, sinon le signal magnétorésistif sera faible, voire nul.

Nous avons choisi de réaliser des barrières asymétriques en épaisseur : la première barrière aura une épaisseur nominale d'environ 1.8 nm et la seconde barrière aura l'épaisseur la plus fine possible tout en préservant la continuité de la couche d'oxyde, c'est à dire autour de 0.8 à 1 nm. En principe, ce type de structure nous place dans les conditions des calculs menés par Chshiev et collaborateurs [Chshiev\_EPL\_02].

La couche métallique intermédiaire dans ces structures à deux barrières joue un rôle majeur en ce qui concerne la structure et le transport. Ainsi l'épaisseur de cette couche conditionne le type de transport obtenu. Le mécanisme de transport est cohérent si cette couche est fine (quelques nanomètres dans le cas métallique) ou non cohérent si la couche est épaisse. Il faut choisir un métal ayant un grand libre parcours moyen électronique afin d'éviter de détruire la cohérence (si on se place dans un modèle résonant) et pour conserver l'énergie des électrons (si on se place dans un modèle d'électrons "chauds"). De toutes façons, une couche métallique fine est nécessaire quelque soit le modèle considéré. De même, la nature de la couche va influencer énormément sa croissance : pour avoir une couche fine continue, il faut avoir un très bon mouillage de l'alumine par le matériau déposé. De plus, une couche plane nous permettra de faire croître une seconde barrière de très bonne qualité. Parmi les métaux disponibles dans notre bâti de pulvérisation, nous avons étudié différentes couches intermédiaires : Cu, Al, Ru et Co. Dans ce chapitre nous ne présentons que les résultats obtenus pour les cas du Cu et de l'Al (qui donnent les résultats les plus remarquables), les cas du Ru et du Co sont regroupés en annexe de ce manuscrit. Chacun de ces métaux nous offre la possibilité d'élaborer différents systèmes à deux barrières qui vont être étudiés dans les paragraphes suivants.

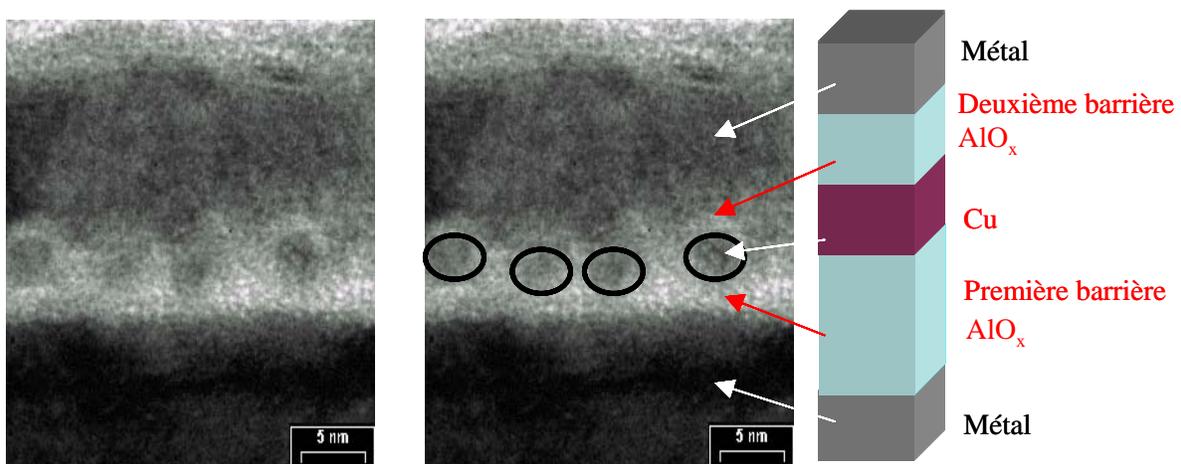
### **3.2 Transport dans les systèmes à deux barrières avec une couche intermédiaire de Cu**

Sun et Freitas <sup>[Sun\_JAP\_99]</sup> ont utilisé pour la première fois une couche de Cu déposée après la barrière d'alumine et ont étudié la dépendance de la magnéto-résistance en fonction de l'épaisseur de cette couche non magnétique <sup>[Moodera\_PRL\_99], [Yuasa\_Sci\_02]</sup> insérée entre l'électrode ferromagnétique et la barrière. Les résultats obtenus sont interprétés en termes d'un état de résonance dans cette couche métallique. Prenant ce résultat en compte, nous avons étendu cette idée d'état de résonance au cas d'une couche fine de Cu insérée entre deux barrières d'alumine.

Nous avons élaboré des échantillons avec différentes épaisseurs pour la couche intermédiaire tout en gardant constant le facteur d'asymétrie en épaisseur des barrières (1.8 nm

pour la première et 0.8-1 nm pour la seconde). Ces échantillons sont déposés lors d'une même série dans notre bâti de pulvérisation en utilisant différents temps d'évaporation pour le Cu. L'épaisseur nominale déposée pour la couche de Cu a été variée (0.5 nm, 0.75 nm, 1 nm, 1.25 nm, 1.5 nm, 2 nm, 3 nm) afin de mettre en évidence une possible résonance. Nous avons choisi ces épaisseurs en espérant faire croître une couche continue très fine et obtenir des états de résonances afin d'observer une asymétrie entre les courants direct et inverse. Pour les faibles épaisseurs, la croissance du Cu sur l'alumine ne se fait pas couche par couche et la couche de cuivre est loin d'être continue. Nous avons une croissance en amas pour des épaisseurs de cuivre comprises entre 0.5 et 1.5 nm et on n'atteint le régime de percolation totale des amas que pour une épaisseur supérieure ou égale à 3 nm de Cu où la couche devient alors complètement continue. Dans le régime des épaisseurs intermédiaire de 1.5 nm à 3 nm, la couche de Cu se compose d'amas isolés, partiellement mélangés avec des amas percolés. Ce type de croissance va être à l'origine d'inhomogénéités d'une jonction à l'autre dans le régime de croissance en amas. Des fluctuations de forme et de diamètre des amas vont se traduire par de fortes fluctuations de la résistance d'une jonction à l'autre mais surtout par de fortes variations de la forme des caractéristiques courant-tension.

La caractérisation structurale de ces échantillons a été faite à l'aide de la microscopie électronique en transmission et nous permet de bien distinguer l'empilement des couches de la structure. La microscopie permet aussi de mettre en évidence les amas de cuivre et d'estimer leur



**Figure 3.2.1** Image MET brute (à gauche) et avec le contour des amas en surimpression (à droite) pour une couche intermédiaire de Cu d'épaisseur nominale égale à 1nm.

forme et leur taille (figure 3.2.1). On constate ainsi que la distribution de ces amas est relativement régulière. Ceci montre que faire croître une couche métallique fine et continue sur la surface d'un isolant est assez difficile par la technique de pulvérisation cathodique ce qui peut s'expliquer par la grande différence d'énergie de surface entre un isolant et un métal.

Nous avons choisi d'utiliser le cuivre parce que nous avons voulu utiliser un métal ayant un grand libre parcours moyen des électrons afin de favoriser l'apparition d'états localisés et de conserver l'énergie des électrons lorsqu'ils traversent la couche. Par contre, la croissance par amas du Cu va modifier la cohérence de la fonction d'onde associée aux électrons et les effets d'origine quantique ne sont que plus complexes.

L'étude structurale à l'aide de la MET montre que les amas ont des diamètres proches de 3 nm et que la taille et la forme ne diffèrent pas fortement d'un amas à l'autre pour l'épaisseur nominale déposée de 1 nm. On peut alors s'attendre à avoir des états discrets dans ces amas qui vont permettre, comme les états discrets dans une couche continue, une forte transmission des électrons à travers la structure par effet de résonance. Ainsi, même une assemblée d'amas peut favoriser l'existence d'états quantiques à condition que la distribution en taille des amas ne soit pas large.

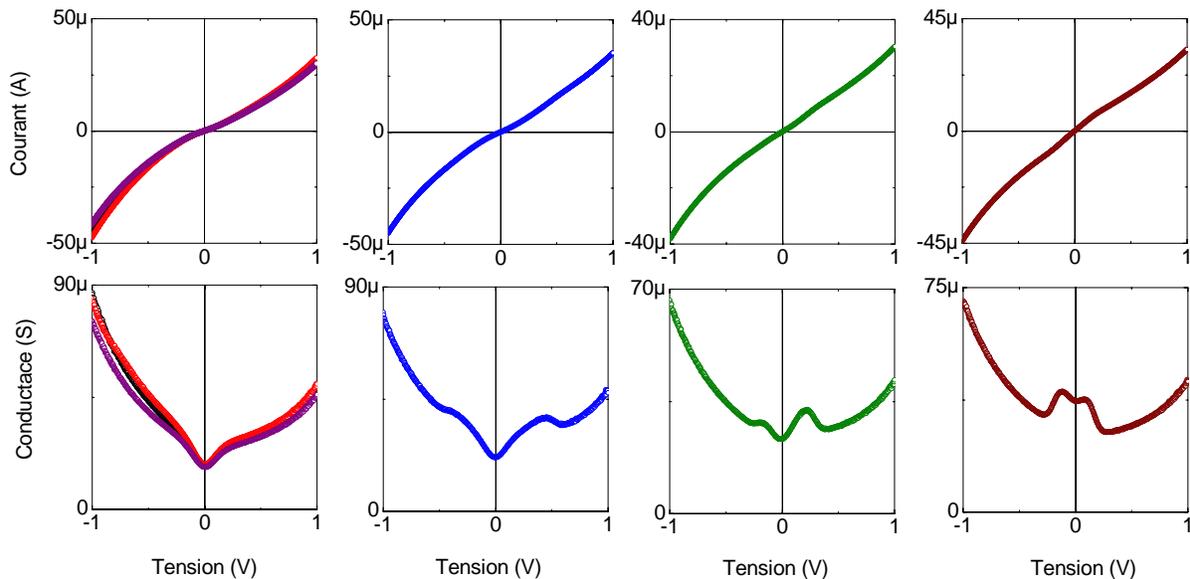
### **3.2.1 Etude statistique du transport dans un système à deux barrières avec une couche intermédiaire de Cu**

Comme vu dans le paragraphe précédent, la croissance de la couche intermédiaire de cuivre prise entre les deux barrières ayant une épaisseur comprise entre 0.5 et 1.25 nm produit des amas de Cu isolés les uns des autres. A travers ces amas, le processus de transport est complexe et il peut avoir de multiples contributions. De plus, comme nous allons le montrer plus loin, dans certains intervalles de température, on peut avoir coexistence ou non de différents processus de transport.

Pour mieux comprendre ces processus de transport, nous avons élaboré de nombreuses jonctions tunnel pour chaque épaisseur de cuivre étudiée afin d'avoir la possibilité de caractériser plusieurs jonctions du point de vue du transport à la température ambiante et de mener une étude

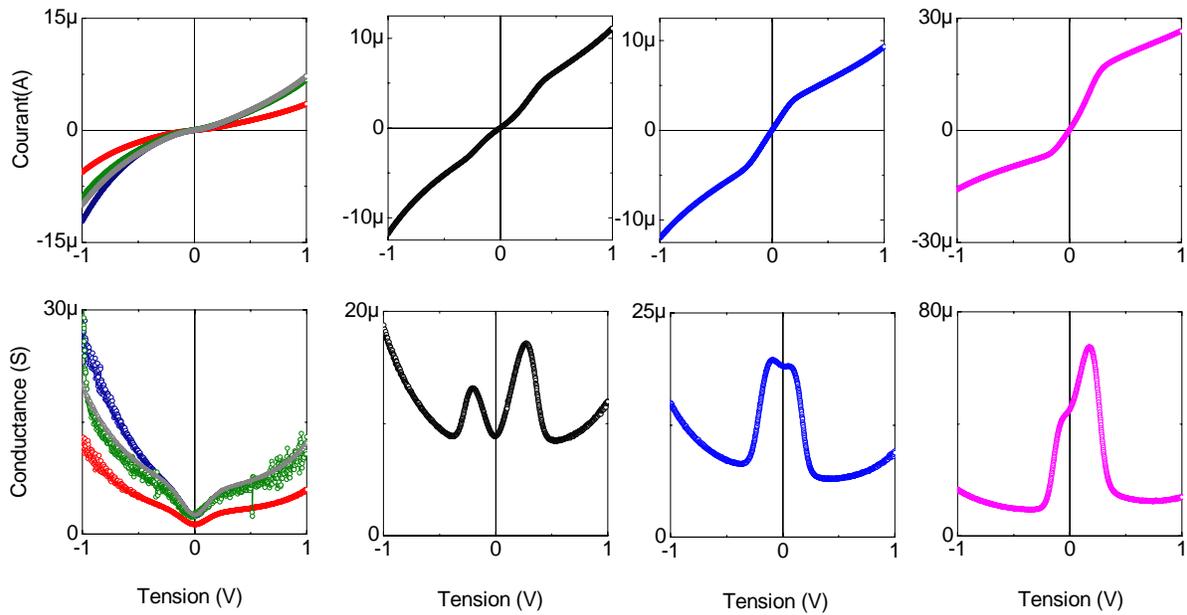
statistique. Avec cette étude, on peut se faire une idée de l'influence de la distribution des amas de Cu sur les caractéristiques courant-tension.

Pour une épaisseur nominale déposée de 0.5 nm de Cu (figure 3.2.1.1), on s'attend aussi à avoir des amas de petite taille insérés entre les deux barrières. La distribution de la taille des amas, ainsi que de leur forme engendrent des fluctuations de la résistance des jonctions tunnel mesurées ainsi que de la forme des courbes. Dans la figure sont présentés différents types de courbes courant-tension mesurées ainsi que les conductances correspondantes. On observe une dispersion des résultats et pour certaines jonctions on distingue clairement des régions de forte conduction dans les courbes de conductance. Toutes ces jonctions ont la même surface ( $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ ) et la seule différence provient de la distribution des amas d'une jonction à l'autre.

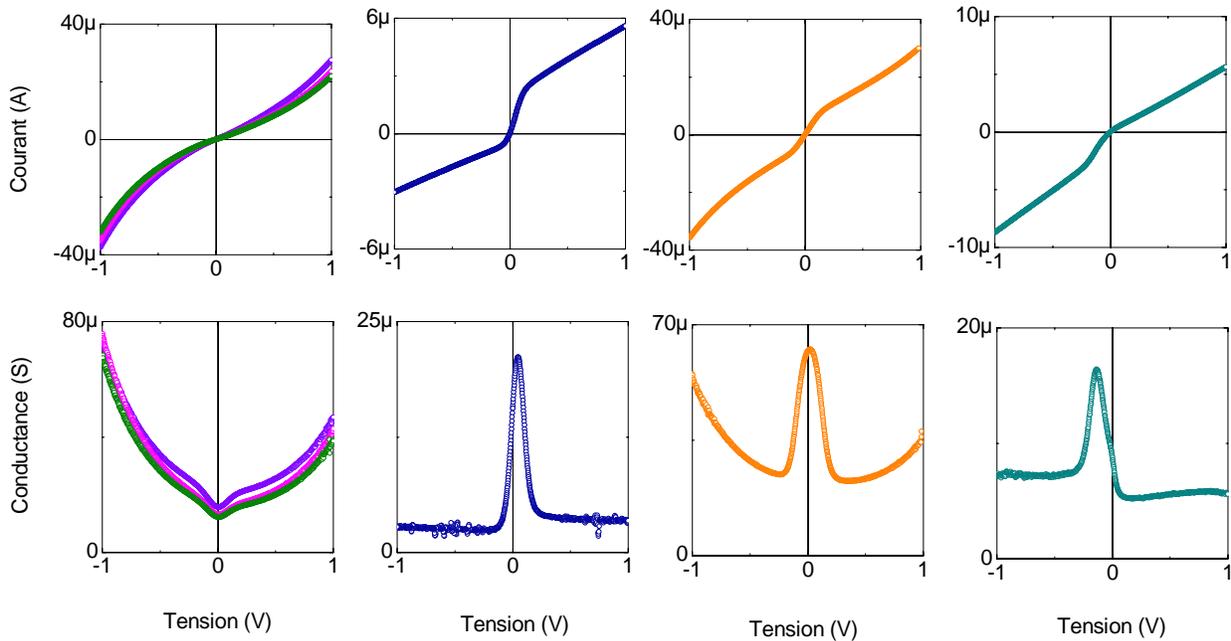


**Figure 3.2.1.1** Caractéristiques courant-tension pour quelques jonctions à deux barrières avec 0.5 nm d'épaisseur nominale de Cu comme "couche intermédiaire".

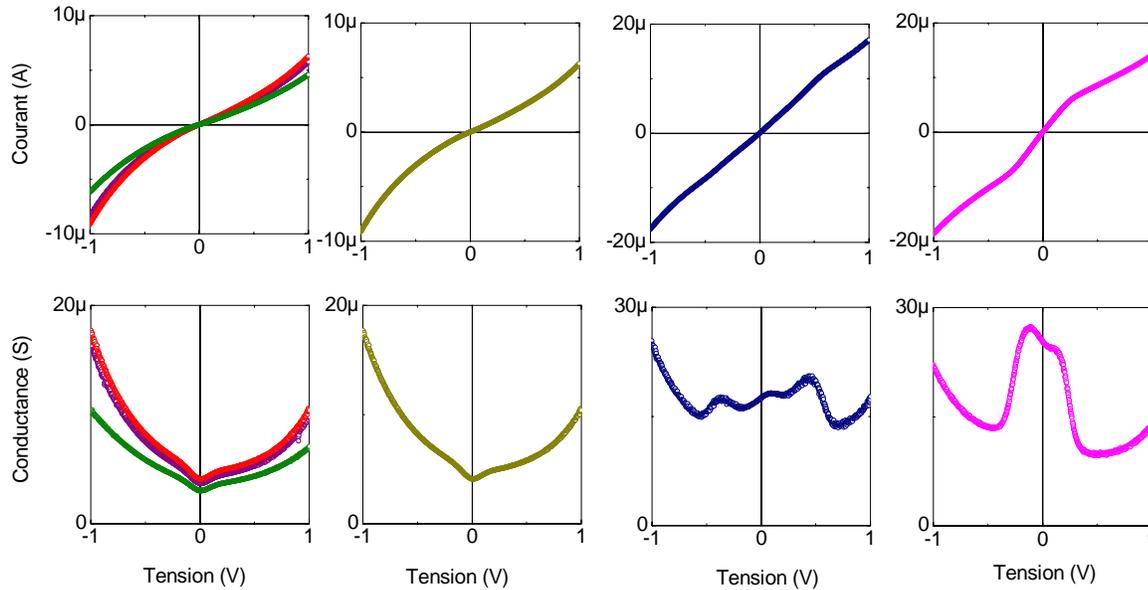
Des caractéristiques similaires sont observées dans la figure 3.2.1.2 où l'épaisseur nominale de la "couche intermédiaire" est de 0.75 nm et où le transport se fait toujours par les amas de Cu.



**Figure 3.2.1.2** Caractéristiques courant-tension pour quelques jonctions à deux barrières avec 0.75 nm d'épaisseur nominale de Cu comme "couche intermédiaire".



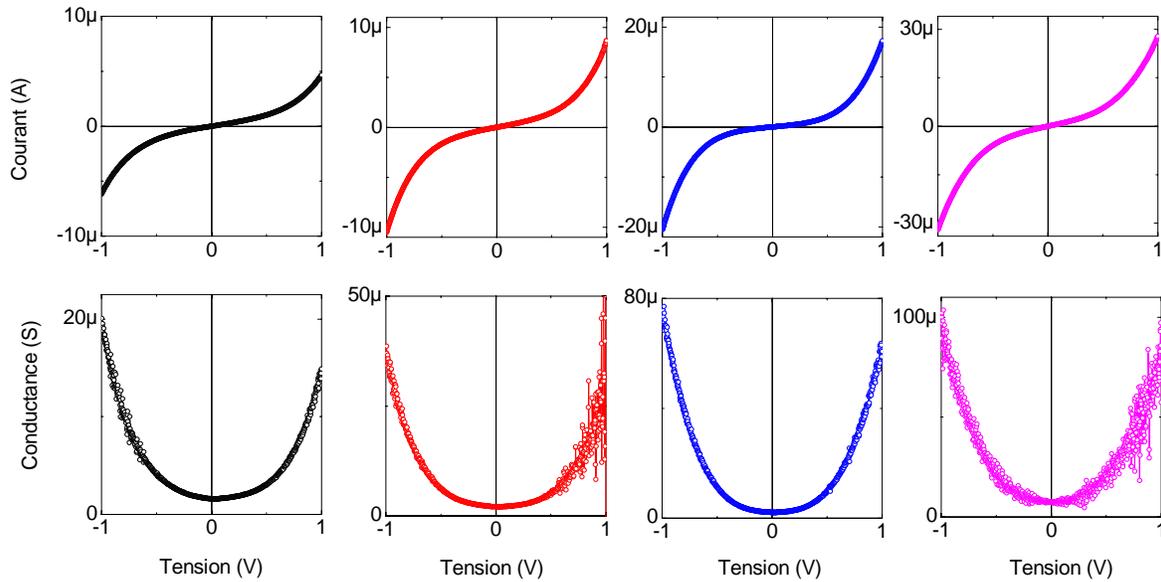
**Figure 3.2.1.3** Caractéristiques courant-tension pour quelques jonctions à deux barrières avec 1 nm d'épaisseur nominale de Cu comme "couche intermédiaire".



**Figure 3.2.1.4** Caractéristiques courant-tension pour quelques jonctions à deux barrières avec 1.25 nm d'épaisseur nominale de Cu comme "couche intermédiaire.

Le transport à travers une telle structure où l'une des couches est formée d'amas n'est pas facile à comprendre : les différentes courbes que l'on mesure suggèrent que des états bien localisés dans les amas ont une contribution dominante au courant. Ces états varient fortement d'un amas à l'autre ce qui peut expliquer qualitativement la diversité des résultats. Par exemple, dans le cas de 1 nm de Cu déposé (figure 3.2.1.3), certaines courbes présentent des pics de très forte conductance. Ceci est valable aussi dans le cas de 1.25 nm de Cu déposé (figure 3.2.1.4). Ceci montre très clairement que la nature de la couche intermédiaire joue un rôle très important sur le transport dans une structure à deux barrières.

Tous ces pics de forte conductance disparaissent une fois que l'épaisseur déposée de la couche de Cu devient supérieure à 3 nm (figure 3.2.1.5) où on a coalescence des amas et où la couche de Cu devient continue. Cependant, bien qu'elle soit continue, elle va présenter des fluctuations spatiales de son épaisseur qui proviennent de la percolation des amas ayant eu différentes distributions de taille. Dans ce dernier cas, la forme des courbes ne change pas beaucoup d'une jonction à l'autre car le système devient analogue à deux jonctions tunnel en série. C'est ainsi que l'on peut expliquer qualitativement la variation des résistances dans ce type de jonction.



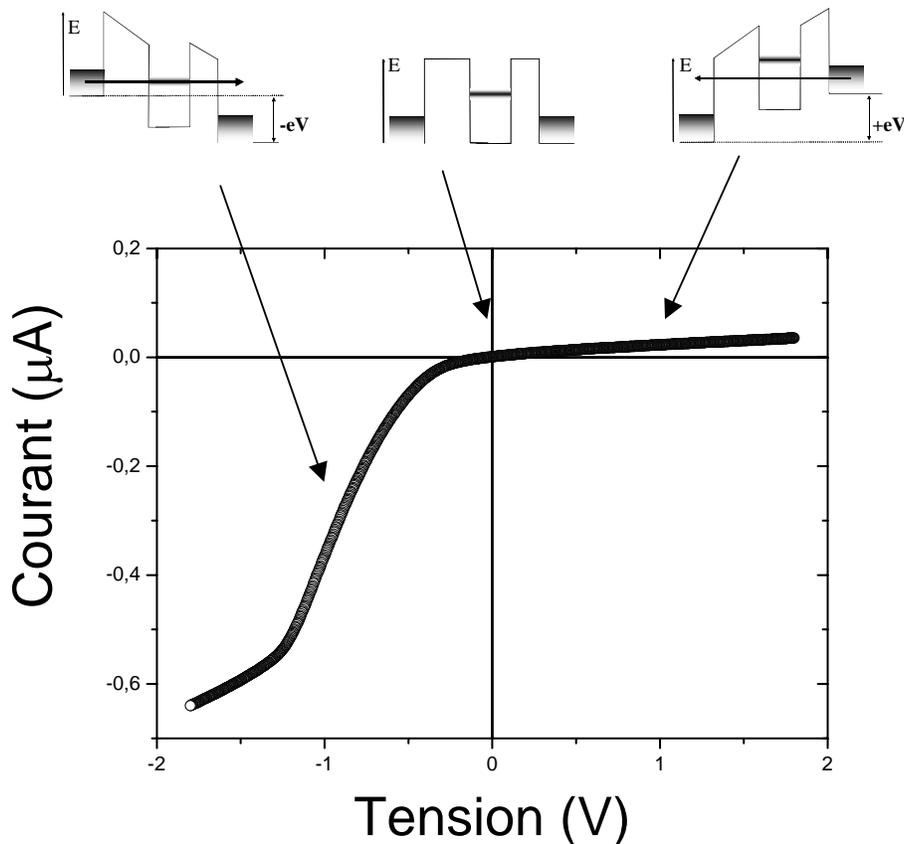
**Figure 3.2.1.5** Caractéristiques courant-tension pour quelques jonctions à deux barrières avec 3 nm d'épaisseur nominale de Cu comme "couche intermédiaire".

De cette étude statistique, il ressort que l'épaisseur de la couche intermédiaire joue un rôle important dans le système à étudier et elle détermine notamment la cohérence du transport : on a un transport résonant à travers les amas et un transport non résonant à travers la couche continue. Les canaux de forte conduction sont ceux qui passent par les amas où on a une forte probabilité d'avoir des états localisés qui vont donner lieu à un très grand courant par effet de résonance. Malheureusement avec notre méthode d'élaboration, il est particulièrement délicat de contrôler la distribution de ces amas et donc d'avoir des amas de même diamètre.

Cette étude statistique nous montre la variété de courbes que l'on peut obtenir et montre qu'il est nécessaire de mesurer plusieurs jonctions afin d'avoir une vision plus globale de leur comportement. Parmi ces échantillons, nous avons mesuré des caractéristiques courant-tension présentant une grande asymétrie en courant.

### 3.2.2 Asymétrie en courant dans les structures à deux barrières avec une couche intermédiaire de Cuivre

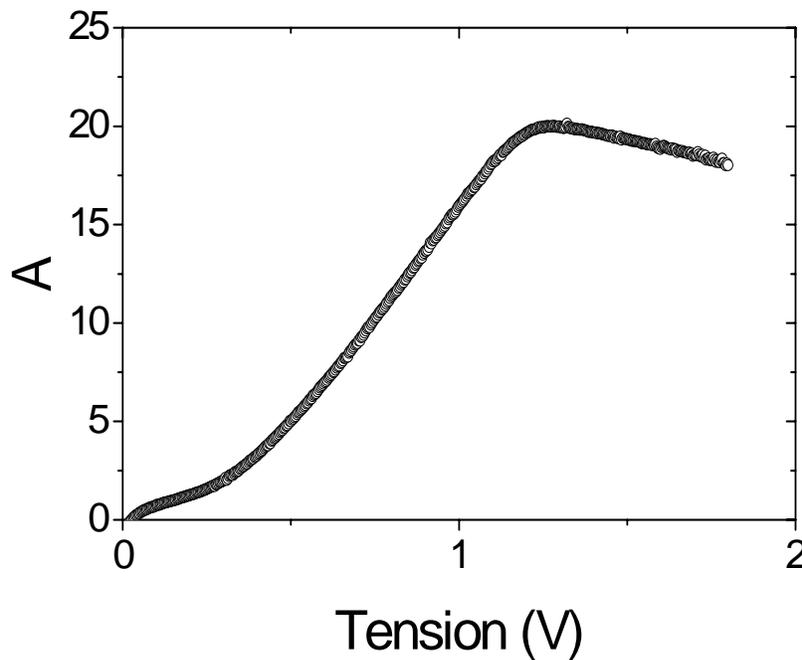
Le but principal de cette étude des structures à deux barrières métal/isolant est d'obtenir des caractéristiques courant-tension asymétriques c'est à dire telles que le rapport  $|I(-V)/I(V)|$  est très différent de 1. La démarche suivie a été de varier (i) l'asymétrie en épaisseur des deux barrières et (ii) l'épaisseur de la couche métallique intermédiaire. Nous avons vu dans le paragraphe précédent que la forme de la courbe  $I(V)$  et l'intensité du courant varient d'une jonction à l'autre une fois que la couche intermédiaire est constituée d'amas. Parmi ces courbes, certaines sont asymétriques mais nous avons mesuré des courbes  $I(V)$  d'asymétrie beaucoup plus évidente dans certains cas (figure 3.2.2.1). Dans ce cas, on a blocage du courant en tension



**Figure 3.2.2.1** Caractéristique courant-tension asymétrique pour deux barrières séparées par 1 nm de Cu d'épaisseur nominale et représentation schématique du processus de transport pour  $V < 0$ ,  $V = 0$  et  $V > 0$ .

positive et une forte conduction du courant en tension négative. Ce résultat est très prometteur en ce qui concerne la possibilité d'utiliser ces structures à deux barrières pour obtenir des caractéristiques courant-tension asymétriques <sup>[Tiusan\_APL\_2000]</sup> et valide surtout notre approche.

Dans la partie supérieure de la figure 3.2.2.1 est présenté un schéma pour une interprétation possible des résultats et le profil de potentiel lorsqu'on applique une tension positive ou négative sur la structure. Si on se place dans un modèle résonant, où on a des états discrets bien définis dans les amas qui constituent la couche "intermédiaire", l'énergie des électrons correspond ou non à ces niveaux lorsqu'on varie la tension selon la position en énergie de ces états et le profil de potentiel de la structure. Dans le cas où l'énergie des électrons correspond à ces états, la probabilité de transmission est grande ce qui va donner un grand courant, sinon le courant est faible. L'asymétrie est représentée dans la figure 3.2.2.2.



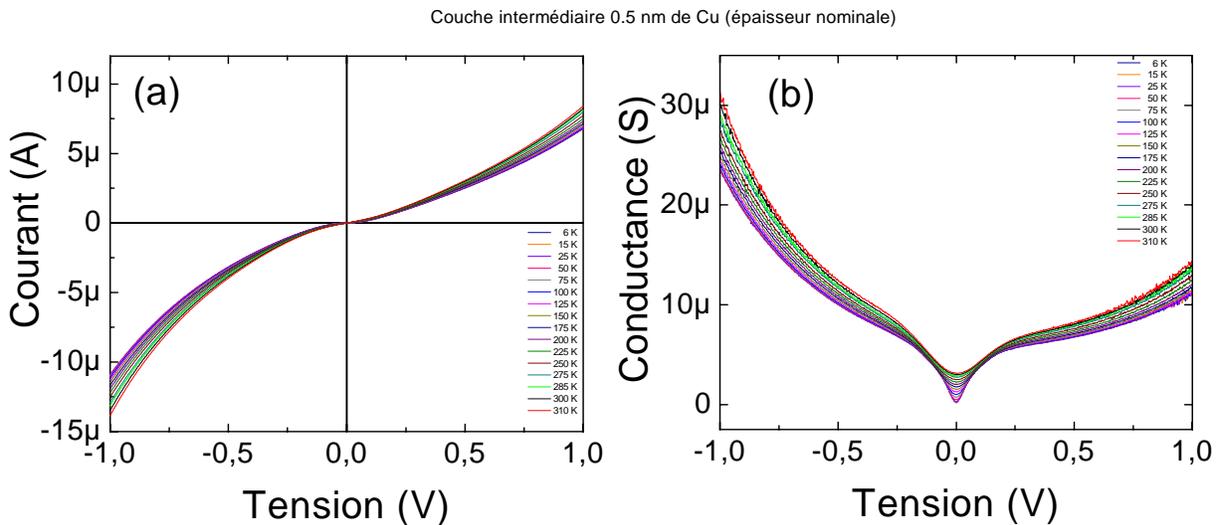
**Figure 3.2.2.2** Asymétrie du courant pour une structure à deux barrières avec une épaisseur nominale de Cu égale à 1 nm.

L'asymétrie est maximale pour 1.3 V : la position de ce maximum est importante pour des applications en microélectronique puisqu'il est préférable d'avoir ce maximum à une tension inférieure à 1 V (d'habitude les dispositifs en microélectronique fonctionnent à des tensions inférieures à 1V).

### 3.2.3 Étude en température de structure à deux barrières avec une couche intermédiaire de Cuivre

Comme nous l'avons vu précédemment, la série des échantillons avec une couche intermédiaire de Cuivre nous offre une multitude de caractéristiques courant-tension différentes (en forme, en résistance et en asymétrie). Une étude en température peut nous donner des informations sur les processus physiques ayant lieu lors du passage du courant à travers ces structures. Nous avons suivi cette démarche en abaissant la température de mesure de la température ambiante jusqu'à 6 K à l'aide d'un cryostat utilisant de l' Hélium liquide.

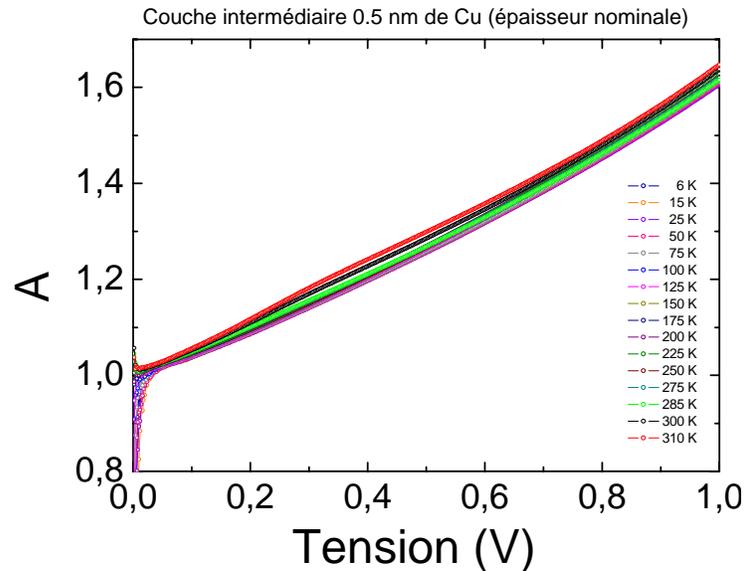
Nous avons mesuré plusieurs échantillons en fonction de la température et nous ne présentons que les résultats les plus intéressants et représentatifs des différents cas rencontrés.



**Figure 3.2.3.1** (a) Caractéristiques courant-tension en fonction de la température pour une structure à deux barrières tunnel avec 0.5 nm d'épaisseur nominale de Cu comme "couche intermédiaire" et (b) les conductances correspondantes.

Dans la figure 3.2.3.1 sont présentées les caractéristiques courant-tension en fonction de la température pour une épaisseur nominale de 0.5 nm de cuivre de la "couche intermédiaire". Dans ce cas, comme pour les jonctions simples, la résistance de la jonction ne dépend pas fortement de la température. Les conductances présentent une anomalie pour de faibles tensions

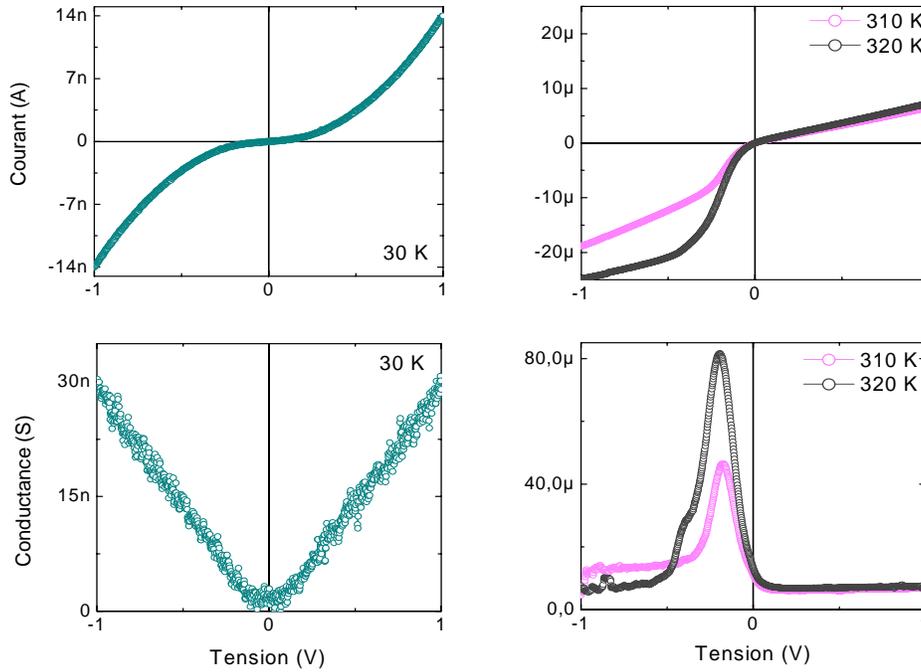
et cette anomalie est de plus en plus évidente pour des températures basses. L'origine de cette anomalie résulte de l'interaction électron-phonons AIO dans la barrière [Dimopoulos\_thèse].



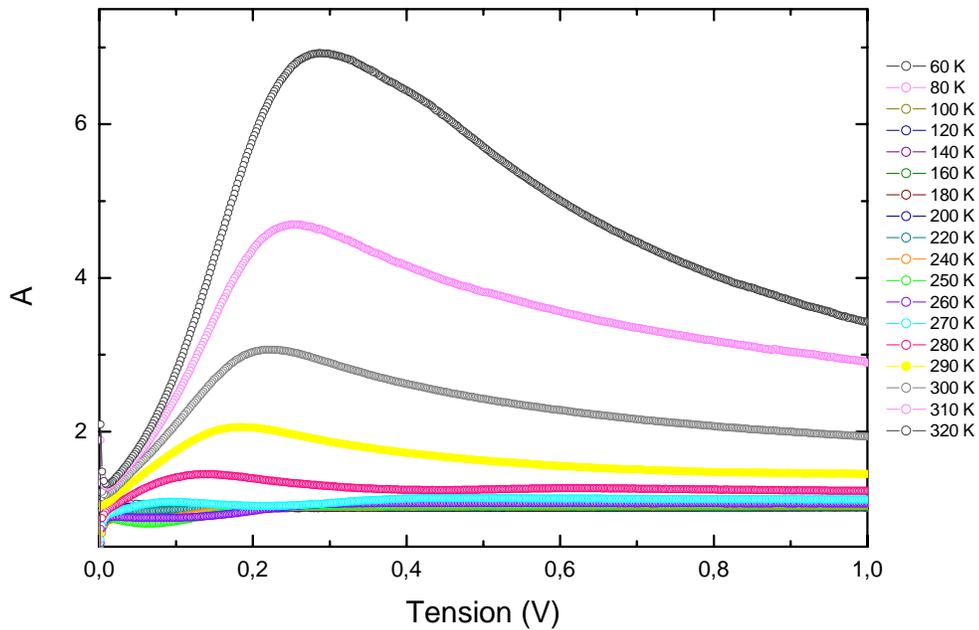
**Figure 3.2.3.2** Asymétries du courant de la figure 3.2.3.1 en fonction de la température.

En conséquence, l'asymétrie en courant (figure 3.2.3.2) de cette jonction ne présente pas une forte dépendance en température et les valeurs maximales de l'asymétrie obtenues au maximum de tension appliquée ne changent pas fortement avec la température. Ce résultat ressemble beaucoup à celui obtenu pour une seule jonction. Ceci peut s'expliquer si on envisage qu'une des deux barrières est détruite pendant le processus de lithographie où on a une probabilité non nulle de créer des court-circuits dans les barrières par décharge électrique ou par redépôt des matériaux gravés. Ainsi, la faible asymétrie proviendrait juste des interfaces d'une barrière.

Pour les jonctions avec 1 nm de Cu comme épaisseur nominale, les courbes I-V sont asymétriques à la température ambiante et deviennent symétriques à basse température. (figure 3.2.3.3). Un point très remarquable est la forte dépendance en température de la résistance, qui varie pratiquement de trois ordres de grandeur dans la gamme de température explorée. A la température ambiante, les courbes de conductance présentent deux pics de forte transmission.



**Figure 3.2.3.3** Caractéristiques courant-tension à basse température et à la température ambiante pour une structure à deux barrières avec 1 nm de Cuivre d'épaisseur nominale comme "couche intermédiaire" et les conductances correspondantes.

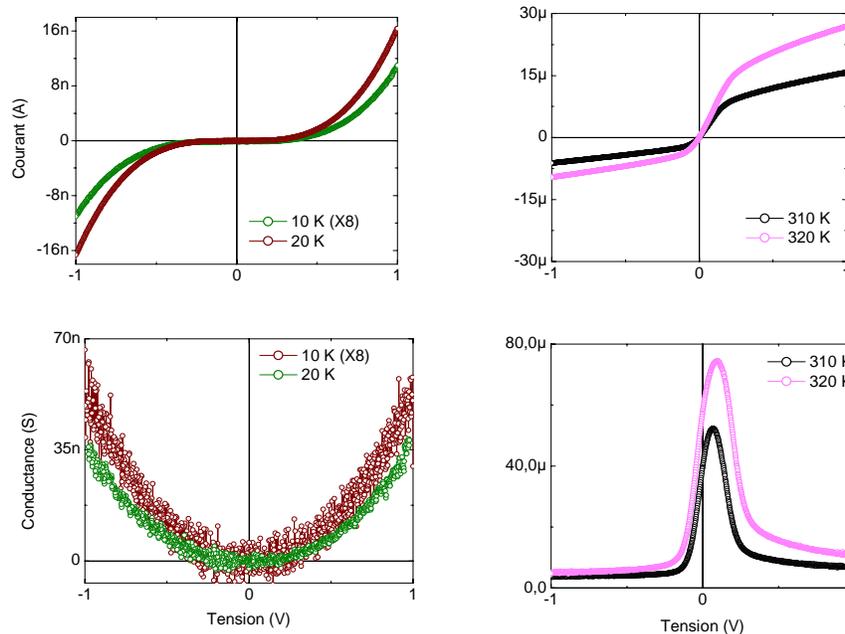


**Figure 3.2.3.4** Asymétrie du courant de la figure 3.2.3.3 pour différentes températures.

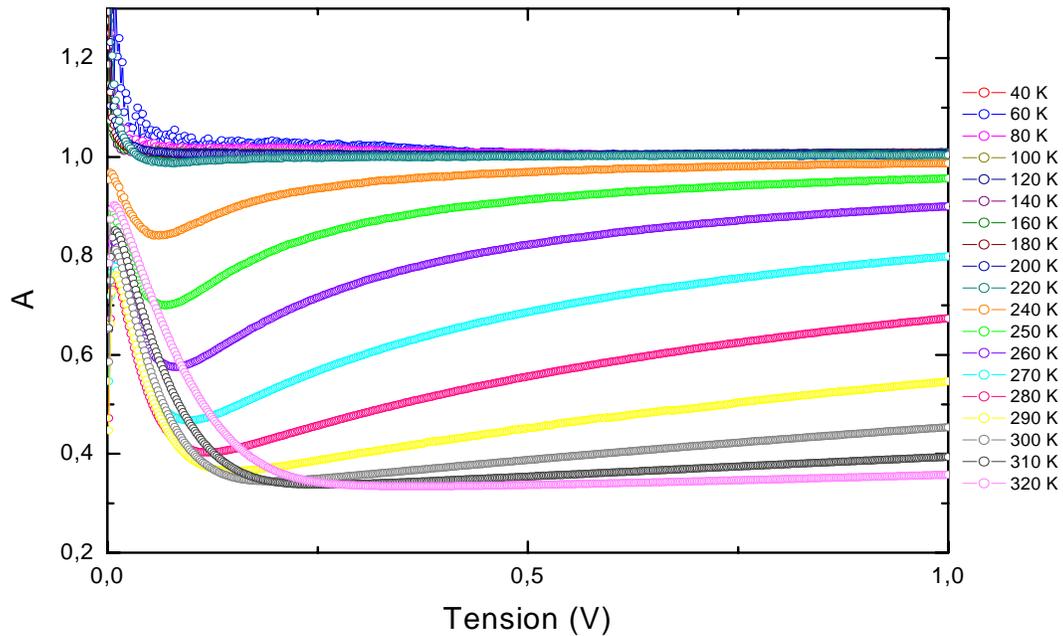
De plus, l'intensité et la position de ces pics dépendent significativement de la température. Enfin, à très basse température, la conductance en tension nulle tend vers zéro ce qui peut résulter de l'apparition d'un blocage de Coulomb à travers les amas de Cu.

Dans la figure 3.2.3.4 est présentée la dépendance en température de l'asymétrie du courant. Etant donné que notre système s'apparente à des amas métalliques noyés dans une barrière isolante, il n'est pas surprenant d'observer du blocage de Coulomb. Lorsqu'on abaisse la température, ce sont les amas les plus petits qui vont bloquer le courant en premier et ce sont ces mêmes amas qui, ayant des états discrets bien écartés en énergie, sont susceptibles de donner la plus forte contribution asymétrique au courant.

Nous avons aussi considéré une jonction qui montre une asymétrie inverse ( $A < 1$ ) c'est à dire que le courant est plus grand lorsque la tension est positive. Quelques caractéristiques courant-tension à la température ambiante et à basse température sont représentées dans la figure 3.2.3.5. La dépendance en température du courant est similaire à celle de la jonction qui montre une asymétrie normale ( $A > 1$ ). De même, on trouve le même comportement pour les conductances avec une conductance nulle autour de la tension nulle. L'asymétrie du courant



**Figure 3.2.3.5** Caractéristiques courant-tension à basse température et à la température ambiante pour une structure à deux barrières avec 1 nm de Cuivre d'épaisseur nominale comme "couche intermédiaire" et les conductances correspondantes.



**Figure 3.2.3.6** Asymétries du courant de la figure 3.2.3.5 pour différentes températures.

pour les différentes températures est représentée dans la figure 3.2.3.6 qui montre clairement la disparition de l'asymétrie lorsqu'on abaisse la température.

Si on examine plus en détails le comportement en température des deux dernières jonctions présentées, on constate clairement qu'elles ont des comportements similaires et que la seule différence est l'asymétrie supérieure ou inférieure à 1. Ceci suggère que le même phénomène physique gouverne le transport dans les deux jonctions et qu'il peut donner des caractéristiques I-V d'asymétrie très variée. Une interprétation possible de ces résultats va être faite dans le prochain paragraphe.

### 3.2.4 Interprétation possible des résultats

Les résultats de l'étude en température ne sont pas très faciles à interpréter du fait de la dispersion observée dans la multitude de caractéristiques courant-tension mesurées. Ainsi, les courbes I-V sont asymétriques à température ambiante et deviennent des courbes complètement symétriques à basse température. De plus, pour une couche continue et épaisse de cuivre, les courbes I-V sont toutes symétriques comme nous avons pu le constater dans l'étude statistique. On peut en conclure que les caractéristiques asymétriques ont pour seule origine le transport à travers les amas. Malheureusement, la contribution de chaque amas au courant total est pratiquement impossible à déterminer. Dans les cas étudiés ici, on peut supposer que les amas ont une distribution de taille telle que l'on a aussi bien des petits amas (1 nm de diamètre) que des amas plus grands (3 à 5 nm de diamètre). Le spectre énergétique des amas de diamètre inférieur à 5 nm commence à être bien défini et, si la taille des amas devient comparable à la longueur de Fermi ( $\lambda_F$ ) du métal constituant les amas, le spectre devient discret [Halperin\_RMP\_86], [Tinkham\_JLTP\_00] et ressemble à celui d'une molécule [Peterson\_JPC\_01]. Ainsi, si la taille des amas est petite ( $\sim 1$  nm), les niveaux énergétiques sont bien séparés. On peut supposer que ces derniers amas participent au transport avec un seul niveau énergétique mais le courant peut être très fort s'il y a résonance sur ce niveau.

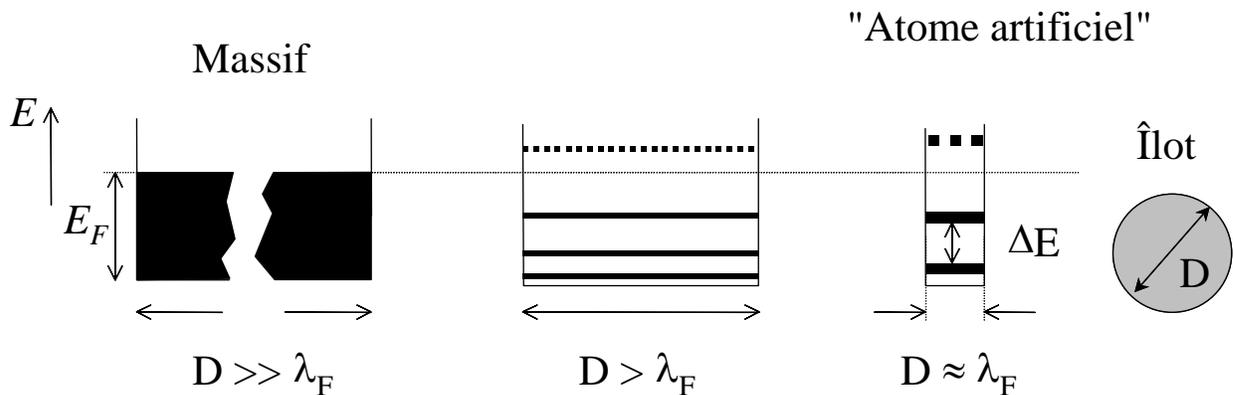


Figure 3.2.4.1 Quantification des états énergétiques en fonction de la taille  $D$  de la structure [Blügel\_FN].

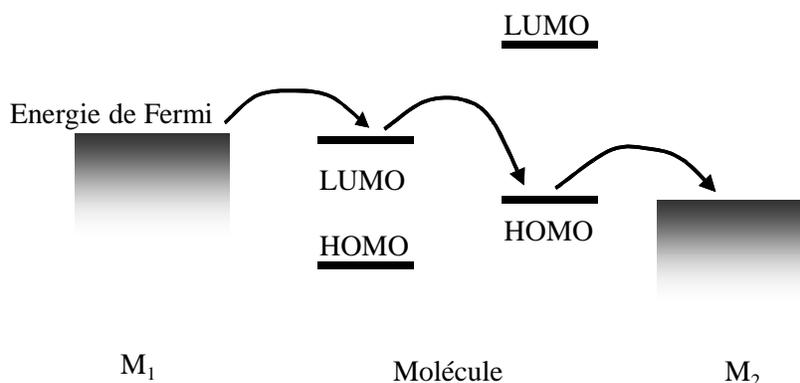
Dans nos échantillons, on peut envisager qu'à la température ambiante le transport à travers un ensemble d'amas de petite taille domine le transport à travers toute la structure. Pour ces amas, en plus du transport par résonance avec les états discrets (figure 3.2.4.1) on pourrait avoir localement du transport par électrons "chauds" à travers la petite partie de la seconde barrière comprise entre l'amas et l'électrode supérieure. Cette hypothèse où les deux modes de transport (par états discrets résonants et par "électrons chauds") coexistent permet assez aisément d'obtenir des caractéristiques courant-tension asymétriques. Cependant, l'étude statistique montre que l'asymétrie des courbes  $I(V)$  n'est pas toujours dans le même sens alors qu'un transport uniquement par des "électrons chauds" privilégie un seul type d'asymétrie et dans ce cas on connaît très bien le signe de la tension pour laquelle la structure conduit. De plus, il est difficile d'obtenir ce régime de conduction avec des structures comme les nôtres puisque les deux barrières sont de même hauteur. Ainsi, le transport via des états discrets résonants dans les amas comme unique source d'asymétrie est une hypothèse raisonnable. A l'aide d'un modèle comme celui-ci, selon la taille des amas on peut avoir différents spectres énergétiques qui participent au transport ce qui peut expliquer les différentes courbes  $I(V)$  obtenues pour des échantillons préparés dans les mêmes conditions expérimentales.

Dans un tel modèle, la dépendance en température de la résistance est exponentielle. La forme des courbes et leur dépendance en température peuvent aussi être expliquées par un modèle de transport via les amas. Dans les modèles présentés dans le premier chapitre, nous avons vu que la capacitance et l'énergie de charge d'un amas jouent un rôle fondamental pour le transport. Ainsi, en fonction de la dimension des amas, cette énergie augmente si leur taille diminue et le transport à travers ces amas ne devient possible que si cette énergie est franchie. En conséquence, les électrons dont l'énergie est inférieure à cette énergie de charge ne vont pas traverser les amas dû au blocage de Coulomb. Pour des amas de taille en dessous de 10 nm, le processus de blocage de Coulomb est aussi possible à la température ambiante <sup>[Ferry\_TN]</sup>.

Notre interprétation des résultats repose sur l'hypothèse que les amas de petite taille ( $\leq 3$  nm), dans lesquels l'existence d'états discrets bien séparés est favorisée, sont à l'origine de l'asymétrie dans les jonctions tunnel à deux barrières. A la température ambiante, tous les amas participent au transport mais les courants qui traversent les petits amas dominent et ils sont asymétriques en tension. Ainsi, dans les jonctions à deux barrières, de nombreux canaux

parallèles de courant asymétrique se trouvent mis en parallèle avec des canaux de courant symétrique. Si on baisse la température, les amas de petite taille commencent à se charger et le transport à travers ces amas est bloqué par blocage de Coulomb. Les canaux de courant à l'origine de l'asymétrie disparaissent et le courant à travers l'ensemble de la structure devient symétrique. La forte dépendance de la conductance en fonction de la température est une indication de plus que le transport se fait à travers les amas. En effet, le nombre d'amas qui se chargent varie exponentiellement avec la température, ce qui a pour conséquence que la conductance dépend fortement de la température.

Nous avons observé une grande similitude (en ce qui concerne l'asymétrie) entre nos résultats et ceux obtenus avec une couche de polymère jouant le rôle de couche intermédiaire. Les systèmes (Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/C16H33Q-3CNQ/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Al) étudiés par Vuillaume [Vuillaume\_Lang\_99] consistent en deux barrières d'Alumine prenant en sandwich une couche de polymère. La couche moléculaire qui est insérée entre les deux barrières présente deux niveaux d'énergie "HOMO" et "LUMO" (figure 3.2.4.2) qui sont responsables de l'asymétrie du courant dans le système entier.



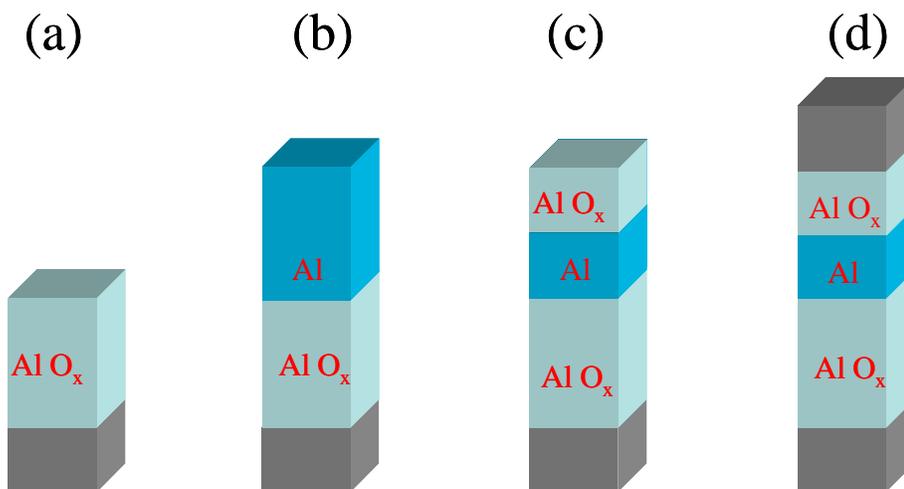
**Figure 3.2.4.2** Transport à travers les niveaux d'une molécule.

Dans ce système, les deux niveaux moléculaires peuvent donner de l'asymétrie (ou rectification) pour les deux sens du voltage ( $A > 1$  ou  $A < 1$ ). La similitude avec nos résultats est une indication supplémentaire du rôle des états discrets au sein de la couche intermédiaire dans notre cas.

### 3.3 Elaboration et caractérisation structurale des structures à deux barrières avec une couche intermédiaire d'aluminium

Afin d'avoir des échantillons avec un bon degré de reproductibilité, il nous a semblé impératif de remplacer la couche intermédiaire discontinue, dont la croissance en amas est difficilement maîtrisable, par une couche intermédiaire continue dont on peut espérer mieux contrôler la croissance. Cependant, faire croître une couche métallique fine et continue sur un isolant reste toujours un défi.

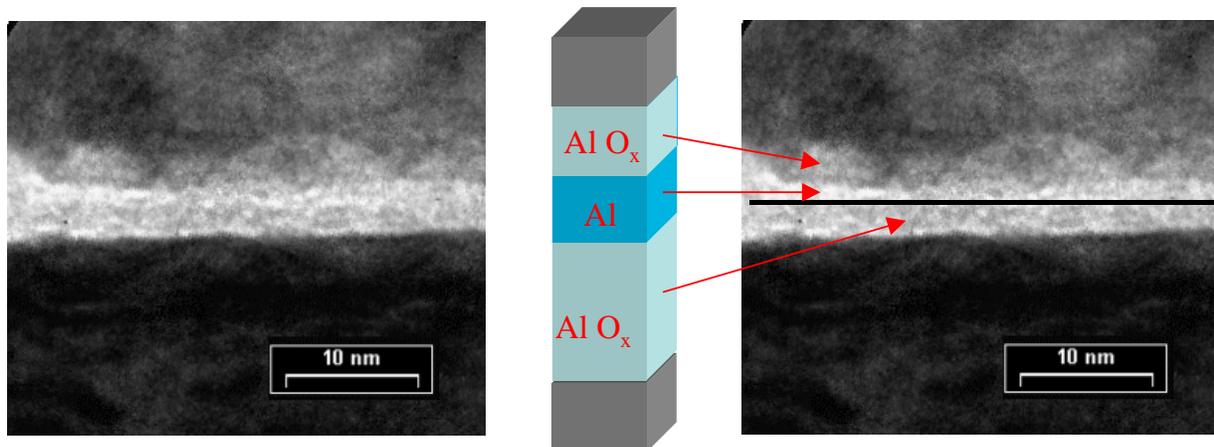
Parmi les matériaux disponibles dans notre bâti de pulvérisation nous avons la possibilité d'utiliser l'aluminium. L'aluminium est le métal le plus proche de l'alumine en ce qui concerne l'énergie de surface <sup>[Himpel\_AP\_98]</sup> et on peut espérer avoir une bonne croissance de l'aluminium sur l'alumine. Pour rester cohérent avec les études de la couche intermédiaire de cuivre, nous avons utilisé le même buffer et la même première barrière. Dans la figure 3.3.1 sont schématisées les quatre étapes que nous avons utilisées pour déposer une structure avec une couche



**Figure 3.3.1** Etapes de l'élaboration des jonctions tunnel à deux barrières avec l'aluminium comme couche intermédiaire.

intermédiaire plus continue que celle à base de Cu. La clé de cette méthode est de déposer une couche épaisse d'aluminium (figure 3.3.1.b) sur la première barrière d'alumine et d'oxyder partiellement cette couche (figure 3.3.1.c). Ainsi on peut espérer conserver une couche non oxydée d'aluminium qui va faire office de couche intermédiaire métallique. La croissance de la couche d'aluminium étant réalisée avec la même technique de dépôt cathodique, la croissance est polycristalline, ce qui est très important pour l'oxydation qui va suivre. En effet, pendant le processus d'oxydation, l'oxygène va principalement diffuser entre les limites des grains, ce qui va produire des zones plus fortement oxydées. Ainsi, si la couche d'aluminium déposée est très fine, on peut même s'attendre à avoir une couche intermédiaire contenant des amas d'aluminium mais plus aplatis que dans le cas du cuivre. Dans notre bâti, il est possible de déposer différentes épaisseurs pour la couche d'aluminium que l'on oxyde ensuite durant le même temps pour réaliser la deuxième barrière. Dans ce cas on peut espérer avoir balayé un bon intervalle des épaisseurs de la couche intermédiaire en partant d'une barrière unique très épaisse vers une structure à deux barrières bien séparées.

Afin de caractériser la structure et la croissance des couches, nous avons examiné ces échantillons à l'aide de la microscopie à transmission électronique (figure 3.3.2). Cependant, la différence de contraste entre l'aluminium et l'alumine n'est pas grande ce qui ne permet pas de bien distinguer la couche d'aluminium des barrières d'alumine.



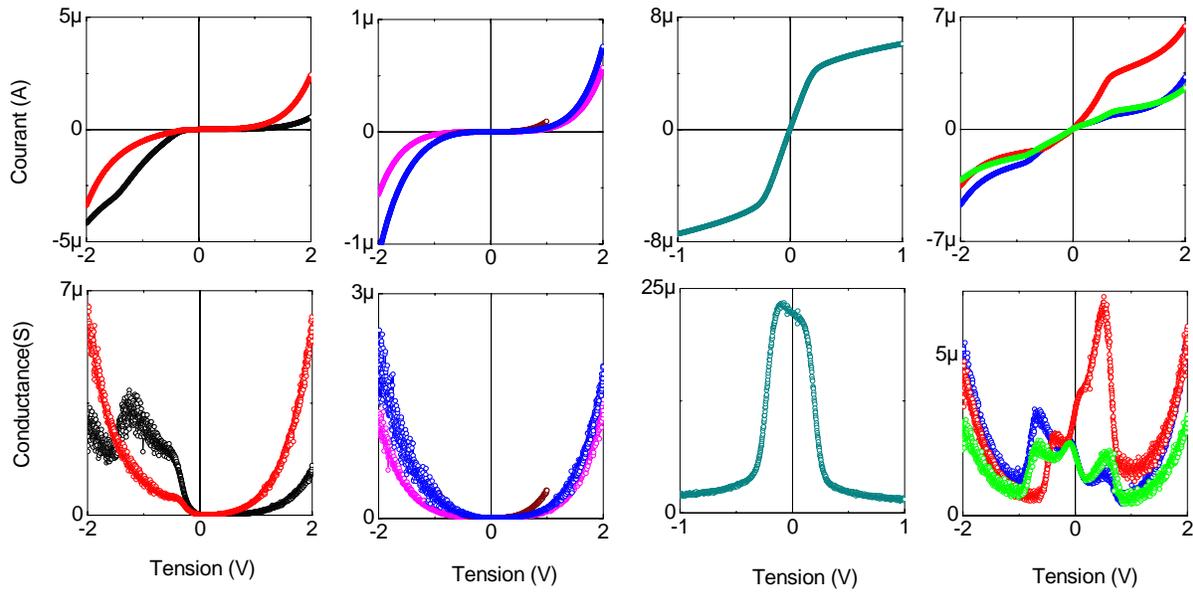
**Figure 3.3.2** Image MET pour une jonction tunnel à deux barrières avec une couche intermédiaire d'aluminium (épaisseur nominale d'aluminium déposé : 2 nm) : image brute (à gauche) et image avec ligne de séparation entre la première barrière et la couche d'aluminium (à droite) en se basant sur les épaisseurs connues.

Sur cette image MET, on voit que la première barrière est bien continue mais que son épaisseur ne peut pas être directement déterminée. Il est néanmoins possible de positionner l'interface entre la première barrière et la couche d'aluminium en supposant que cette barrière a la même épaisseur que celle obtenue pour les barrières simples élaborées avec les mêmes paramètres: on peut donc supposer que cette interface se situe à 2 nm de l'interface  $\text{AlO}_x/\text{CoFe}$ . Sur la figure 3.3.2, on constate que cette interface  $\text{AlO}_x/\text{Al}$  tombe dans la couche claire ce qui illustre bien le faible contraste entre l'aluminium et l'alumine. En conséquence, il est quasiment impossible de pouvoir se faire une idée précise quant à la forme de la couche d'aluminium. Par contre, l'image MET montre nettement le contour irrégulier de l'interface entre la seconde barrière et la seconde électrode métallique. Il est difficile de prédire si cette structure aura de meilleures propriétés de transport que celle à base de cuivre puisque, si la couche intermédiaire semble plus continue, la seconde barrière semble moins bien définie.

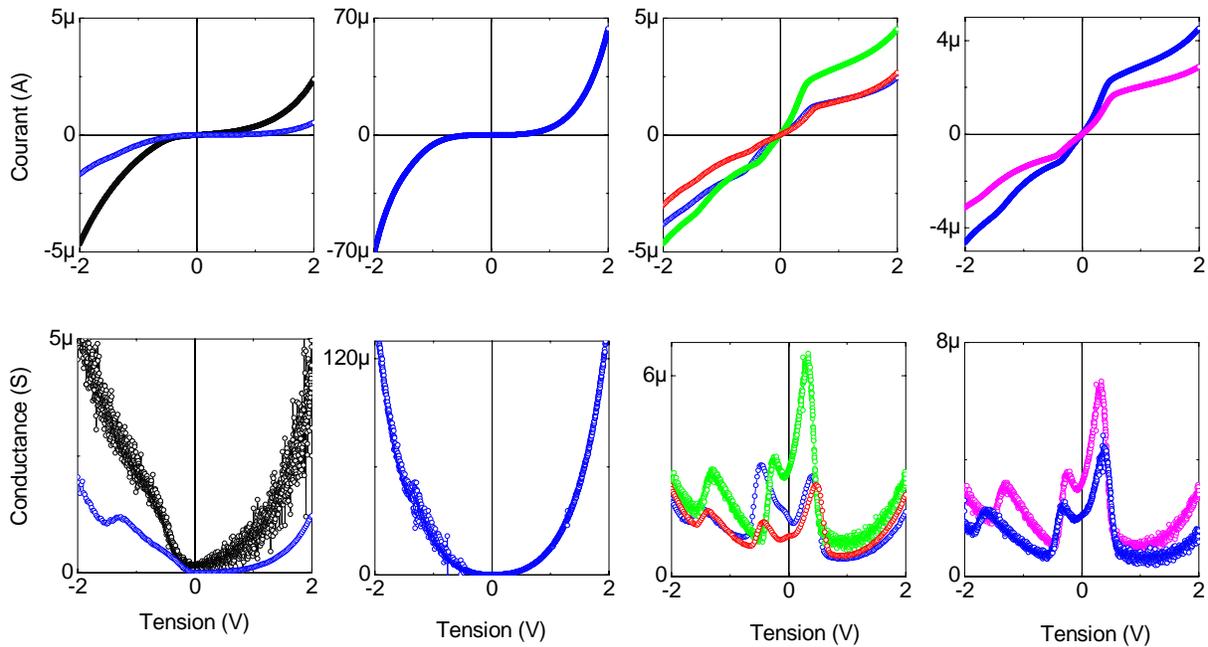
### **3.3.1 Etude statistique du transport dans les systèmes à deux barrières avec une couche intermédiaire d'aluminium**

Nous avons élaboré une série d'échantillons avec différentes épaisseurs d'aluminium déposées en tant que couche intermédiaire. En oxydant de la même manière tous ces échantillons, on s'attend à avoir une série de couches intermédiaires dont l'épaisseur varie entre 0.5 nm et 1.5 nm. Cette estimation des épaisseurs de la couche intermédiaire est faite en supposant que seulement 1 nm de la couche d'aluminium est oxydé. Comme discuté dans le paragraphe précédent, l'épaisseur précise de la couche intermédiaire ne peut pas être déterminée à l'aide de la microscopie électronique en transmission. Par contre, on peut étudier les effets de la variation de l'épaisseur de la couche intermédiaire sur le transport.

Après le processus de lithographie optique des échantillons, nous avons à nouveau mené une étude statistique des mesures de transport pour chaque épaisseur afin d'avoir une image d'ensemble des caractéristiques I-V. Les jonctions mesurées ont toutes une surface de  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ .



**Figure 3.3.1.1** Quelques caractéristiques courant-tension et conductances associées pour des structures à deux barrières avec une épaisseur estimée de 0.5 nm d'aluminium comme "couche intermédiaire".

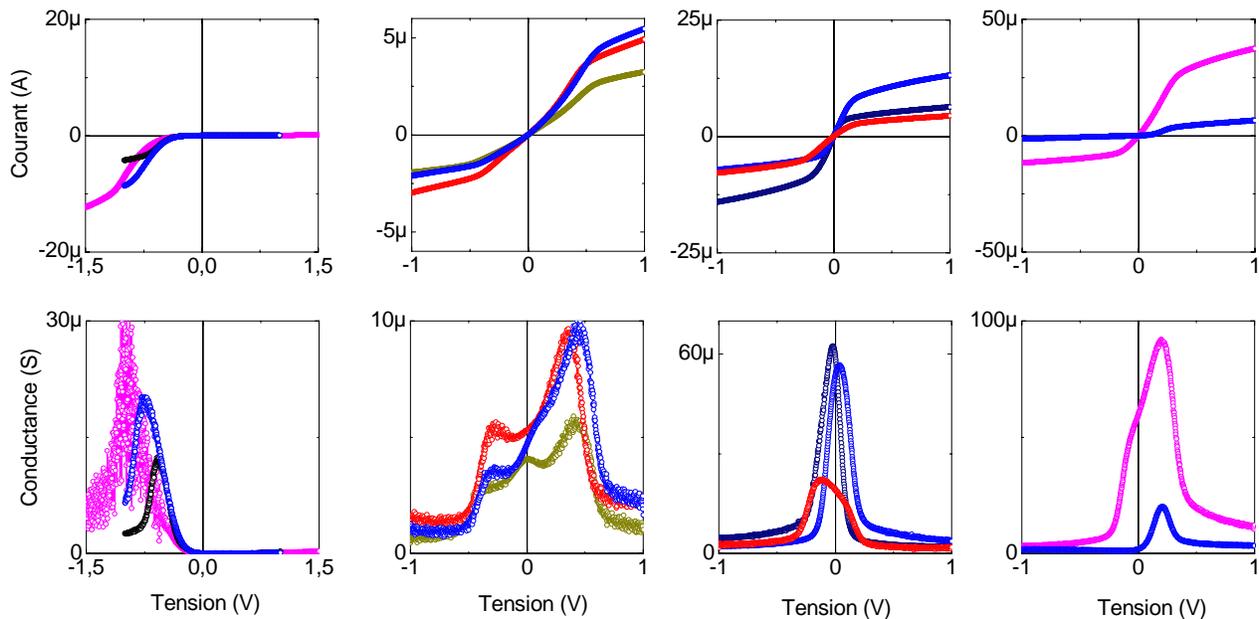


**Figure 3.3.1.2** Quelques caractéristiques courant-tension et conductances associées pour des structures à deux barrières avec une épaisseur estimée de 0.75 nm d'aluminium comme "couche intermédiaire".

D'une manière générale (figure 3.3.1.1 et figure 3.3.1.2) on peut avoir une multitude de caractéristiques courant-tension qu'il est néanmoins possible de classer selon quatre types de gauche à droite sur les figures en se basant sur la forme des courbes : (i) *Caractéristiques courant-tension asymétriques* (ce qu'on cherche à obtenir), (ii) *Caractéristiques courant-tension symétriques typiques* qui ressemblent beaucoup à celle d'une jonction à barrière unique, (iii) *Caractéristiques courant-tension symétrique atypiques* (ces courbes présentent un intervalle en tension de forte conduction autour de la tension nulle) et (iv) *Caractéristiques courant-tension atypiques asymétriques* avec plusieurs zones de forte conduction dans la conductance et d'asymétrie supérieure ou inférieure à 1.

L'asymétrie des courbes I-V est beaucoup plus marquée pour les courbes de la catégorie (i) que dans le cas du cuivre. Ceci est certainement une conséquence du meilleur mouillage de la première barrière par la couche intermédiaire d'aluminium. Par contre, on a toujours des fluctuations de courant d'une jonction à l'autre, ce qui peut provenir d'une couche intermédiaire non continue constituée d'amas d'aluminium oxydés.

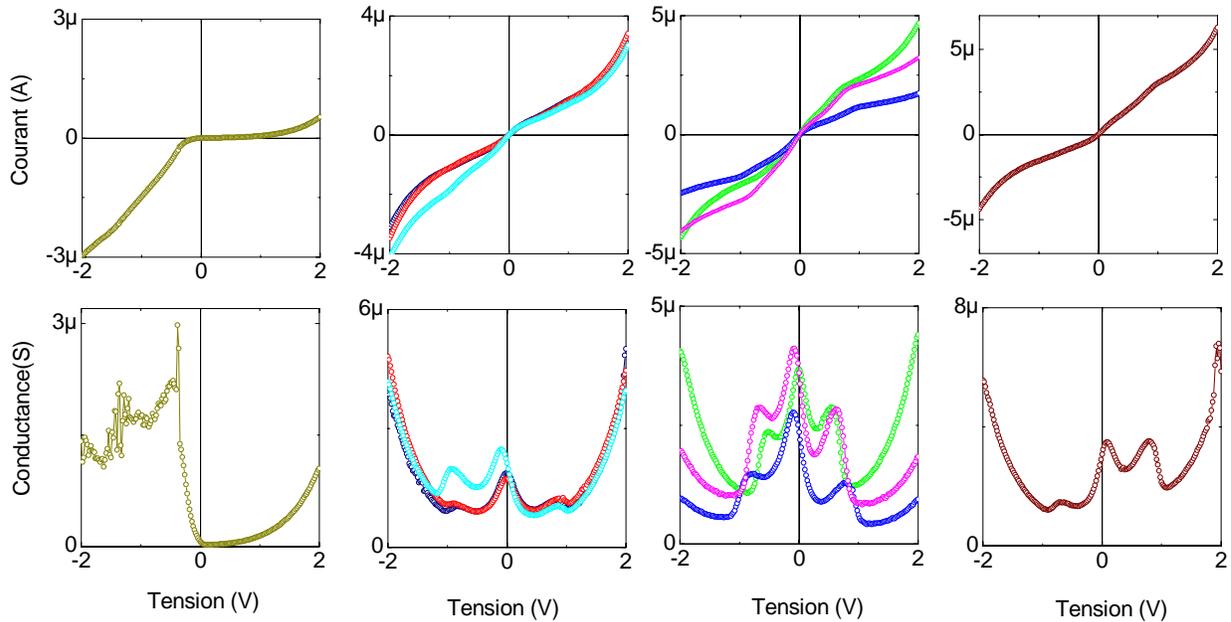
Le résultat le plus remarquable est l'augmentation de l'asymétrie des courbes courant – tension pour les échantillons avec 1 nm d'épaisseur de la couche d'aluminium. Nous avons



**Figure 3.3.1.3** Quelques caractéristiques courant-tension et conductances associées pour des structures à deux barrières avec une épaisseur estimée de 1 nm d'aluminium comme "couche intermédiaire".

mesuré des courbes très asymétriques (figure 3.3.1.3) qui présentent une véritable fonction de blocage du courant en tension positive avec un courant multiplié par presque 200 en tension négative pour certaines jonctions. Pour cette épaisseur de 1 nm d'aluminium, on constate que la conductance est généralement plus forte que pour les autres épaisseurs.

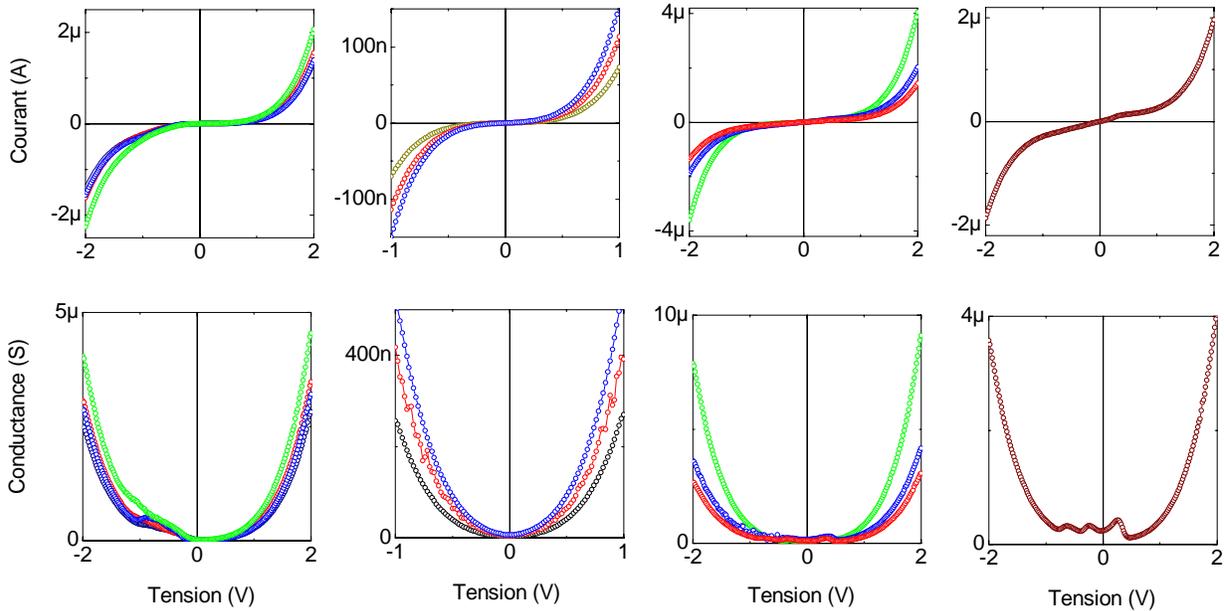
Cette étude montre qu'une variation de quelques angströms de l'épaisseur de la couche métallique peut considérablement amplifier les propriétés d'asymétrie.



**Figure 3.3.1.4** Quelques caractéristiques courant-tension et conductances associées pour des jonctions à deux barrières avec une épaisseur estimée de 1.25 nm d'aluminium comme "couche intermédiaire".

Ces résultats sont très prometteurs en vue de l'intégration avec un élément de mémoire. Cependant, la plage en épaisseur de la couche intermédiaire pour laquelle l'asymétrie est forte est étroite au point qu'il est indispensable de bien calibrer le flux des matériaux déposés et d'oxydation.

En augmentant encore l'épaisseur de la couche intermédiaire on constate que (figure 3.3.1.4 et figure 3.3.1.5) l'asymétrie des courbes commence à disparaître : par exemple, pour une épaisseur de 1.5 nm pour la couche intermédiaire, on ne trouve pas de courbes asymétriques et la conductance commence à diminuer. Pour ces épaisseurs, on estime être dans un régime où la couche intermédiaire est continue.

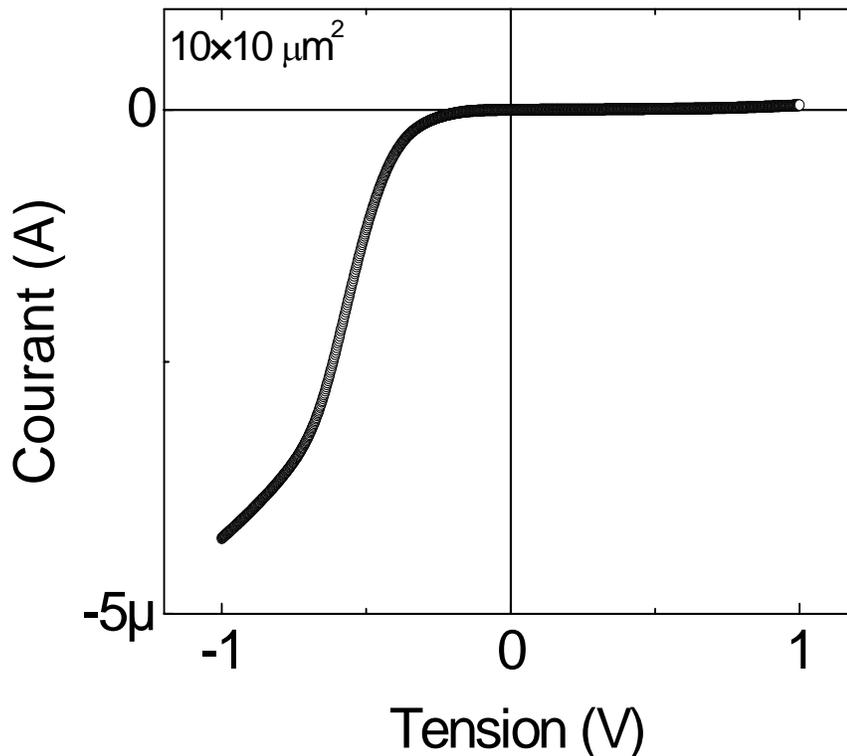


**Figure 3.3.1.5** Quelques caractéristiques courant-tension et conductances associées pour des jonctions à deux barrières avec une épaisseur estimée de 1.5 nm d'aluminium comme "couche intermédiaire".

De cette étude statistique, nous concluons (i) que l'asymétrie est forte pour des épaisseurs fines (autour de 1 nm) et (ii) que la couche d'Aluminium doit être discontinue et doit contenir des amas métalliques. L'originalité de notre approche est que ces amas métalliques sont obtenus par oxydation partielle de la couche d'aluminium. En effet, cette oxydation n'est pas homogène et est favorisée dans les joints de grains de la couche d'aluminium ce qui donne des amas métalliques certainement plus plats que dans le cas du cuivre. Les courbes de courant ressemblent beaucoup à celles des échantillons avec une couche intermédiaire de cuivre mais on gagne un ordre de grandeur dans l'asymétrie.

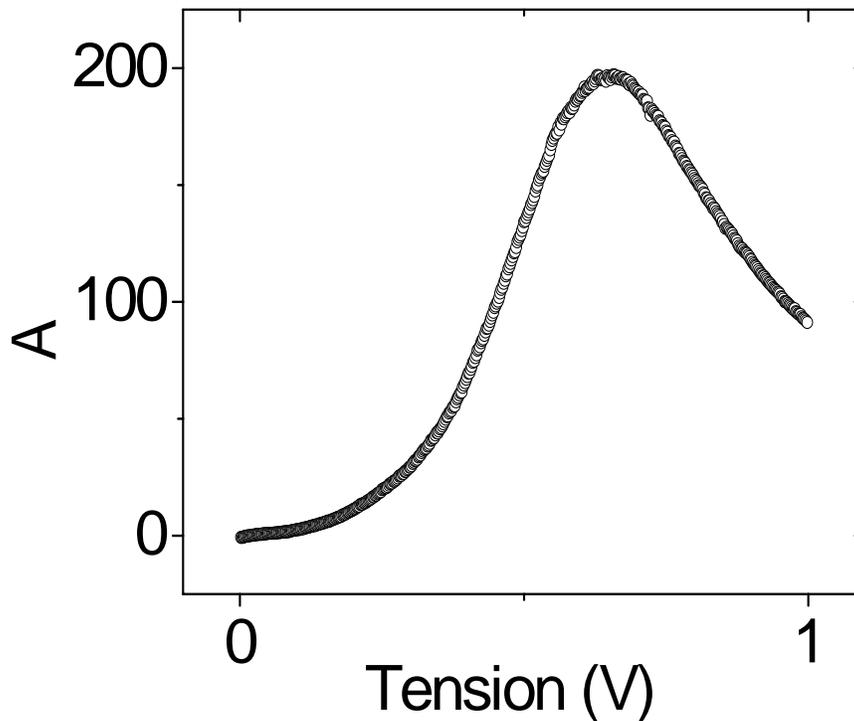
### 3.3.2 Forte asymétrie dans les jonctions à deux barrières avec une couche intermédiaire d'aluminium

Comme nous avons vu dans le paragraphe précédent, une couche intermédiaire d'aluminium nous a permis d'obtenir des courbes I-V bien plus asymétriques qu'avec le cuivre (figure 3.2.2.1). Cette augmentation d'asymétrie provient certainement d'un meilleur mouillage de l'aluminium sur la première barrière et du fait que l'on dispose d'abord d'une couche épaisse d'aluminium que l'on oxyde par la suite plutôt que d'essayer de déposer directement une fine couche métallique. Ainsi, en remplaçant le cuivre par l'aluminium (permettant de réaliser cette oxydation partielle) on gagne un ordre de grandeur sur l'asymétrie des caractéristiques courant-tension (figure 3.3.2.1). De plus, l'étude statistique montre qu'un grand nombre de jonctions présentent une forte asymétrie ( $A > 100$ ) ce qui n'était pas le cas pour le Cu. L'allure des courbes



**Figure 3.3.2.1** Caractéristique courant-tension très asymétrique pour une structure à deux barrières avec un 1 nm d'épaisseur nominale d'aluminium comme couche intermédiaire.

$I(V)$  est la même pour le cuivre et l'aluminium, mais pour l'aluminium le courant est bien plus bloqué en tension positive et le rapport de rectification (ou asymétrie) peut atteindre 200 avec un maximum pour une tension en dessous de 1V (figure 3.3.2.2).



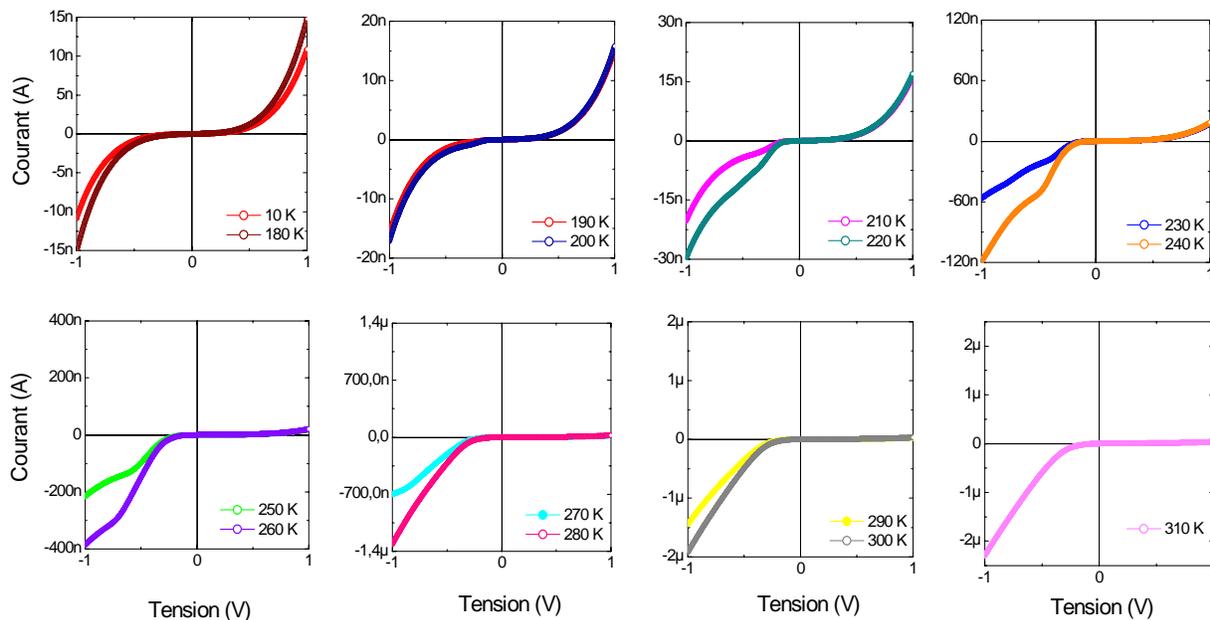
*Figure 3.3.2.2 Asymétrie correspondante de la courbe I-V de la figure 3.3.2.1.*

Vue la similitude entre les résultats des jonctions avec une couche intermédiaire de cuivre et d'aluminium, on peut supposer que l'asymétrie a une origine identique dans les deux cas c'est à dire des états discrets résonants dans les amas métalliques de la couche intermédiaire. En principe, ces états dépendent fortement de la forme des amas et aussi de la nature du matériau, et il est impossible de caractériser ses états en énergie. Le seul moyen que nous avons pour agir sur ces états est de varier l'épaisseur d'aluminium déposée. Cependant, l'étude statistique des mesures de transport sur les séries avec différentes épaisseurs nous a montré que le nombre et la position de ces niveaux ne sont pas contrôlables.

### 3.3.3 Etude en température de structures à deux barrières avec une couche intermédiaire d'aluminium

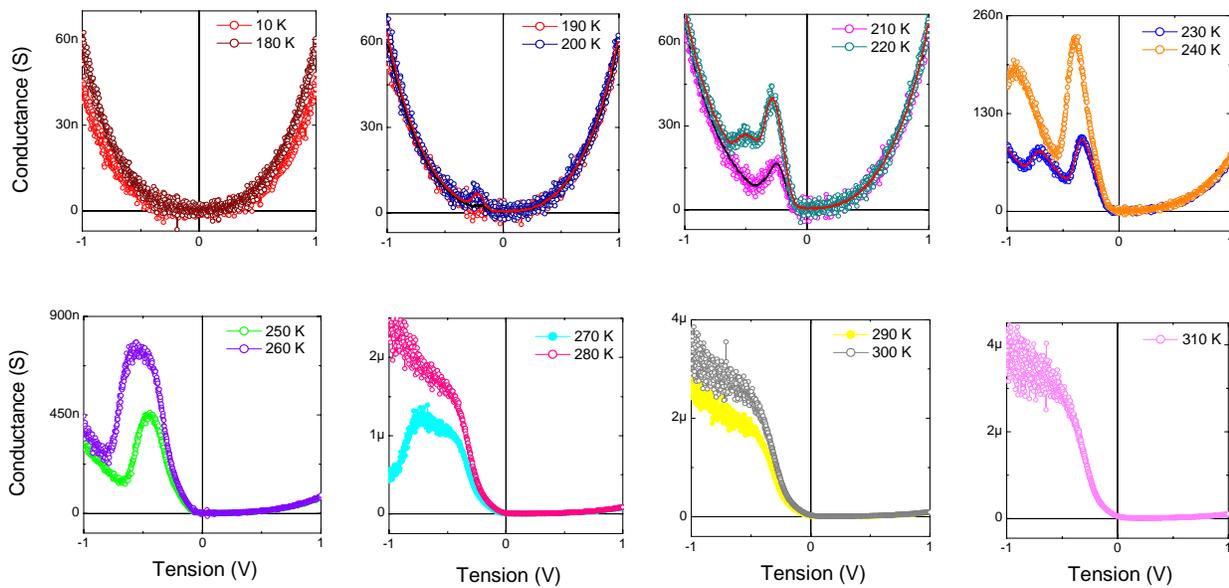
La mesure des caractéristiques courant-tension à différentes températures nous offre la possibilité, à partir des changements de la forme des courbes, de discuter les différents régimes de transport présents dans la structure. Les mesures en température sont faites entre 10 K et la température ambiante avec un pas de 10 K entre chaque mesure.

L'étude a été menée sur un échantillon ayant une grande asymétrie à la température ambiante et qui a 0.5 nm d'aluminium comme couche intermédiaire. L'examen de la variation des courbes avec la température nous permet de comprendre les mécanismes du transport qui ont lieu dans une structure comme celle-ci (figure 3.3.3.1). On observe que les caractéristiques

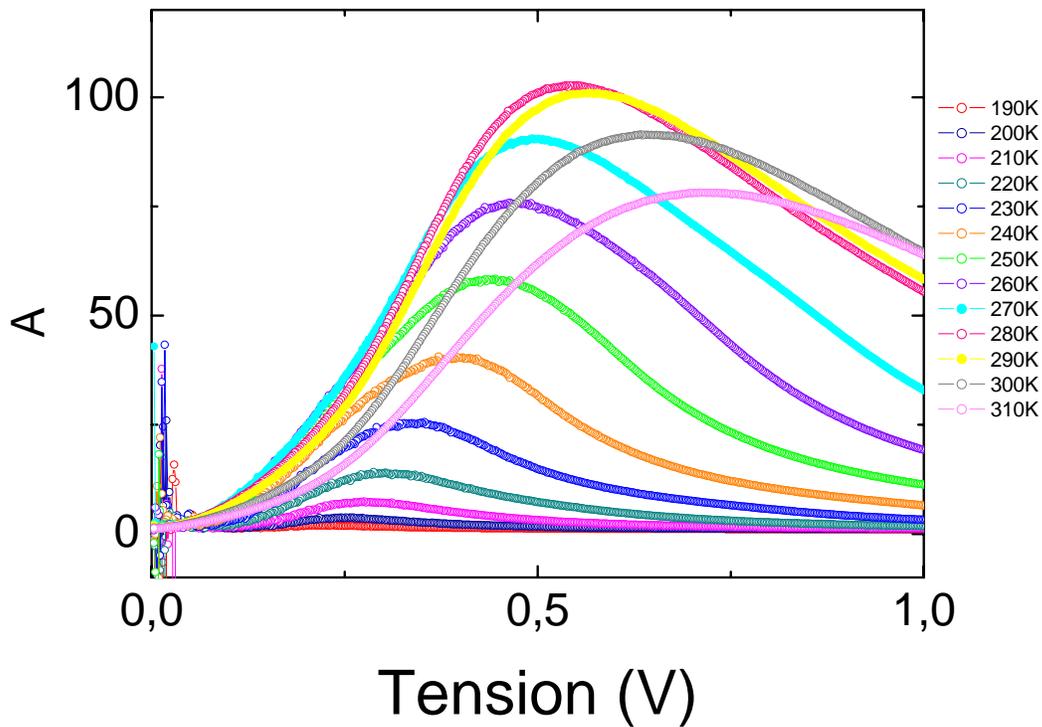


*Figure 3.3.3.1* Dépendance en température de la caractéristique courant-tension pour une structure à deux barrières avec 0.5 nm Aluminium comme "couche intermédiaire".

courant-tension sont asymétriques à la température ambiante et sont symétriques à basse température. Ainsi, à partir de 180 K, l'asymétrie disparaît complètement. On note aussi la transition entre deux régimes de dépendance de la résistance avec la température à cette température. En effet, entre 180 K et la température ambiante, la résistance varie fortement avec la température alors, qu'en dessous de cette température, la résistance ne varie pratiquement plus avec la température (figure 3.3.3.2.). De plus, on observe des pics de forte conductance dont la forme et l'intensité varient avec la température. A basse température, la conductance devient nulle autour de  $V=0$  ce qui signifie que du blocage de Coulomb a lieu dans les amas métalliques d'aluminium. Ainsi, une couche intermédiaire métallique non continue est à l'origine d'une forte dépendance de la résistance avec la température.



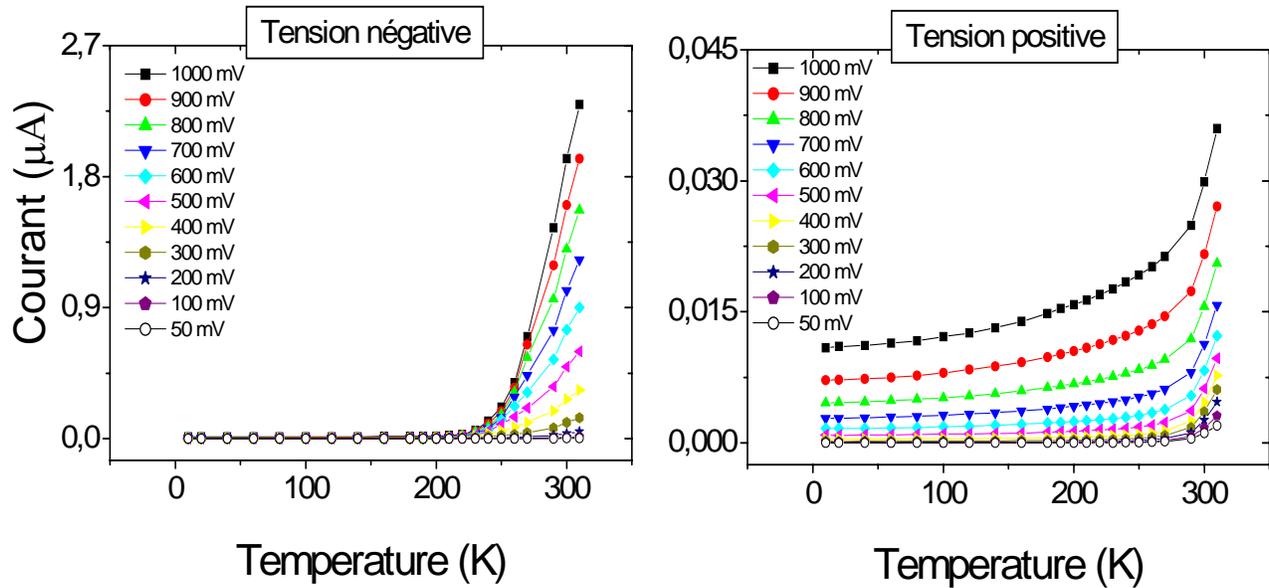
**Figure 3.3.3.2** Dépendance en température de la conductance correspondante aux courbes I-V de la figure 3.3.3.1 pour une structure à deux barrières avec 0.5 nm Aluminium comme "couche intermédiaire".



**Figure 3.3.3.3** Asymétrie en fonction de la température pour une structure à deux barrières avec 0.5 nm d'aluminium comme "couche intermédiaire".

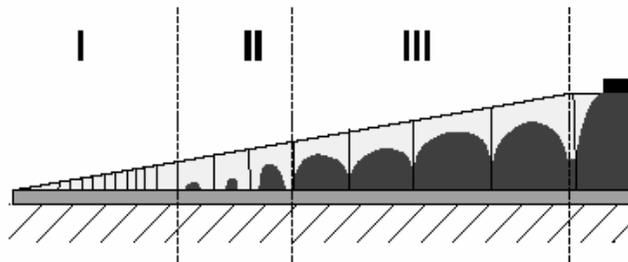
L'asymétrie du courant varie fortement avec la température comme on peut le voir dans la figure 3.3.3.3. L'intensité et la position en tension du maximum de l'asymétrie varient aussi beaucoup en fonction de la température et ce maximum est lié aux pics de conductance qui apparaissent pour les grandes températures. En conséquence, nous concluons que les canaux de forte probabilité de transmission sont aussi responsables de l'asymétrie.

Nous avons mesuré plusieurs échantillons en fonction de la température. Les comportements observés sont très similaires d'un échantillon à l'autre c'est à dire qu'il y a deux régimes de transport bien différenciés selon la température (figure 3.3.3.4): (i) le premier où on a une forte dépendance de la résistance en fonction de la température et (ii) le second où on a une dépendance nettement plus faible de la résistance avec la température. Ces deux régimes de conduction nous indiquent que deux processus physiques différents ont lieu dans notre système.



**Figure 3.3.3.4** Dépendance du courant en température pour différentes tensions pour une structure à deux barrières avec 0.5 nm d'aluminium comme "couche intermédiaire".

Les questions fondamentales qui se posent à ce stade de l'étude sont de connaître la nature des amas d'aluminium de la couche intermédiaire et le processus par lequel ces amas sont obtenus. Des études dans cette direction ont été faites par Kuiper <sup>[Kuiper \_JAP\_01]</sup> où il propose plusieurs étapes pour l'oxydation de l'aluminium : (i) oxydation thermique de l'aluminium dans la surface, (ii) diffusion de l'oxygène dans les limites entre les grains d'aluminium et oxydation de ces régions et (iii) oxydation des grains d'aluminium.



**Figure 3.3.3.5** Degré d'oxydation en fonction de l'épaisseur de la couche d'aluminium que l'on veut oxyder d'après Smits <sup>[Smiths\_Thèse]</sup>.

Utilisant ce modèle, Smits <sup>[Smiths\_Thèse]</sup> interprète ses mesures optiques sur des couches Al/AIO<sub>x</sub> par l'existence de zones d'indices de diffraction différents. Ainsi, il a divisé une couche d'aluminium oxydée en trois régions comme représenté dans la figure 3.3.3.5. Selon l'épaisseur à oxyder à l'aide du plasma réactif, on peut se retrouver dans l'un ou l'autre des trois cas: couche d'aluminium complètement oxydée (I), couche partiellement oxydée avec des amas non oxydés (II) et couche d'aluminium continue (III).

### **3.3.4 Interprétation possible des résultats pour une couche intermédiaire d'aluminium**

Etant donnée la complexité des résultats et les différentes caractéristiques courant-tension obtenues d'un échantillon à l'autre, il est difficile de distinguer les processus physiques qui ont lieu dans ces échantillons. On peut cependant relever des tendances et échafauder des hypothèses quant à la nature des processus intervenants dans le transport sans pouvoir apporter des preuves claires et nettes quant à leur existence.

Ainsi, on note que les résultats obtenus pour une couche intermédiaire d'aluminium sont très similaires à ceux obtenus pour une couche intermédiaire de Cu. Ceci nous laisse penser que les mêmes processus de transport interviennent dans les deux cas. Pour s'en convaincre, il suffit de comparer les études statistiques, la dépendance en température des courbes et l'allure des caractéristiques courant-tension asymétriques.

Les modèles théoriques prévoient des asymétries grandes avec une structure à deux barrières :

(i) Avec le modèle des états résonants, on obtient une grande asymétrie dans le cas où les barrières sont asymétriques c'est à dire que l'une a une plus grande résistance que l'autre. Dans ce modèle, la température joue un rôle important mais l'asymétrie est a priori beaucoup plus grande à basse température. Ce modèle ne correspond pas tout à fait à nos résultats expérimentaux puisque l'asymétrie mesurée disparaît à basse température.

(ii) Le modèle de transport par "électrons chauds" prévoit aussi une grande asymétrie mais la dépendance en température n'est pas plus en accord avec nos résultats expérimentaux. En effet,

lorsque la température baisse les électrons subissent de moins en moins de collisions dans la couche intermédiaire et ont une plus grande probabilité de rester "chauds". Donc, si les électrons "chauds" sont à l'origine du courant asymétrique à basse température, on doit normalement avoir une augmentation de l'asymétrie lorsque la température baisse.

Comme notre système est assez complexe et que l'on a des amas métalliques au niveau de la couche intermédiaire, on peut supposer que plusieurs processus physiques se superposent dans le transport. Un transport par des amas métalliques de petite taille peut subir des processus de blocage de Coulomb qui dans les amas d'un diamètre inférieur à 10 nm, peut avoir lieu à la température ambiante <sup>[Ferry\_TN]</sup>. A partir de ce modèle, on peut essayer d'expliquer la dépendance en température des courbes mesurées, c'est à dire que le transport du courant asymétrique se fait par l'intermédiaire des amas de petite taille. Ainsi, ces canaux de forte asymétrie seront fermés une fois que l'on descend en température par blocage de Coulomb et l'asymétrie des courbes I-V va disparaître.

La source de l'asymétrie des courbes I-V à température ambiante est très certainement reliée à l'existence d'états de résonances <sup>[Delft\_PR\_01], [Halperin\_RMP\_86],[Tinkham\_JLTP\_00]</sup>. En effet, nous avons mesuré des courbes I-V ayant une asymétrie plus grande et moins grande que 1 sur des jonctions préparés dans les mêmes conditions expérimentales. Ceci qui ne peut pas être expliqué par un modèle de transport par "électrons chauds" pour lequel l'asymétrie est toujours plus grande que 1.

La dépendance en température de la conductance nous montre qu'il y a deux processus de transport différents (figure 3.3.3.4.) entre 180K et la température ambiante où on a une forte dépendance de la conductance avec la température. La dépendance ressemble à une loi exponentielle <sup>[Ferry\_TN]</sup>  $\sigma \approx \exp(-E_a/k_B T)$ , où l'énergie  $E_a$  est une énergie d'activation et représente l'énergie pour charger un amas avec un électron et  $k_B$  est la constante du Boltzmann. Des interpolations de ces variations en température des courbes mesurées ont permis d'estimer que l'énergie d'activation est comprise entre 0.3 eV et 0.47 eV. Ces énergies correspondent à des amas d'aluminium de 1 à 3 nm de diamètre. En dessous de 200K, il n'y a plus une forte dépendance des courbes I-V avec la température et le transport ressemble beaucoup à un transport par effet tunnel direct du fait du blocage du courant via les amas.

## Conclusions

En nous appuyant sur les modèles théoriques présentés dans le premier chapitre de ce manuscrit, nous avons réalisé des structures à deux barrières dans le but d'obtenir des courbes I-V asymétriques en tension (effet diode).

Nous avons montré que le choix des matériaux mis en jeu est un élément crucial pour la réalisation de la diode parce que les propriétés de croissance vont considérablement influencer les propriétés de transport de ces structures. Utilisant des barrières d'alumine asymétriques en épaisseur, nous avons étudié les propriétés de transport de structures ayant différentes couches intermédiaires en variant leur nature ainsi que leur épaisseur.

Pour les premiers échantillons réalisés, nous avons utilisé une couche intermédiaire constituée de Cuivre et ces échantillons nous ont permis de mesurer des courbes I-V asymétriques. Le maximum d'asymétrie obtenu sur certaines jonctions est autour de 20 ce qui nous a rendu très optimistes quant au développement d'une diode à base de multicouches métal/isolant. A l'aide de la microscopie électronique en transmission nous avons montré que la couche de cuivre est en fait constituée d'amas pour certaines épaisseurs déposées. Nous avons montré que l'hypothèse la plus probable quant à la source d'asymétrie est l'existence d'états de résonance dans ces amas. La confirmation d'un transport à travers ces amas a été faite par des mesures en température où une forte dépendance de la conductivité avec la température a été observée ce qui est une caractéristique typique d'un transport à travers les amas. Pour les basses températures, on observe la disparition de l'asymétrie et on n'a plus la forte dépendance de la conductance avec la température. Cette disparition de l'asymétrie des courbes I-V a été interprétée comme provenant de la disparition du transport à travers les amas par blocage de Coulomb.

Par la suite, nous avons utilisé une couche intermédiaire d'aluminium réalisée à partir de l'oxydation partielle d'une couche épaisse d'aluminium avec l'espoir d'avoir un bon mouillage sur la première barrière et une meilleure croissance afin d'obtenir une couche intermédiaire plus fine continue. Nous avons ainsi réussi à augmenter l'asymétrie des courbes I-V et obtenu une asymétrie valant 200 pour certaines jonctions. L'étude statistique met en évidence la disparition de l'asymétrie si l'épaisseur de la couche d'Aluminium devient grande c'est à dire lorsque la

couche intermédiaire devient épaisse et continue. L'étude MET nous montre une bien meilleure croissance de la couche intermédiaire sans que l'on puisse discerner des amas. Après l'oxydation partielle de la couche épaisse d'aluminium, on peut s'attendre à la formation d'amas d'aluminium par oxydation non homogène. En effet, les régions entre les amas s'oxydent plus vite. La dépendance en température de la conductivité est similaire à celle obtenue pour une couche intermédiaire de cuivre ce qui laisse penser qu'on a affaire aux mêmes processus de transport dans les deux cas.

Pour les deux couches intermédiaires utilisées, nous avons obtenu des courbes I-V asymétriques. Avec la couche intermédiaire d'aluminium, nous avons obtenu des asymétries beaucoup plus grandes et les caractéristiques courant-tension présentent une fonction de blocage du courant similaire à une vraie diode à base de semi-conducteur. Ceci nous a encouragé à intégrer cette structure MIMIM en série avec une jonction simple dans une unité de mémoires magnétiques ce que nous allons détailler dans le chapitre suivant.

## **Chapitre 4**

# **Intégration de la diode MIMIM dans une structure RAMMID**



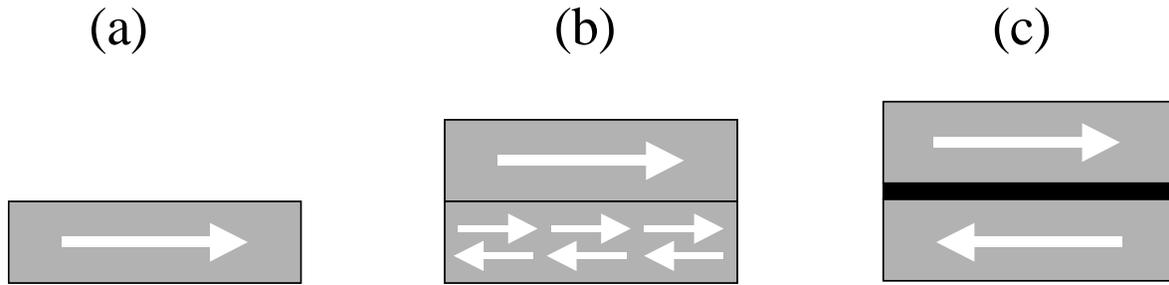
## **Chapitre 4 : Intégration de la diode MIMIM dans une structure RAMMID**

### **4.1 Elaboration de la fonction mémoire RAM**

La fonction mémoire dans notre système est représentée par une jonction tunnel magnétique. Les deux états magnétiques de la jonction, états parallèle (P) et antiparallèle (AP), correspondent aux états de faible et de grande résistance de la jonction tunnel. Pour obtenir ces deux états magnétiques, on a besoin que les deux électrodes ferromagnétiques de la jonction aient des champs coercitifs bien différents l'un de l'autre. On va appeler la couche (ou le système de couches) "dure", la couche avec le champ coercitif le plus grand. La deuxième couche, nommée couche "douce", a un champ coercitif beaucoup plus petit que la couche dure. Dans le paragraphe suivant nous allons détailler et analyser le choix des matériaux de chacune des composantes de la jonction tunnel pour arriver à finaliser une jonction tunnel magnétique avec un important signal magnétorésistif et une résistance optimale.

#### **4.1.1 Propriétés magnétiques de la couche "dure"**

Pour obtenir un système avec un champ coercitif grand, on a plusieurs possibilités : (i) utiliser un matériau ferromagnétique dur tel que du Co ou du CoFe, (ii) utiliser des couches ferromagnétiques couplées directement à l'interface avec un matériau antiferromagnétique et (iii) utiliser un système antiferromagnétique artificiel (AAF) utilisant deux couches ferromagnétiques couplées via une couche non magnétique. Dans la figure 4.1.1.1, sont représentées les trois configurations énumérées.

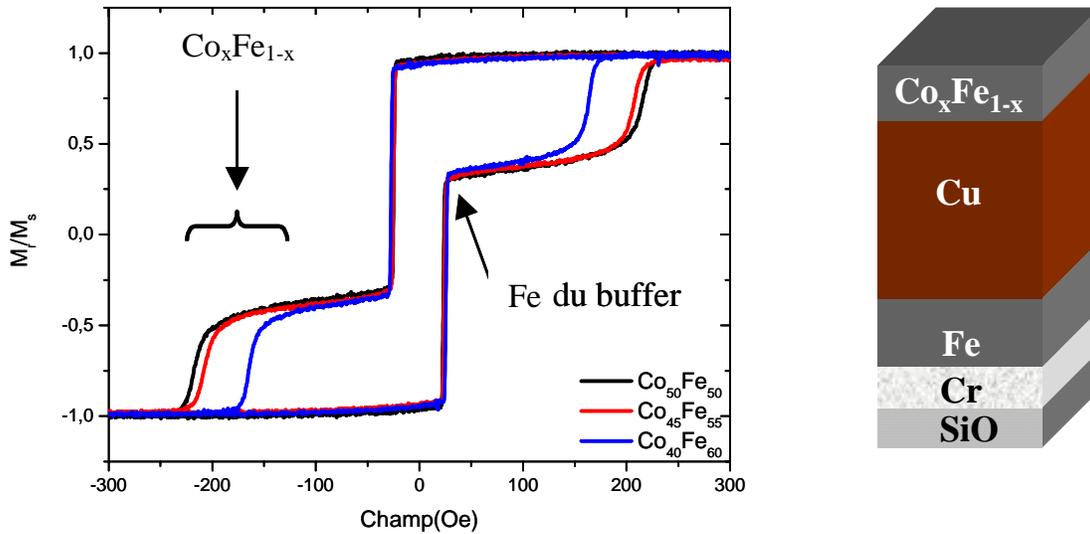


**Figure 4.1.1.1** (a) Couche ferromagnétique simple, (b) Couche ferromagnétique couplée avec un matériau antiferromagnétique et (c) Système antiferromagnétique artificiel (AAF).

Chacune de ces configurations peut s'appliquer à notre système. Détaillons les raisons du choix que nous avons fait :

i) *Couche ferromagnétique simple*: c'est la façon la plus simple pour obtenir une couche "dure" mais, dans ce cas, le champ coercitif n'est pas très grand. On peut utiliser des couches minces de Co, de Fe ou d'alliage CoFe. Le Co épitaxié a une structure cristalline hexagonale qui favorise l'anisotropie cristalline. On a observé que, même dans une couche mince polycristalline de Co, il y a des axes préférentiels de croissance qui donnent lieu à des directions de facile et de difficile aimantation dans le plan de la couche. Un moyen d'augmenter le champ coercitif de ces couches est d'augmenter leur épaisseur : le champ coercitif varie linéairement avec l'épaisseur déposée jusqu'à une épaisseur d'environ 300 nm. Avec cette méthode, on peut s'attendre à une augmentation du champ coercitif mais avec le désavantage qu'il faut déposer des couches très épaisses. Ainsi pour une couche d'une centaine de nanomètres d'épaisseur, le champ coercitif ne dépasse guère 100 Oe.

Un autre moyen permettant d'obtenir une couche mince ferromagnétique "dure" est de déposer un alliage par la technique de co-déposition de plusieurs métaux. Par exemple, le champ coercitif de l'alliage CoFe est supérieur à celui du Co pour des épaisseurs équivalentes (figure 4.1.1.2). Des études en fonction de la concentration de Fe dans l'alliage CoFe ont été faites pour suivre l'évolution du champ coercitif et ont montré que l'alliage  $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$  présente un champ de retournement relativement élevé ( $> 200\text{Oe}$ ).



**Figure 4.1.1.2** Cycles d'hystérésis de la couche de CoFe déposée sur le buffer utilisé dans tout ce travail montrent la dépendance du champ coercitif de l'alliage CoFe en fonction de la concentration en Fe. Le deuxième champ coercitif (autour de 30 Oe) correspond à celui de la couche de 6 nm de Fe qui est mise dans le buffer pour assurer une bonne rugosité de surface.

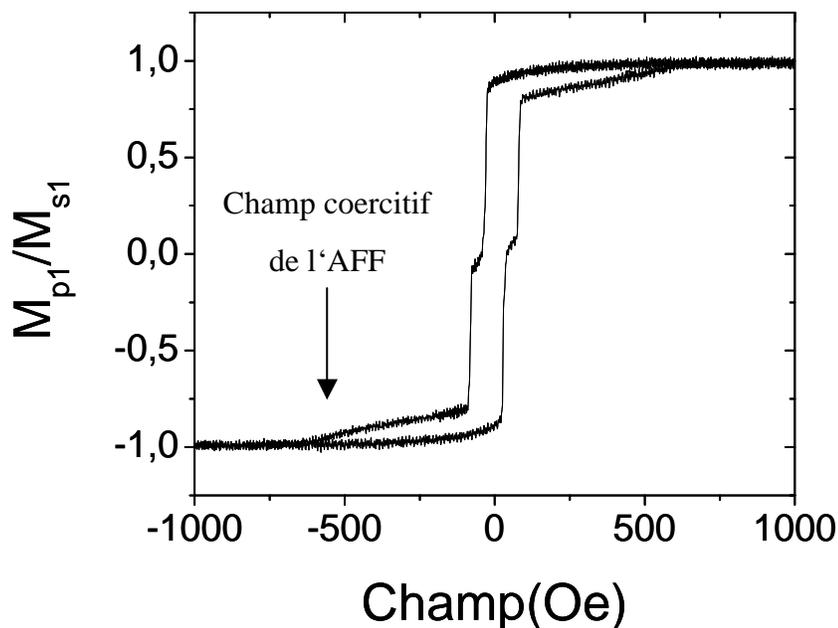
ii) *Couche ferromagnétique couplée par échange avec un matériau antiferromagnétique* : Le couplage direct entre un métal ferromagnétique et un métal antiferromagnétique a comme résultat immédiat une augmentation significative du champ coercitif. Ce couplage entraîne l'apparition d'un champ d'échange,  $H_{ex}$ , dont le vecteur représentatif, insensible au champ appliqué, s'ajoute à ce dernier. Ce champ d'échange renforce la stabilité de l'aimantation de la couche "dure" qui devient indirectement moins sensible au champ appliqué. Comme exemple de systèmes qui manifestent un couplage comme celui-ci, on peut énumérer: Co/CoO [Velthuis\_JAP\_2000], NiFe/NiO [Soeva\_JAP\_93], CoFe/IrMn [Huai\_JAP\_99], ... Dans notre cas nous n'avons pas utilisé ce type de couche "dure" vu le nombre limité de cibles pouvant être introduites dans le bâti de pulvérisation.

iii) Un système *antiferromagnétique artificiel (AAF)* est constitué de deux couches magnétiques, séparées par une couche métallique non-magnétique, dont les aimantations sont couplées antiferromagnétiquement par un couplage de type *indirect*. Le couplage s'instaure via les électrons de conduction qui véhiculent l'information magnétique d'une couche à l'autre. Ce type de couplage est ferromagnétique ou antiferromagnétique selon l'épaisseur de la couche métallique intermédiaire. Grâce au couplage antiferromagnétique ainsi établi, le système AAF se

comporte comme une couche unique dont l'aimantation nette est plus petite. Ce système est alors moins sensible à un champ magnétique appliqué et sa stabilité magnétique dans un champ extérieur est augmentée par rapport à celle des couches individuelles. Le champ coercitif d'un système AAF est  $Q$  fois plus fort que celui des couches qui le compose. Le facteur de qualité  $Q$  est donné par la relation [Van den Berg\_JMMM\_97] :

$$Q = \left| \frac{m_1 + m_2}{m_1 - m_2} \right|,$$

où  $m_1$  et  $m_2$  représentent l'aimantation de chacune des deux couches ferromagnétiques. Dans notre cas, nous avons utilisé des couches de CoFe d'épaisseur différentes comme couches ferromagnétiques. Les épaisseurs nominales utilisées sont de 3 nm et de 1.5 nm, donnant un facteur de qualité  $Q = 3$ . La couche métallique non magnétique utilisée est une couche de Ru ayant une épaisseur de 0.8 nm correspondant au premier pic du couplage antiferromagnétique. Avec ce facteur de qualité  $Q = 3$  et sachant que le champ coercitif de l'AAF est relié à celui des couches simples par  $H_{AAF} = QH_c$  où  $H_c$  est le champ coercitif des couches de CoFe ( $H_c=200$  Oe), on s'attend à avoir un champ coercitif de l'AAF autour de 600 Oe (voir figure 4.1.1.3).

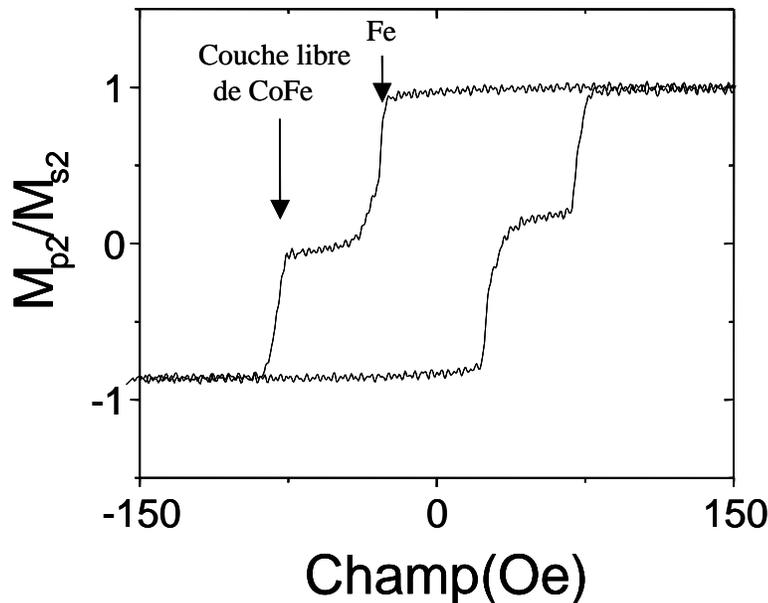


**Figure 4.1.1.3** Cycle d'hystérésis d'une jonction tunnel magnétique dont la couche "dure" est composée d'un AAF : CoFe(1.5nm)/Ru(0.8nm)/CoFe(3nm). La flèche indique le champ coercitif de la couche "dure" aux alentours de 600 Oe .

Les systèmes à base de CoFe/Ru/CoFe nous offrent trois avantages pour élaborer de bonnes jonctions tunnel <sup>[Tiusan\_thèse]</sup> : un champ coercitif élevé, une bonne rugosité de surface et une faible aimantation nette réduisant le couplage entre les couches "dure" et "douce". De plus, le taux de polarisation des électrons à l'interface CoFe/AlO<sub>x</sub> avec cet alliage est grand (~ 50 %) <sup>[Tedrow\_PRL\_71]</sup>.

#### 4.1.2 Propriétés magnétiques de la couche "douce" dans la RAMMID

Idéalement, il aurait fallu utiliser une couche de NiFe comme couche de détection dans la RAM du fait de son champ coercitif très faible (inférieur à 20 Oe). Toutefois nous avons aussi été limités par le nombre de cibles pouvant être utilisées dans notre bâti de pulvérisation. En effet, la configuration du bâti nous permet de ne disposer que de cibles magnétiques de Co et de Fe. Un faible champ coercitif peut s'obtenir avec du Fe pur, mais dans ce cas, on n'a pas le maximum de polarisation et on peut s'attendre à une perte du signal de magnétorésistance.



**Figure 4.1.2.1** Cycle d'hystérésis mineur d'une multicouche Si/Cr/Fe/Cu/CoFe/Ru/CoFe/AlO<sub>x</sub>/CoFe (10nm) ; le champ coercitif le plus petit correspond à celui de la couche ferromagnétique de Fe(6nm) du buffer. Il est à noter qu'ici, le champ coercitif de la couche de CoFe sur AlO<sub>x</sub> est bien inférieur à celui d'une couche de CoFe déposée sur du Cu (80 Oe par rapport à 200 Oe).

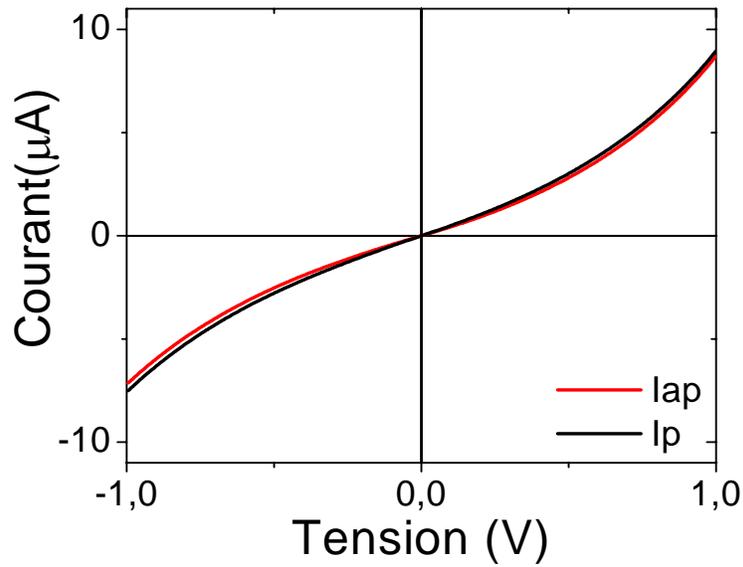
Nous avons fait un compromis entre la "douceur" et la polarisation en utilisant comme couche "douce" une couche ferromagnétique de CoFe déposée sur l'alumine (figure 4.1.2.2) : on a un bon retournement de l'aimantation et une préservation de la polarisation des électrons. Le champ coercitif est cependant assez grand (80 Oe) mais, vu que dans l'AAF le champ coercitif est autour de 600 Oe, on peut avoir un signal magnétorésistif du fait que les deux états magnétiques sont bien définis dans une large plage en champ magnétique. La couche "douce" servira comme point de départ à la croissance de la diode MIMIM. Ainsi l'élaboration de la diode sur la RAM se fait à partir d'une surface de CoFe qui est de nature identique à celle utilisée lors de la fabrication de la MIMIM seule.

### **4.1.3 Qualité de la barrière tunnel et optimisation de la résistance de la RAM**

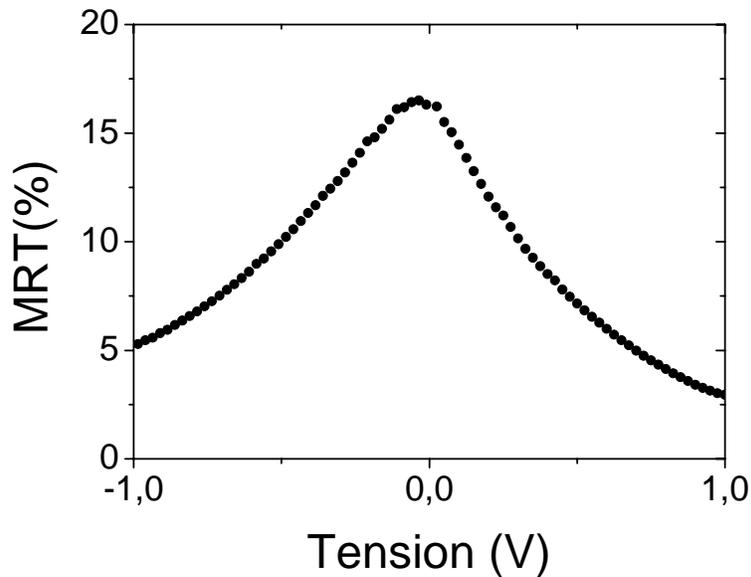
Nous avons utilisé une barrière tunnel typique constituée d'alumine  $AlO_x$ . Ce choix se justifie par la grande expérience de fabrication de cet oxyde au laboratoire concernant la technique de dépôt et le contrôle des épaisseurs nominales. On sait bien que l'on peut faire varier la résistance d'une jonction tunnel en jouant sur la surface de la jonction, sur la nature de l'isolant ou bien sur l'épaisseur de la barrière. Dans notre cas nous avons choisi la dernière possibilité, on va faire varier la résistance de la jonction en modifiant l'épaisseur de la barrière isolante. Ceci n'est pas trivial sachant que la résistance tunnel d'une jonction varie de façon exponentielle avec l'épaisseur de l'oxyde. De petites fluctuations dans l'épaisseur de la barrière vont augmenter de manière significative la résistance de la jonction.

La jonction tunnel est réalisée sur un buffer qui a été optimisé par Tiusan pendant son travail de thèse <sup>[Tiusan\_thèse]</sup>. Ce buffer utilise une combinaison de plusieurs multicouches suivant la configuration : SiO/Cr(1.6nm)/Fe(6nm)/Cu(30nm). Cette structure offre de bonnes propriétés magnétiques, mais surtout une rugosité très faible ( $<1\text{\AA}$  RMS) qui est un facteur primordial pour obtenir une jonction tunnel de bonne qualité. Les contacts inférieurs de la jonction tunnel sont pris dans la couche de Cu.

Nous avons fabriqué les jonctions tunnel magnétiques en utilisant la lithographie optique. Dans la figure 4.1.3.1 nous avons présenté les caractéristiques courant-tension d'une JTM de surface  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  donnant lieu à des courants dans la gamme de 1 à 10  $\mu\text{A}$  qui est également la gamme des courants mesurés aux bornes des diodes MIMIM pour la même surface. On observe clairement les deux courants relatifs aux deux états magnétiques. La figure 4.1.3.2 présente la



**Figure 4.1.3.1** Caractéristiques courant-tension pour la RAM,  $I_{ap}$  courant en configuration antiparallèle,  $I_p$  courant en configuration parallèle.

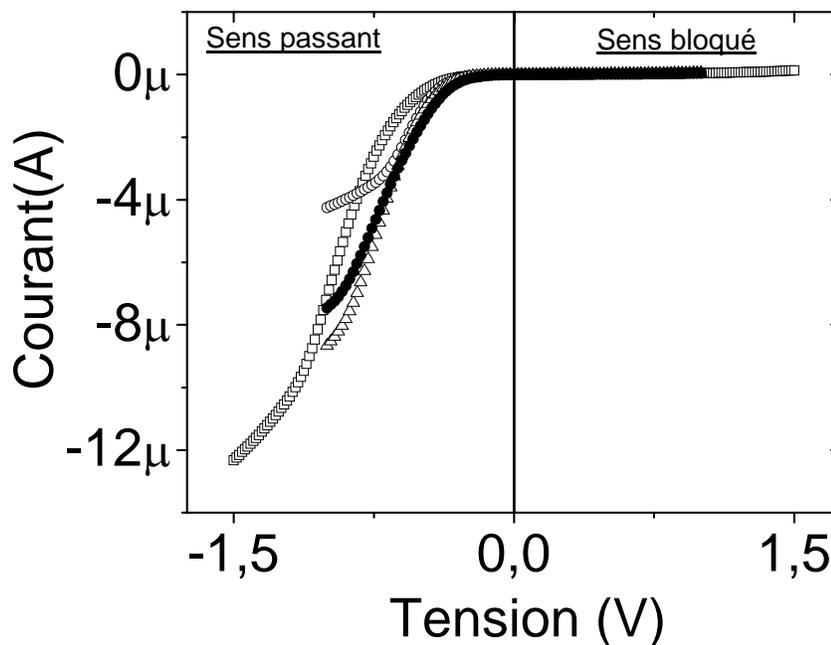


**Figure 4.1.3.2** Dépendance de la magnétorésistance en fonction de la tension appliquée sur la RAM.

dépendance de la magnétorésistance en fonction du voltage. La magnétorésistance obtenue n'est pas très grande : elle n'est que de 16% en comparaison avec les 35% qui peuvent être habituellement atteints. Le fait que la MRT soit ici plus faible peut être expliqué par l'utilisation d'une barrière d'alumine plus épaisse. On observe également une petite asymétrie en tension dans la MRT : ce type d'asymétrie peut être attribué à la forme de la barrière. Dans ce cas on peut s'attendre à une forme trapézoïdale de la barrière du fait de la différence de concentration en oxygène aux deux interfaces de la barrière. Il est possible que l'un des cotés de la barrière soit complètement oxydé et que l'autre manque d'oxygène <sup>[Oepts\_JAP\_01]</sup>.

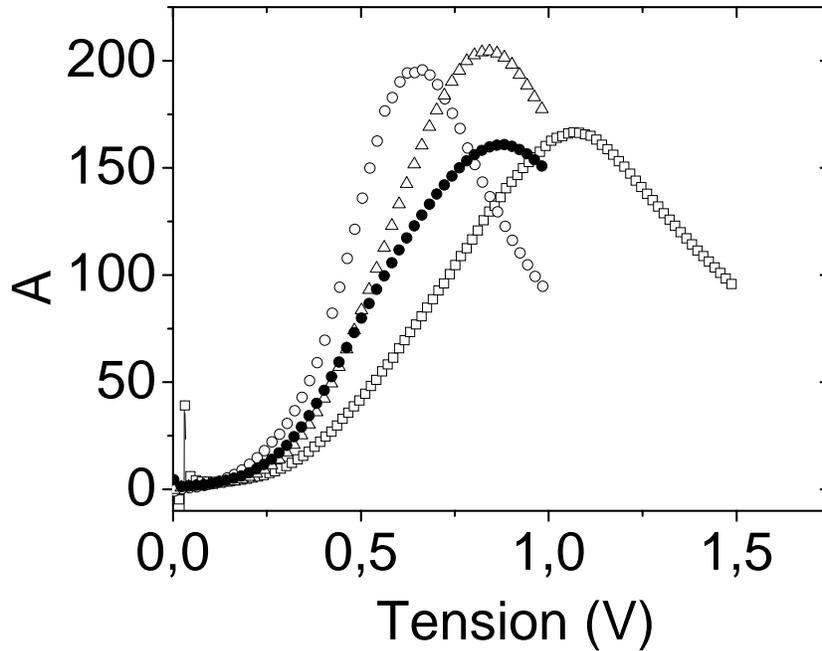
## 4.2 Elaboration de la fonction blocage : MID (Metal Insulator Diode)

Comme nous l'avons montré dans le chapitre précédent consacré à l'étude des structures à deux barrières tunnel, les caractéristiques courant-tension de structures MIMIM sont de type diode. Dans la figure 4.2.1 sont représentées quatre courbes courant-tension typiques de MID



**Figure 4.2.1** Caractéristiques courant-tension de diodes MID avec une couche intermédiaire d'aluminium de 1 nm.

à base d'aluminium. On voit clairement qu'en fonction du signe de la tension appliquée on passe d'un régime de blocage (tension positive) à un régime de conduction (tension négative).



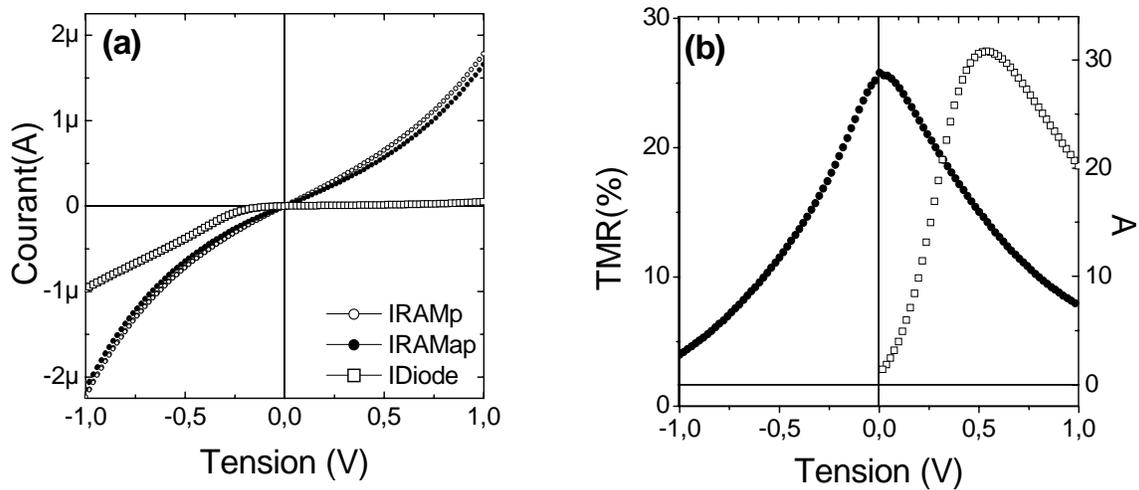
*Figure 4.2.2* Asymétries du courant dans les diodes MID montrées dans la figure 4.2.1.

A partir de ces courbes on peut déduire les courbes d'asymétries de la figure 4.2.2. Ces courbes montrent des asymétries élevées avec un maximum de 200. Ces valeurs sont suffisantes pour satisfaire la fonction de blocage dans une unité de mémoires RAMMID.

### 4.3 Elaboration d'une unité de mémoire RAMMID

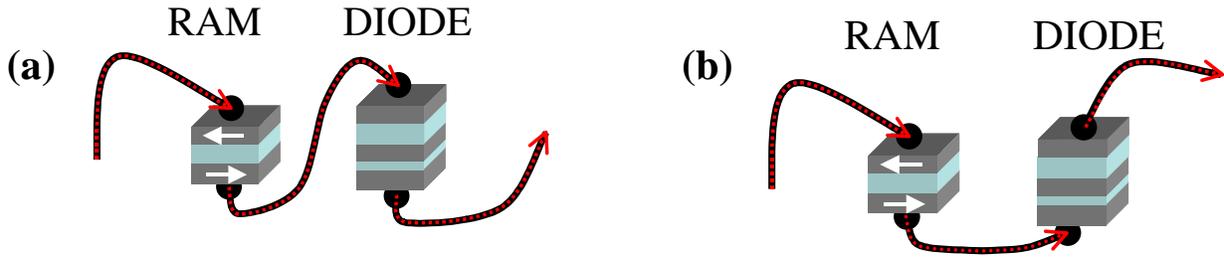
#### 4.3.1 RAM-MID avec contacts macroscopiques et mesures de transport

Nous avons vu dans les paragraphes précédents qu'on dispose d'éléments présentant la fonction mémoire (RAM) et d'éléments assurant la fonction de blocage (MID). Parmi tous les dispositifs réalisés nous en avons sélectionné deux pour lesquels les résistances sont à peu près du même ordre de grandeur (figure 4.3.1.1). Nous avons relié en série ces deux dispositifs avec des fils macroscopiques pour mesurer les caractéristiques courant-tension au travers de la structure entière et étudier le comportement de la magnétorésistance de cet ensemble RAM-MID.



**Figure 4.3.1.1** (a) Caractéristiques courant-tension de la RAM (courbes avec cercles) et caractéristique courant-tension de la MID (courbe avec carrés) et (b) la MRT (symboles pleins) et l'asymétrie (symboles ouverts) correspondantes.

Comme point de départ nous avons mesuré séparément les propriétés électriques de chacun des éléments RAM et MID. La RAM a une magnétorésistance maximale de 25 % et la diode présente une asymétrie de l'ordre de 30. Nous avons relié ces deux dispositifs comme indiqué sur le schéma de la figure 4.3.1.2.

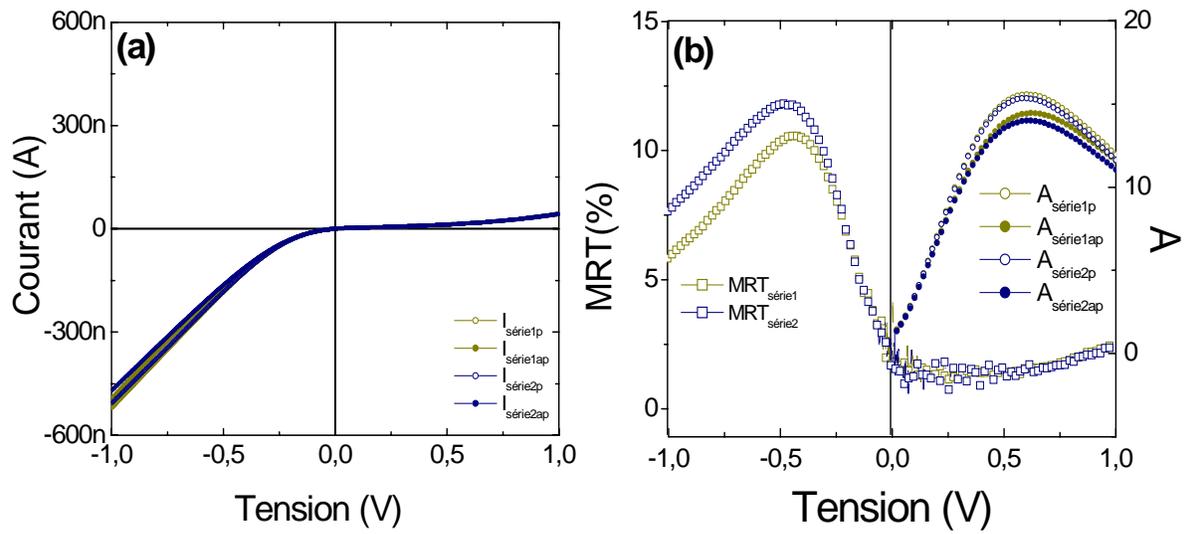


**Figure 4.3.1.2** Schémas de liaison en série pour la RAM et la diode. (a) et (b) correspondent aux deux possibilités de connections : série1 et série2.

Pour une configuration en série, il existe deux possibilités de mise en contact des éléments RAM et MID selon que la barrière fine ou la barrière épaisse de la MID soit en contact avec la RAM, la distribution de la tension sur chacune des barrières est différente et nous avons mesuré respectivement les caractéristiques courant-tension :  $I_{série1p}$ ,  $I_{série2p}$  (parallèle),  $I_{série1ap}$ ,  $I_{série2ap}$  (antiparallèle). Comme on le voit très bien dans la figure 4.3.1.4.a, le caractère asymétrique du transport est préservé tout en conservant la dépendance en champ magnétique des caractéristiques courant-tension. La MRT est bien présente mais atténuée (figure 4.3.1.4.b) et l'asymétrie globale est réduite par rapport à la MID isolée. La diminution de la MRT peut s'expliquer en analysant l'expression définissant la MRT de la RAM-MID:

$$MRT_{RAM-MID} = \frac{R_p - R_{ap}}{R_p + R_{MID}},$$

où  $R_p$  et  $R_{ap}$  représentent respectivement la résistance en configuration magnétique parallèle et antiparallèle de la RAM, et  $R_{MID}$  est la résistance de la MIMIM. D'après la formule, on voit que la MRT diminue si la jonction tunnel RAM est disposée en série avec une autre résistance. Le décalage par rapport à l'origine de  $-0.5$  V de la position du maximum de MRT résulte du réajustement de la tension flottante. De plus, on remarque que le maximum d'asymétrie correspond approximativement au maximum de la MRT en terme de voltage. Ceci est encourageant pour les applications des dispositifs RAM-MID en tant qu'unité de mémoire.



**Figure 4.3.1.4** (a) Caractéristiques courant-tension d'une RAM-MID avec des contacts macroscopiques. (b) La MRT et les courbes d'asymétrie déduites pour cette RAM-MID.

On voit très clairement que plusieurs facteurs influencent les caractéristiques du système RAM-MID. Afin de mieux comprendre et d'optimiser les caractéristiques des éléments RAM-MID, nous avons réalisé des simulations dont les résultats sont discutés dans le paragraphe suivant.

### 4.3.2 Simulation de la RAM - MID (comportement série).

Les simulations d'un ensemble RAM-MID nous sont d'une grande aide afin de procéder à un choix judicieux des valeurs des résistances typiques de chacun des deux éléments RAM et MID. Nous allons étudier ici la réponse globale du système série RAM-MID en faisant varier les résistances relatives de chacun des éléments individuels.

Pour modéliser la dépendance de la MRT en fonction du voltage nous avons utilisé la formule de Brinkmann <sup>[Brinkmann\_JAP\_70]</sup>. Cette formule s'exprime par une dépendance polynomiale de degré trois du courant traversant la RAM en fonction de la tension  $V$  :

$$I_{RAM}(V) = aV + bV^2 + cV^3,$$

où les coefficients  $a$ ,  $b$  et  $c$  sont des paramètres que l'on peut déduire à partir des courbes  $I(V)$  expérimentales.

Pour simuler la réponse  $I(V)$  de la MID, on pourrait choisir en première approximation une fonction exponentielle en  $V$ , toutefois nous avons vu dans le chapitre I et III que nos courbes  $I(V)$  mesurées aux bornes des éléments MID correspondraient plutôt à la somme de deux fonctions arctangente en  $V$ . Cette approximation, introduite par Peterson <sup>[Peterson\_JPC\_01]</sup>, résulte de calculs prenant en compte le transport tunnel via un état de résonance.

$$I(V) = I_0 \left\{ \arctan[\theta (E_0 + peV)] - \arctan[\theta (E_0 + (1-p)eV)] \right\},$$

Pour le calcul des caractéristiques courant - tension au travers de la RAM en série avec la MIMIM on s'appuie sur la loi de Kirchoff qui nous dit que pour une tension donnée le courant traversant l'ensemble du dispositif est le même partout. Cela veut dire que :

$$I_{RAM}(V_{RAM}) = I_{MID}(V_{MID}),$$

où  $V_{RAM}$  et  $V_{MIMIM}$  représentent la chute de tension aux bornes de la RAM et de la MID. L'expression qui lie les tensions partielles à la tension totale  $V$  appliquée au dispositif RAM – MID s'écrit :

$$V = V_{RAM} + V_{MID},$$

Cela revient à résoudre l'équation en fonction de  $V_{RAM}$  avec la tension appliquée  $V$  connue :

$$I_{RAM}(V_{RAM}) = I_{MID}(V - V_{RAM}),$$

On résout numériquement cette équation pour déterminer  $V_{RAM}(V)$  en fonction de la tension appliquée  $V$  et le courant  $I(V)$  est simplement égal à  $I_{RAM}(V_{RAM})$ .

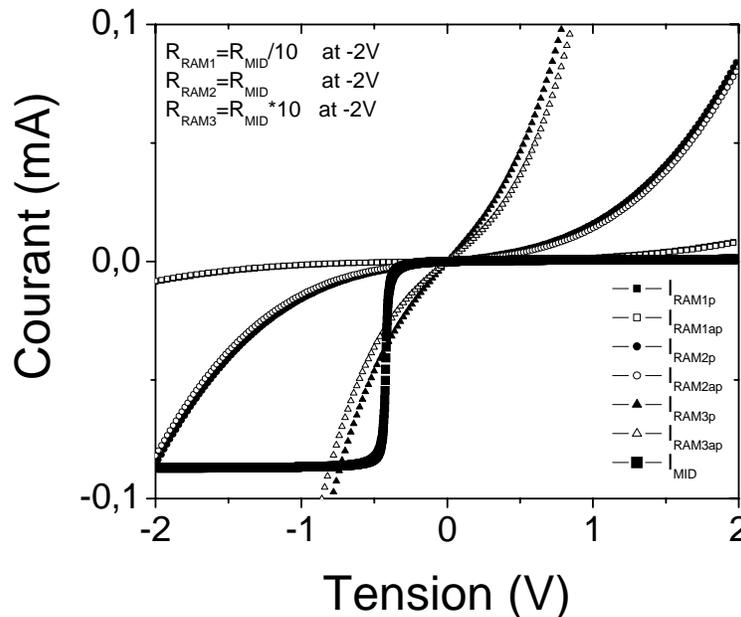
Supposons que l'allure des courbes  $I(V)$  pour la RAM et de la diode soit fixée et faisons varier les intensités  $I_{RAM}$  et  $I_{MID}$  l'une par rapport à l'autre. Nous étudions les trois cas : résistance de la RAM nettement plus grande que celle de la MID, résistance de la RAM égale à la résistance de la MID, et résistance de la RAM plus petite que celle de la MID.

1)  $I_{RAM1} = I_{MID} / 10$  à  $V = -2 V$  c'est à dire  $R_{RAM1} = R_{MID} \times 10$ .

2)  $I_{RAM1} = I_{MID}$  à  $V = -2 V$  c'est à dire  $R_{RAM2} = R_{MID}$ .

3)  $I_{RAM1} = I_{MID} \times 10$  à  $V = -2 V$  c'est à dire  $R_{RAM3} = R_{MID} / 10$ .

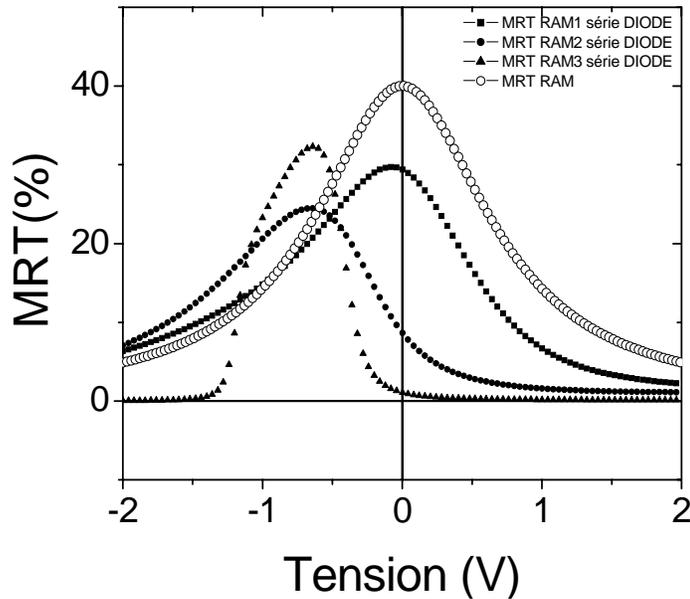
Les courbes  $I(V)$  de la RAM et de la MID sont représentées par la figure 4.3.2.1.



**Figure 4.3.2.1** Caractéristiques courant-tension simulées de la MID (symboles carrés remplis) et de la RAM avec les trois résistances différentes. Les courbes avec des symboles remplis correspondent à la configuration magnétique parallèle, les symboles vides correspondent à la configuration anti-parallèle.

L'efficacité de la RAM-MID s'analyse à partir des courbes de l'asymétrie et de la MRT en fonction de la tension totale appliquée au dispositif. La courbe de magnétorésistance en fonction de la tension de la RAM isolée est centrée en zéro et présente un maximum de 40%

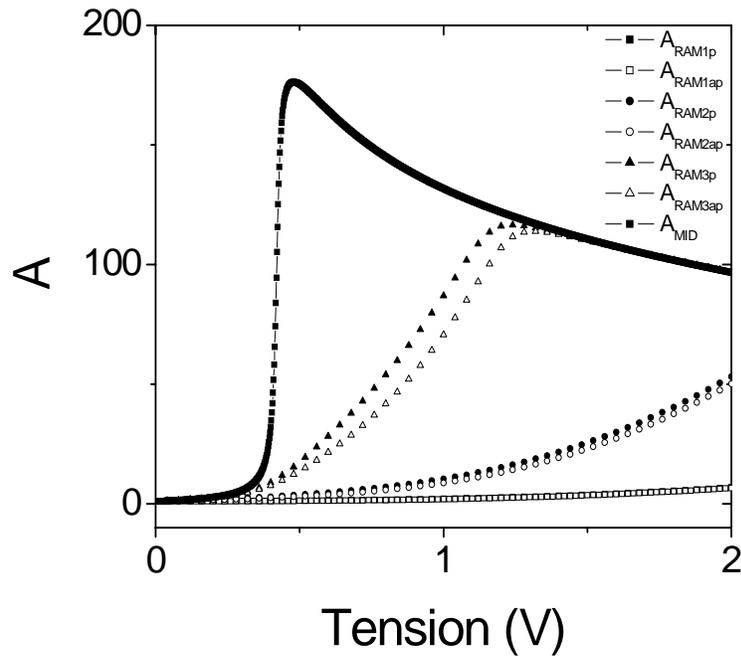
(figure 4.3.2.2). On va discuter en détail les courbes obtenues par simulation du montage série (figures 4.3.2.2 et 4.3.2.3). Lorsque la résistance de la RAM est 10 fois plus grande que celle de la MID, on observe que la MRT de l'ensemble reste élevée, avec un maximum d'environ 30 % (courbe avec carrés remplis) mais l'asymétrie chute très fortement, avec un maximum de 7 par rapport à 200 pour la MID isolée.



**Figure 4.3.2.2** Valeurs de la MRT de la RAM isolée (courbe avec cercles vides) et des trois RAM-MID (autres symboles).

Dans le cas de figure où la résistance de la RAM est 10 fois plus petite que celle de la MID, le maximum de magnétorésistance diminue vers 33% et est décalé vers les tensions négatives : et le domaine de fonctionnement de la RAM-MID devient étroit en tension appliqué et se situe entre -0.5 et -1 volt. Le troisième cas représente l'égalité entre les résistances de la RAM et de la MID. C'est un cas favorable vu qu'on retrouve une grande MRT (courbe avec cercles remplis) ainsi qu'une grande asymétrie dans un intervalle de tension large.

Dans tous les cas on voit clairement que l'asymétrie et la magnétorésistance sont des propriétés interdépendantes et que l'une des fonctionnalités peut être masquée par l'autre. L'optimum est obtenu quand les résistances de la RAM et de la MID sont égales.

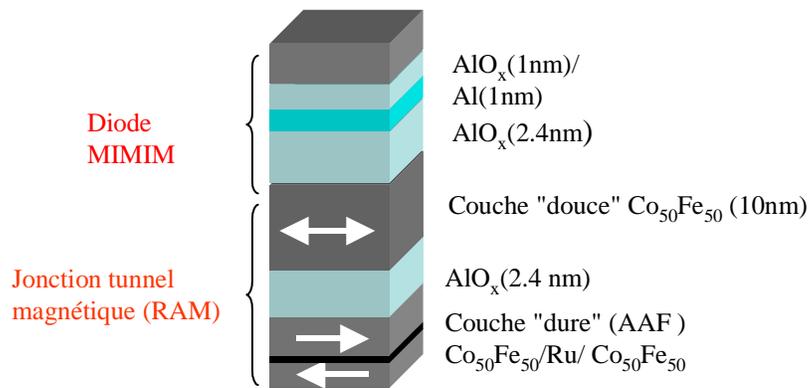


**Figure 4.3.2.3** Valeurs de l'asymétrie de la diode MID isolée (courbe avec carrés remplis) et des trois RAM-MID (autres symboles).

Un autre point très important que l'on peut tirer de ces simulations concerne le choix de la tension à appliquer lorsque l'on procède à une mesure d'un cycle de MRT. Par exemple, pour la configuration RAM3-MID, si on applique un petit voltage (ou un voltage positif grand), on ne va pas voir la dépendance de la résistance en fonction du champ magnétique : cela ne veut pas dire qu'il n'y a pas de la MRT dans la RAM mais simplement que la variation de résistance provenant de la RAM est négligeable devant la résistance de la RAM-MID en série. Il faut appliquer un autre voltage, par exemple -0.75 V.

### 4.3.3 Système RAMMID intégré

Nous avons étudié dans le paragraphe précédent les propriétés d'un ensemble composé d'une RAM et d'une MID connectées macroscopiquement en utilisant des fils. Nous avons montré que les deux fonctionnalités peuvent coexister si les résistances des éléments individuels sont voisines. Ce point est critique et montre l'importance de bien contrôler les épaisseurs des barrières tunnel lors de l'élaboration puisque c'est la transmission à travers elles qui détermine leurs résistances.

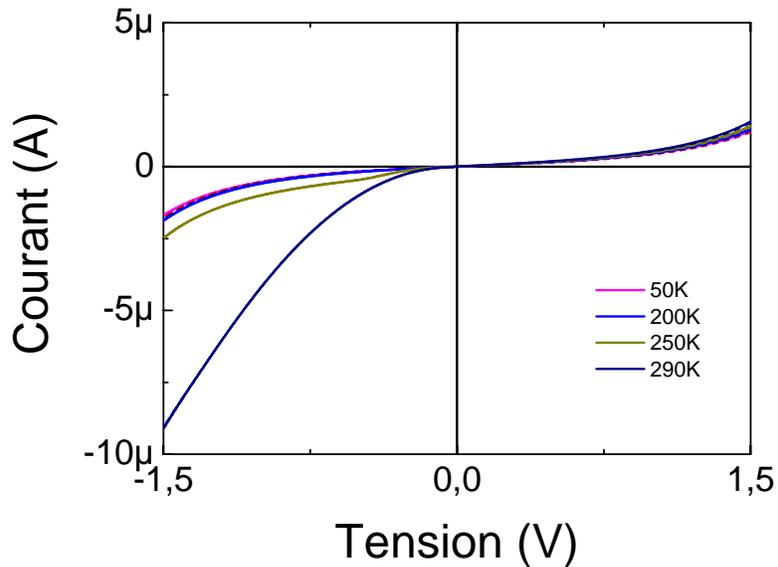


*Figure 4.3.3.1 Schéma de la structure multicouche RAMMID.*

Dans ce paragraphe nous allons développer les propriétés d'un dispositif intégrant la RAM et la MID dans la même séquence de multicouche  $\text{CoFe}/\text{Ru}/\text{CoFe}/\text{AlO}_x/\text{CoFe}/\text{AlO}_x/\text{Al}/\text{AlO}_x/\text{Co}/\text{Fe}$  (figure 4.3.3.1). Nous avons déposé une couche de  $\text{CoFe}$  d'épaisseur 10 nm qui est utilisée à la fois comme couche "douce" de la RAM et comme première électrode de la MID. La croissance des diodes MIMIM ont été optimisées à partir d'une couche de  $\text{CoFe}$ .

Les propriétés magnétiques de la RAM sont celles montrées dans le paragraphe 4.1 : on s'attend à une MRT proche de 25 % pour une épaisseur d'alumine de 2.4 nm. Nous avons mesuré plusieurs séries d'échantillons montrant une très grande dispersion des résultats. La majorité des jonctions montrent soit de la MRT et pas d'asymétrie, soit de l'asymétrie et pas de MRT. Ceci peut s'expliquer par la destruction de l'une des barrières pendant la phase de microstructuration par lithographie optique ou bien par la difficulté à obtenir des couches d'oxyde très homogènes c'est à dire avec très peu de fluctuations des paramètres de la barrière. Parmi ces jonctions, nous

n'avons trouvé que quelques unes qui montrent à la fois de la MRT et l'asymétrie. La figure 4.3.3.2 représente des caractéristiques courant-tension asymétriques d'un système RAMMID intégré.

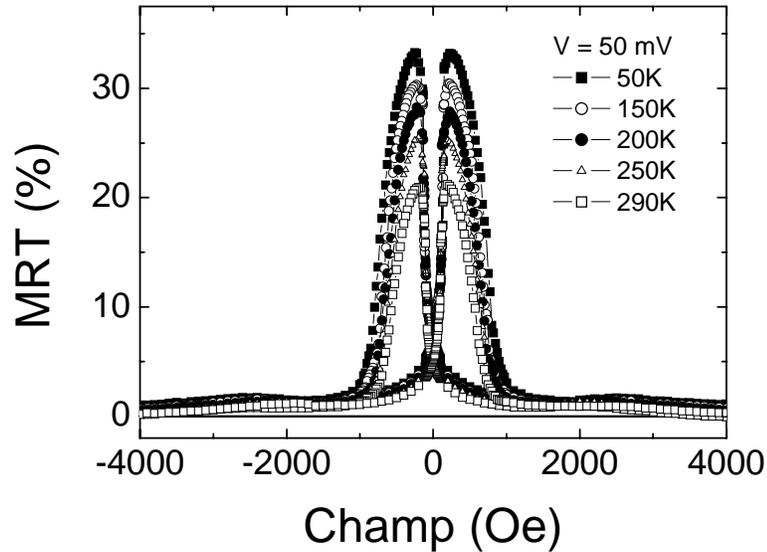


**Figure 4.3.3.2** Caractéristique courant-tension de la RAMMID intégrée et sa dépendance en fonction de la température.

Nous avons fait des études en température sur ces jonctions. La caractéristique courant-tension est asymétrique à température ambiante et devient symétrique à basse température. Cette dépendance peut être attribuée uniquement à la diode qui, comme nous l'avons vu au chapitre 3, montre ce type de comportement alors qu'une jonction tunnel magnétique simple ne présente pas une forte dépendance de sa résistance en fonction de la température <sup>[Duke\_TS]</sup>. Par conséquent, la disparition de l'asymétrie, conjointement avec l'augmentation de la résistance, serait uniquement dictée par la MID.

Dans la RAM, nous avons deux champ coercitifs : le plus petit, associé à la couche "douce", vaut 80 Oe et le second, associé à la couche "dure" constituée d'un AAF, est proche de 600 Oe. Ceci nous permet de définir les deux états magnétiques : parallèle à +12000 Oe et antiparallèle à -80 Oe. Nous avons analysé la dépendance en champ magnétique de la résistance de cette RAMMID et nous avons poursuivi par une étude en température de la MRT (figure 4.3.3.3). La compréhension des propriétés magnétoélectriques de ce dispositif comprenant

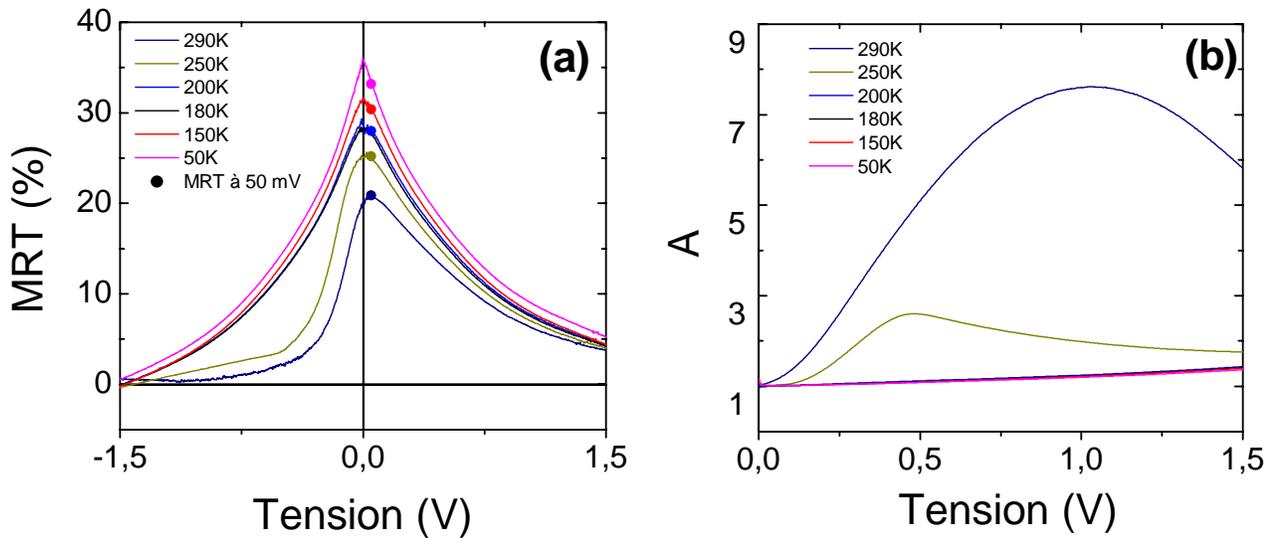
une RAM en série avec une MID est délicate compte tenue de la présence de la tension flottante qui sépare les deux sous-systèmes. La MRT augmente significativement lorsque la température baisse : ceci n'est pas en accord avec les prédictions qualitatives énoncées au paragraphe 4.3.3.2 puisque dans une configuration de type série, la MRT ne peut que décroître si la résistance de la MID augmente.



**Figure 4.3.3.3** Evolution en fonction de la température des cycles de magnéto-résistance mesurés à 50 mV.

Vu que la résistance de la diode varie fortement avec la température, cette dépendance va entraîner une redistribution du voltage appliqué à chacun des sous-systèmes. En abaissant la température, ce système se comporte comme un ensemble composé d'une résistance variable  $R_{MID}$  et d'une résistance  $R_{RAM}$  faiblement dépendante de la température. En appliquant une tension  $V$  à la RAMMID, la tension aux bornes de la RAM est  $V_{RAM}$ . Cette tension n'est plus du tout la même à basse température car la résistance de la MID varie exponentiellement plus vite avec la température que la résistance de la RAM. Ainsi pour une même tension  $V$  appliquée sur la RAMMID, selon que la mesure se fasse à basse température ou à la température ambiante, la tension qui s'applique à chaque élément varie fortement. En suivant ce raisonnement, on devrait observer à basse température une magnéto-résistance plus faible qu'à température ambiante car toute la tension s'appliquerait aux bornes de la MID afin de garantir la conservation du courant

dans la RAM et dans la MID. Or, nos mesures (figures 4.3.3.3 et 4.3.3.4) montrent la tendance contraire : la MRT augmente lorsqu'on baisse la température.



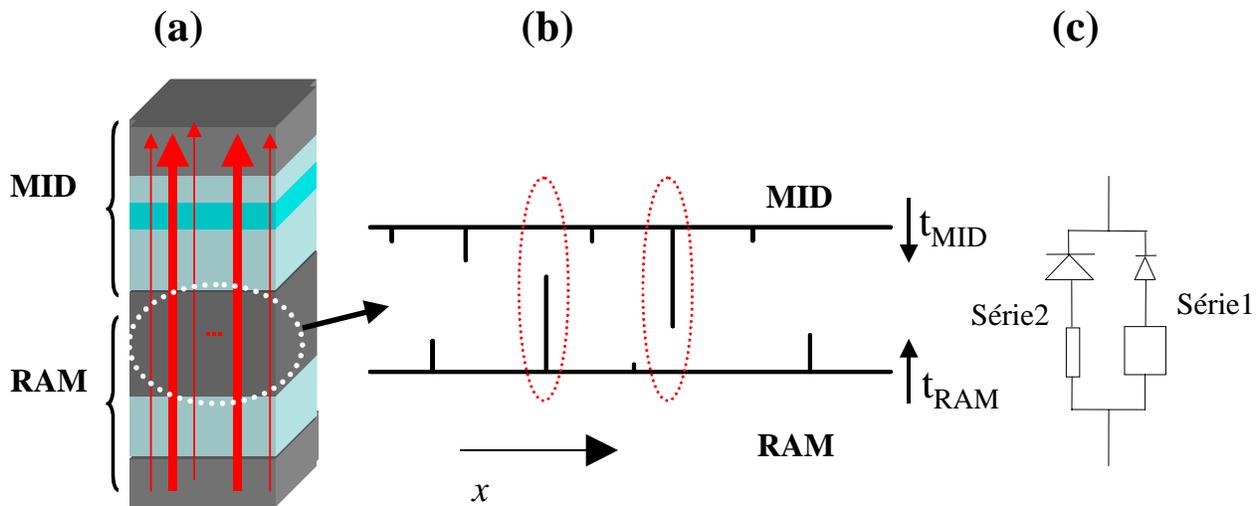
**Figure 4.3.3.4** (a) Dépendance en fonction du voltage de la magnétorésistance pour quelques températures et (b) de l'asymétrie. Les symboles cercles pleins correspondent à la MRT déterminée à partir des cycles représentés dans la figure 4.3.3.3.

L'asymétrie disparaît à basse température : ceci est clairement montré par la figure 4.3.3.4.b. Une chose très remarquable dans ces courbes est que, contrairement à ce qui est prévu par la modélisation, la magnétorésistance est pratiquement nulle aux points de tension où l'asymétrie est maximale. Dans ce dispositif, il semble que les deux propriétés, asymétrie et MRT, s'excluent l'une l'autre : on a le maximum d'asymétrie lorsque la MRT est au minimum.

De toute évidence l'intégration d'une RAM et d'une MID pour former un seul système RAMMID ne se ramène pas à une simple mise en série des deux éléments. De ce fait, la fenêtre de mesure en tension montrant à la fois de la MRT et de l'asymétrie est très restreinte. Un autre effet physique traduisant un état de "cohérence" au sein du système doit être considéré. Dans le paragraphe suivant on va essayer d'expliquer ce comportement atypique à l'aide de simulations se basant sur des schémas électriques équivalents.

### 4.3.4 Interprétation possible du comportement d'une RAMMID intégrée

Dans ce paragraphe, nous allons suggérer une interprétation qui permettrait de comprendre les propriétés de transport que nous avons observées sur le système RAMMID intégré. L'idée est de supposer que le transport au niveau de la couche "douce" de CoFe séparant la RAM et la MID se fait au travers de canaux de haute conduction comme schématisé dans la figure 4.3.4.1 (a). Ces canaux de haute conduction domineraient le transport total et seraient identifiés comme étant des "événements rares" de l'effet tunnel dûs à des fluctuations des paramètres de la barrière tunnel <sup>[Bardou\_EPL\_97]</sup>. Da Costa et collaborateurs <sup>[Da Costa\_EPJ\_99]</sup> ont montré l'importance de ces points chauds dans l'effet tunnel : la transmission tunnel est très inhomogène et de toutes petites fluctuations de l'épaisseur de la couche d'oxyde conduisent à l'apparition de pics de courant de très forte intensité qui dominant le transport total.



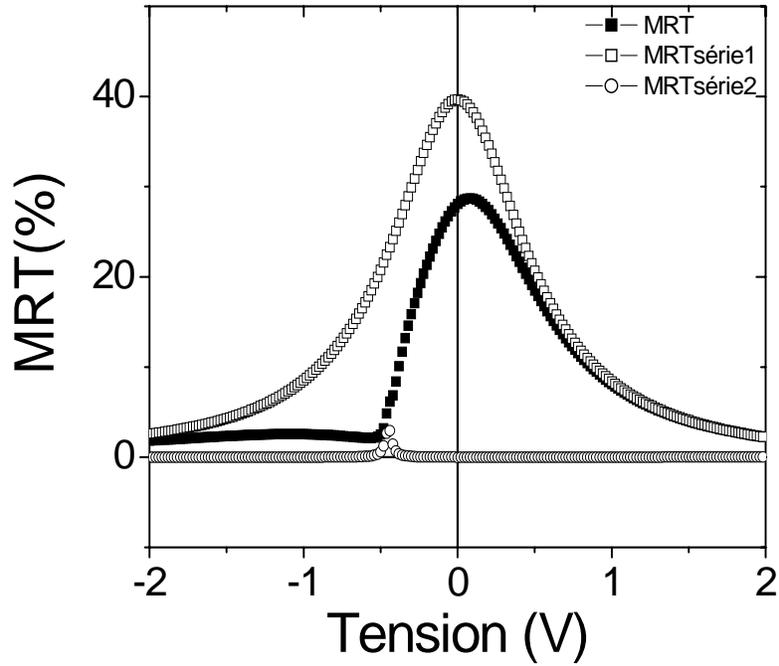
**Figure 4.3.4.1** (a) Transport corrélé dans la RAMMID. (b) "Peignes" de transmission tunnel  $t_{RAM}$  et  $t_{MID}$  à travers la RAM et MID. (c) Schéma électrique équivalent de ce type de transport.

Les profils de transmission tunnel peuvent être schématisés par des "peignes" dont la longueur des dents correspond à l'intensité du courant (figure 4.3.4.1.b) : les événements rares (très forte transmission) sont représentés par de grandes dents et les événements les plus probables (de transmission typique c'est à dire faible mais non nulle) sont représentés dans le

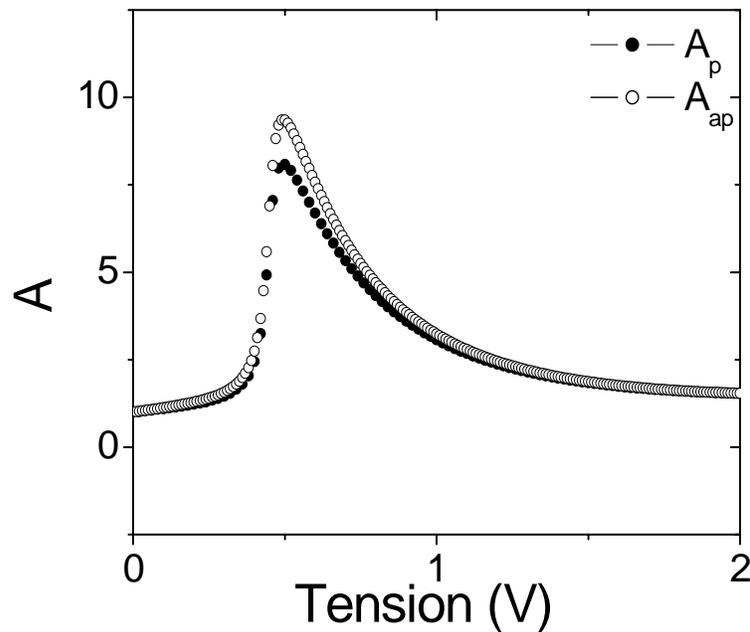
fond continu. D'après les études théoriques et expérimentales sur les fluctuations dans l'effet tunnel, la distribution de l'intensité de ces pics suit une loi log-normale. La croissance de la MID sur la RAM revient à mettre les deux "peignes" face à face selon le schéma de la figure 4.3.4.1.b. Chaque élément a son propre "peigne" et un site avec un pic intense d'un des éléments a de grandes chances de se retrouver en face d'un site "typique" de l'autre et réciproquement. Ainsi, nous distinguons les trois situations : (i) site "rare" à haute transmission en face d'un autre site "rare" à forte transmission (cas très peu probable), (ii) site typique : en face d'un site typique : c'est le cas le plus probable mais dans notre approche nous considérons sa contribution au courant total est négligeable vu que les courants sont très faibles (plusieurs ordres de grandeurs inférieurs aux sites dominante du courant) et (iii) site "rare" en face d'un site "typique" : c'est le cas dont la contribution au courant totale est dominante. Cette approche est valable si les électrons injectés à partir des points chauds dans la couche métallique "douce" de CoFe restent balistiques sur des distances de l'ordre de 10 nm jusqu'à atteindre la deuxième jonction. C'est une hypothèse forte mais probable si on se réfère aux travaux de Wulfhekel <sup>[Wulfhekel\_APL\_01]</sup> (expérimental) et Tsymbal <sup>[Tsymbal\_PRB\_01]</sup> (théorique) qui montrent qu'un pic de conductivité dû à un "défaut" ou à une impureté dans une barrière tunnel peut se propager de façon cohérente dans une couche métallique sur des épaisseurs bien supérieures à 10 nm.

L'équivalent électrique de ceci correspond à un montage en parallèle de deux branches RAM-MID en série (figure 4.3.4.1.c). Les branches Série1 et Série2 sont respectivement composées d'une RAM de résistance "typique" en série avec une MID de très faible résistance et d'une RAM de très faible résistance en série avec une MID de résistance "typique". Nous avons fait des simulations de la MRT et de l'asymétrie en fonction de la tension appliquée à chacune de ces branches séparément et lorsque la tension s'applique aux deux branches montées en parallèle. Pour le calcul nous avons supposé  $R_{\text{typiques}}$  égal à 1000 fois la résistance  $R_{\text{rares}}$ . Les courbes ainsi obtenues sont montrées dans les figures 4.3.4.2 et 4.3.4.3.

Comme on peut bien le voir dans le cas de la branche Série1, le caractère dominant vient de la RAM : la magnétorésistance est grande et l'asymétrie petite. Dans l'autre branche (Série2), le comportement est juste l'opposé : la MRT est faible et on a une forte asymétrie imposée par la MID. La courbe de la MRT représentée par des carrés remplis résulte de la mise en parallèle des branches. Ce comportement de la MRT calculée dans la RAMMID est en bon accord avec les



**Figure 4.3.4.2** Simulation de la MRT de la branche Série1 (symboles carrés vides), de la branche Série2 (symboles cercles vides) et des deux branches montées en parallèle (symboles carrés remplis).



**Figure 4.3.4.3** Simulation de l'asymétrie du système RAMMID avec les deux branches montées en parallèle. Le maximum d'asymétrie se situe à  $V=0.5$  V.

données expérimentales décrites dans le paragraphe précédent : au maximum de l'asymétrie, c'est à dire à 0.5 V, la MRT est minimale.

En utilisant ce schéma équivalent, nous avons reproduit la MRT et l'asymétrie mesurées dans le dispositif RAMMID. Un modèle plus précis devra être développé où il faudrait notamment introduire un aspect statistique tel que des distributions log-normale des transmissions tunnel dans la RAM et dans la MID. Ce travail va être réaliser en dehors du cadre de cette thèse et devrait en particulier identifier les paramètres pertinents qui gouvernent le comportement de type parallèle ou série, dans ces systèmes.

L'interprétation que nous avons donné ici est une hypothèse séduisante qu'il faudra vérifier à l'aide de calculs et d'expériences de transport balistique d'électrons injectés par effet tunnel dans un métal.

### **4.3.5 Vision d'ensemble du comportement des systèmes RAMMID intégrés**

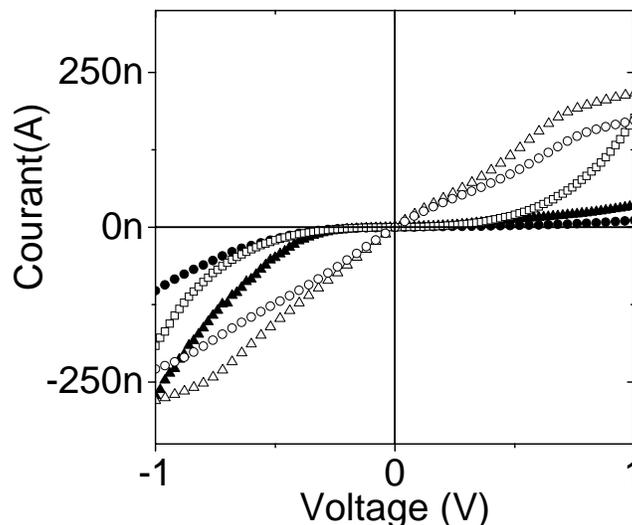
Comme nous l'avons vu dans les paragraphes précédents, l'élaboration d'une unité de mémoire RAM-MID nécessite beaucoup d'optimisations au niveau de la croissance, du magnétisme et des barrières tunnel. Même si ces deux dispositifs sont à peu près contrôlables en tant qu'objets uniques, les propriétés d'asymétrie et de magnétorésistance après leur l'intégration sont très variées. Pratiquement, il faut optimiser la diode sur une jonction tunnel magnétique de façon à ce que sa résistance soit du même ordre de grandeur que la résistance de la RAM. L'élaboration de la couche "douce" qui lie les deux dispositifs RAM et MIMIM peut poser un problème. Normalement, cette couche doit décorrélérer du point de vue électrique la RAM de la MID pour avoir deux dispositifs en série. On peut penser que si cette couche est très épaisse, de plusieurs centaines de nanomètres, les deux systèmes n'interagissent plus. C'est probablement une des raisons pour laquelle Sousa et collaborateurs <sup>[Sousa\_APL\_99]</sup> ont utilisé une couche d'aluminium de 300 nm d'épaisseur pour séparer la RAM d'une diode semi-conductrice. Le problème qui se pose dans notre cas est que, lorsqu'on augmente l'épaisseur de la couche "douce" de CoFe, la rugosité en surface augmente, et par conséquent les caractéristiques I(V) de la MID doivent certainement se dégrader. Pour les grandes épaisseurs de CoFe, d'autres

difficultés apparaissent, notamment lors du processus de lithographie avec un fort accroissement de l'inhomogénéité de la gravure et un redépôt plus importante du métal gravé.

La démarche inverse qui consiste à faire croître la RAM sur la MID a été réalisée mais aucun effet magnétorésistif n'a été obtenu même avec des épaisseurs standards (10 nm) de la couche réalisant la liaison. Ici, nous n'avons plus un système magnétique "dur-doux" nécessaire au bon fonctionnement de la RAM puisqu'à cause de la rugosité de la barrière de la RAM, les deux couches sont couplées par effet "peau d'orange" et leurs aimantations tournent ensemble dans le champ magnétique.

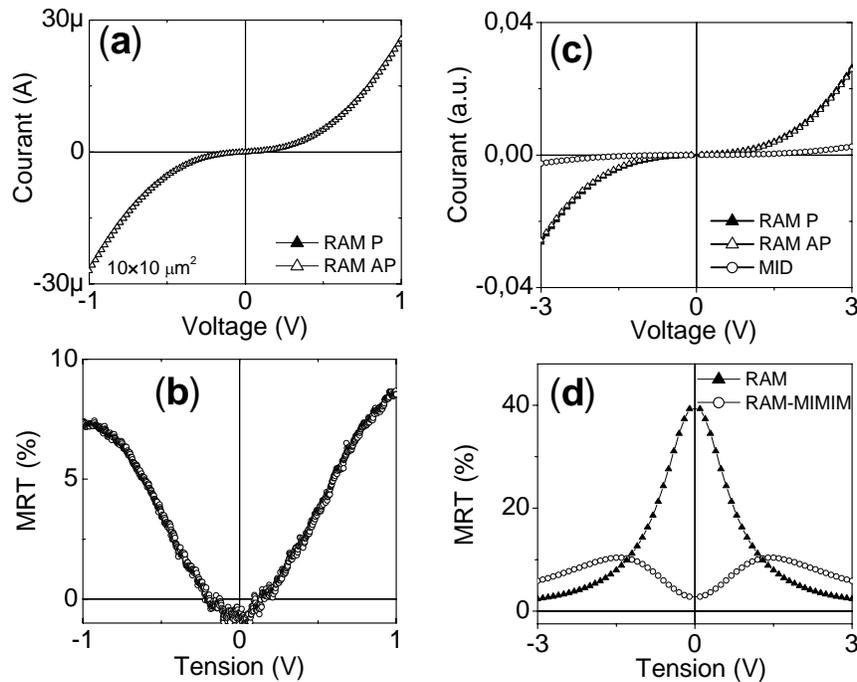
Le fait d'introduire des interfaces en structure multicouche dans la couche connectant la RAM et la MID devrait atténuer les effets balistiques. Mais, dans ce cas, les difficultés liées à la croissance et à la rugosité sont également très difficiles à surmonter et il est difficile de contrôler la rugosité de surface qui est fondamentale au bon fonctionnement de la diode.

Nous avons fait plusieurs essais pour tenter d'optimiser le fonctionnement et obtenir des caractéristiques "série" dans une RAMMID. Plusieurs démarches ont été examinées : modification de la résistance de la RAM et variation de l'épaisseur de la couche "douce" de CoFe. Toutefois aucune tendance générale n'en est ressortie et l'allure des caractéristiques courant-tension est très variée; symétrique, non-symétrique, forme plus complexe. Un récapitulatif simplifié de ces courbes est présenté dans la figure 4.3.5.



**Figure 4.3.5** Quelques caractéristiques courant-tension d'un échantillon RAMMID avec une couche "douce" de 10 nm.

Certains échantillons montrent de la MRT mais pas d'asymétrie. Un exemple intéressant est montré dans la figure 4.3.6 (a) et (b), où nous n'avons pas d'effet diode : la réponse est symétrique mais l'allure de la MRT en fonction du voltage est plutôt inhabituelle. En effet, celle-ci présente un minimum autour de zéro : cette dépendance est très intéressante car elle est à l'inverse de ce qu'on mesure généralement dans une jonction tunnel magnétique simple. Nous avons fait des simulations (figure 4.3.6 (c) et (d)) et reproduit la courbe de magnétorésistance en fonction de la tension. Nous avons considéré une MIMIM, avec une caractéristique I(V) symétrique et une grande résistance, montée en série avec une RAM de résistance plus faible. Ceci peut se justifier par la destruction de la barrière fine de la MIMIM pendant le processus de lithographie qui effectivement résulterait en une MIMIM qui ne montre plus d'asymétrie.



**Figure 4.3.5** (a) Caractéristique courant-tension symétrique mesurée et d'une RAMMID atypique, (b) MRT obtenue et (c) (d) simulations des courbes I(V) et de la MRT.

Vue la complexité du système, on a beaucoup de difficultés à interpréter ces résultats proprement. Notamment, on ne sait pas vraiment quelles sont les valeurs des résistances de chacun des dispositifs et on a vu que la variation du rapport entre ces résistances peut entraîner la disparition de l'asymétrie ou de la magnétorésistance.

## Conclusions

Dans ce chapitre nous avons étudié la possibilité d'intégrer une diode MIMIM dans une unité de mémoire MRAM. Même si la procédure apparaît au premier point de vue assez simple, la mise en série de la diode MIMIM avec une jonction tunnel magnétique n'est pas triviale.

On a montré la possibilité de fabriquer des jonctions tunnel magnétiques avec une magnétorésistance acceptable pour des applications en tant que mémoires non-volatiles. Les diodes MID fabriquées utilisent une couche intermédiaire d'aluminium dont l'asymétrie pouvait atteindre un maximum de 200 pour une tension appliquée de 1V.

Les simulations nous montrent l'importance du rapport des résistances entre les deux dispositifs. On voit que si la résistance d'un des dispositifs domine, elle va noyer les effets de l'autre dispositif. Pour garder les deux fonctionnalités, les dispositifs doivent avoir des résistances du même ordre de grandeur.

Nous avons montré la possibilité de coexistence de la magnétorésistance et de l'asymétrie dans un même dispositif RAMMID. Par contre les formes des courbes de magnétorésistance ne semblent pas correspondre à un comportement purement série. La présence de points chauds dans les processus de transmission par effet tunnel au travers des barrières successives peut expliquer un comportement de type parallèle. Dans cette approche la transmission du courant de la RAM vers la MID et inversement, se fait par des canaux de forte conduction montés en parallèle.

Finalement, nous avons discuté dans ce chapitre du rôle très important joué par les résistances de chacun des deux dispositifs ainsi que du rôle de la couche qui fait la liaison entre les deux éléments. Pour décorrélérer électriquement les deux dispositifs, il y aurait plusieurs voies à suivre: (i) augmenter l'épaisseur de la couche intermédiaire, (ii) créer plusieurs interfaces pour augmenter les collisions et thermaliser les électrons et (iii) procéder à des mesures de chacun des dispositifs séparément au moyen d'une prise de contact sur la couche de liaison (dispositifs à trois terminaux).



## **Chapitre 5**

# **Conclusion générale**



## Chapitre 5 : Conclusion générale

Un des objectifs de ce travail de thèse est de valider le mode de fonctionnement d'une diode Métal-Isolant-Métal-Isolant-Métal (MIMIM) avec un rapport de rectification élevé.

La démarche suivie pour arriver à une configuration optimale en termes de rectification a été d'explorer l'influence de la modification des épaisseurs des deux barrières et de la nature et de l'épaisseur de la couche métallique intermédiaire prise en sandwich entre les deux barrières. Dans tous les cas étudiés, nous avons utilisé des barrières d'alumine ( $\text{AlO}_x$ ) avec différentes épaisseurs (généralement 1.8 nm pour l'une et 1 nm pour l'autre) pour obtenir une structure asymétrique en résistance.

Pour mieux comprendre le phénomène de transport qui a lieu dans de telles structures, nous avons élaboré de nombreuses séries d'échantillons avec différentes couches intermédiaires par la technique de pulvérisation cathodique. Ces échantillons ont été caractérisés par magnétométrie afin de préciser les champs coercitifs et au niveau structural à l'aide de la microscopie électronique à transmission. Utilisant la lithographie optique, nous avons fabriqué des jonctions tunnel de différentes tailles latérales ( $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ ,  $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ ) pour faire des mesures de transport du courant  $I(V)$  perpendiculaire au plan de croissance et de la MRT en fonction de la température jusqu'à 10 K. En utilisant différents types de métaux (Al, Cu, Ru, Co) pour la couche intermédiaire, nous avons obtenu des caractéristiques courant-tension très variées, des rapports de rectification très différents (avec une valeur maximale de 200 pour l'Al) et des résistances variant de plusieurs ordres de grandeur.

Les mesures de transport des structures à deux barrières montrent clairement des caractéristiques courant-tension asymétriques et mettent en évidence le rôle essentiel joué par des résonances de transmission par des états discrets. La nature de la couche intermédiaire et son mode de croissance déterminent la morphologie et la qualité de ses interfaces avec les isolants. Pour avoir des états de résonance bien isolés en énergie il faut faire des couches intermédiaires très fines. Par contre, les fluctuations d'épaisseur dans la couche intermédiaire vont détruire la résonance ce qui peut expliquer la dispersion des résultats. Ainsi, dans le cas d'une couche intermédiaire de Cu de 1 nm d'épaisseur nominale, des rapports de rectification allant jusqu'à 20 ont été obtenus pour une tension appliquée autour de 1V. Dans ce cas, la couche intermédiaire est discontinue et le transport des électrons se fait par des amas métalliques de forme presque

sphérique. Afin d'obtenir un meilleur mouillage de la couche intermédiaire, nous avons réalisé des échantillons avec l'aluminium comme métal de la couche intermédiaire. Nous avons d'abord déposé une couche épaisse d'aluminium sur la première barrière que nous avons ensuite partiellement oxydée : la partie non oxydée va constituer la couche métallique intermédiaire et la partie oxydée va constituer la seconde barrière. Cette approche nous a permis d'obtenir une couche intermédiaire moins rugueuse. Dans ce cas, on a une augmentation du rapport de rectification (allant jusqu'à 200) d'un ordre de grandeur par rapport aux jonctions avec du Cu. Les courbes courant-tension pour le cuivre et l'aluminium sont similaires ce qui laisse supposer que le processus de transport est le même pour les deux couches intermédiaires

De cette étude, nous pouvons tirer comme conclusion générale que l'origine de l'asymétrie (ou de la rectification) est le transport par l'intermédiaire d'amas ou de grains métalliques où la probabilité d'avoir des états quantifiés est forte. Une description appropriée du transport des électrons dans une structure à deux barrières nécessite d'identifier les contributions qui sont affectées par un champ électrique et de construire des modèles qui permettent de reproduire les caractéristiques courant-tension mesurées.

Le second objectif de ce travail de thèse est l'intégration de la diode ainsi obtenue avec une jonction magnétique donnant le signal magnétorésistif dans une structure RAMMID. Ceci revient à mettre la diode MIMIM (fonction blocage) en série avec une jonction tunnel magnétique (fonction mémoire RAM). Le concept de la RAM a été validé à l'aide de simulations et à l'aide de contacts macroscopiques entre une diode MIMIM et une jonction magnétique. La croissance séquentielle de la RAM, puis de la diode, est loin d'être évidente puisqu'il s'agit de préserver les propriétés de la diode alors que deux couches ont été ajoutées (au moins une couche métallique et une couche d'oxyde) pour constituer la RAM. Dans une telle structure, la tension sur l'électrode métallique de la RAM qui est en contact avec la diode est flottante et joue un rôle très important. En effet, c'est une valeur qui ne peut pas vraiment être contrôlée puisqu'elle dépend de façon non linéaire de la tension appliquée comme le rapport des résistances des deux dispositifs (la diode et la RAM). En conséquence, il faut bien adapter la résistance de la diode à celle de la RAM pour avoir deux résistances proches permettant aux deux fonctions de coexister dans un même intervalle de tension. Dans le cas contraire, où les résistances sont très différentes, une fonction va dominer et la RAMMID ne fonctionnera pas convenablement.

Plusieurs séries d'échantillons RAMMID ont été élaborées et une grande dispersion des résultats a été obtenue. Quelques jonctions ne montrent que de l'asymétrie et beaucoup d'autres que de la MRT. Ceci a été attribué à la destruction de l'une ou l'autre barrière pendant la lithographie ou par de trop grandes différences de résistances entre la RAM et la diode MID. Sur quelques rares échantillons, de la MRT et de l'asymétrie ont été mesurées.

Pour conclure, ce travail de thèse nous a permis de mettre au point une diode MID à base de multicouches métal/isolant qui donnent des rapports de rectification suffisants en vue de son intégration dans une MRAM. Toutefois l'intégration effective de la diode MID dans une unité de mémoire RAMMID reste encore à optimiser.



# **Perspectives**



---

## Perspectives

Vue la complexité du système étudié et la difficulté d'interprétation des résultats obtenus, plusieurs démarches sont envisageables pour poursuivre l'étude afin de mieux comprendre les processus physiques qui ont lieu dans de telles structures à deux barrières et aussi pour améliorer les caractéristiques courant- tension de la diode MID.

Pour les systèmes avec une *couche intermédiaire formée d'amas*, des études statistiques sont nécessaires en ce qui concerne la distribution de la taille des amas et pour mieux estimer les énergies de charge qui ont lieu dans ces amas. Celles-ci peuvent être menées en utilisant la microscopie électronique en transmission en faisant des images en "vue à plat", et non pas en section transverse, pour avoir une plus grande vue sur les amas. En ce qui concerne le spectre énergétiques de ces amas, il est nécessaire de faire des études spectroscopique des niveaux en fonction de la taille des amas. Ceci peut s'envisager par une technique d'AFM conducteur sur les amas (par dépôt d'une seule barrière et les amas) permettant de réaliser une cartographie du courant à travers les amas. Ainsi, on peut espérer mener une étude statistique des caractéristiques courant-tension et de la contribution au courant total des amas de différentes tailles. Une technique alternative pour caractériser les spectres énergétiques des amas est la microscopie à effet tunnel que l'on peut envisager de mettre en œuvre sous vide pendant le dépôt afin d'éviter l'oxydation des amas. On peut ainsi espérer accéder à des informations de plus en plus proche de la réalité d'une structure à deux barrières. A l'aide de ces techniques, on peut se faire une idée sur les spectres de chaque. Par contre que dans les jonctions microstructurées, on peut avoir une interaction supplémentaire entre les amas pour certaines épaisseurs déposées qui va encore compliquer l'interprétation du transport.

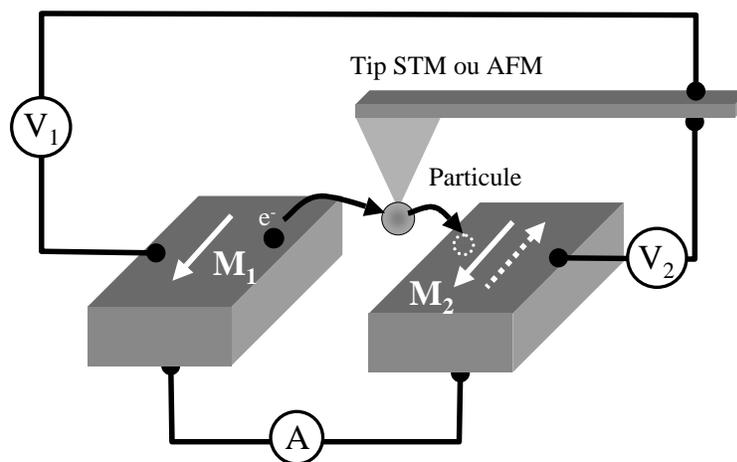
Dans les systèmes à *deux barrières avec une couche intermédiaire continue*, il faut trouver le moyen de diminuer l'épaisseur de cette couche métallique jusqu'à 2 à 3 nm tout en conservant une couche continue. Ceci est difficilement imaginable par la technique de dépôt cathodique et la croissance par épitaxie à jet moléculaire est probablement une solution où le contrôle de la croissance peut se faire couche atomique par couche atomique. Dans ce cas, les barrières doivent aussi être épitaxiées et un candidat possible est le système

Fe/MgO/Fe <sup>[Vincent\_PRL\_02]</sup>. On peut ainsi espérer réaliser un système à deux barrières qui présente une forte asymétrie en courant et, en même temps, mieux maîtriser sa résistance.

Une couche intermédiaire ferromagnétique serait idéale pour obtenir une unité de mémoire MRAM en ce qui concerne les application mais aussi au niveau de la physique fondamentale puisqu'on pourrait ainsi étudier la diffusion de spin <sup>[Stein\_SSC\_01]</sup>. Si cette couche reste nonmagnétique on peut étudier les processus d'accumulation de spin dans cette couche en fonction de l'énergie des électrons injectés.

Une fois la diode MID bien contrôlée, son intégration dans une structure RAMMID restera aussi à optimiser. Dans ce cas, la couche métallique qui fait la liaison entre les deux élément joue un rôle important en ce qui concerne la "décorrélation électronique" des deux dispositifs. On peut imaginer de la réaliser soit en y intégrant différentes interfaces, soit très épaisse pour thermaliser les électrons. A l'aide de la cartographie tunnel de cette couche métallique, on peut extraire des informations en ce qui concerne le degré de décorrélation des deux dispositifs sachant que le transport des électrons peut être balistique si cette couche est fine.

On peut imaginer de développer un système à trois terminaux en géométrie planaire (figure P.1) pour sonder le transport à travers une structure à deux barrières en utilisant des nanostructures comme "couche intermédiaire". Avec un système comme celui-ci, le contact intermédiaire va se faire avec une pointe STM ou AFM et on peut modifier la configuration des deux barrières en déplaçant la pointe entre les deux électrodes. Ce système est en fait un



**Figure P.1** Dispositif à trois terminaux pour étudier le transport à travers des systèmes à deux barrières tunnel utilisant comme "couche intermédiaire" une nano-particule.

transistor dont la tension appliquée à la pointe permet de contrôler le courant à travers la structure.

Cette technique permettrait d'approfondir les études sur le transport à travers la point ou différentes particules métalliques (magnétiques ou non) ou des molécules. Si les électrodes sont magnétiques, il sera très intéressant d'étudier l'injection de spin dans ces particules et de regarder le magnétotransport .

Il y a plusieurs défis à surmonter pour construire ce dispositif. Il faut d'abord réaliser des électrodes externes proches l'une de l'autre (moins de 20 nm d'écart) : ceci peut se faire en utilisant la lithographie électronique ou le FIB (Focused Ion Beam). Ensuite, les particules doivent être déposées sur la pointe, ce qui peut se faire par différentes techniques : à l'aide d'une méthode mécanique ou en les faisant croître par différentes technique de pulvérisation. Des électrodes externes avec différents champs coercitifs peuvent être obtenues en faisant des lignes de différentes largeurs.

La mise en œuvre de cette technique expérimentale permettrait de mener des études fondamentales sur le transport à travers des petites particules pour l'électronique du spin et l'électronique moléculaire.



**Annexe :**

**Autres types de couche  
intermédiaire pour la MIMIM**

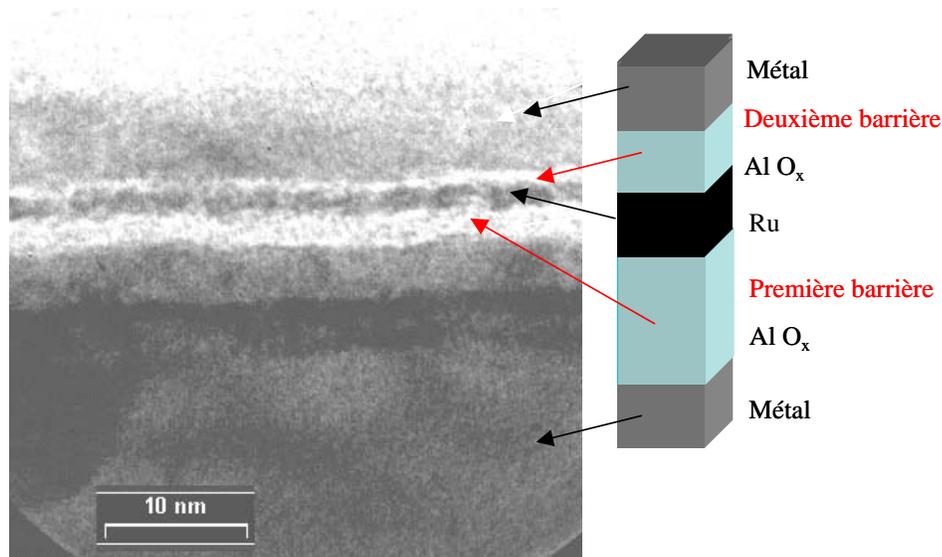


## Annexe : Autres types de couche intermédiaire pour la MIMIM

- *MIMIM avec du ruthénium comme couche intermédiaire*

Dans le chapitre 3 nous avons vu que la nature de la couche intermédiaire joue un rôle fondamental sur le transport. La croissance de cette couche va agir sur la qualité de la diode vue que celle-ci affecte également la croissance de la deuxième barrière tunnel.

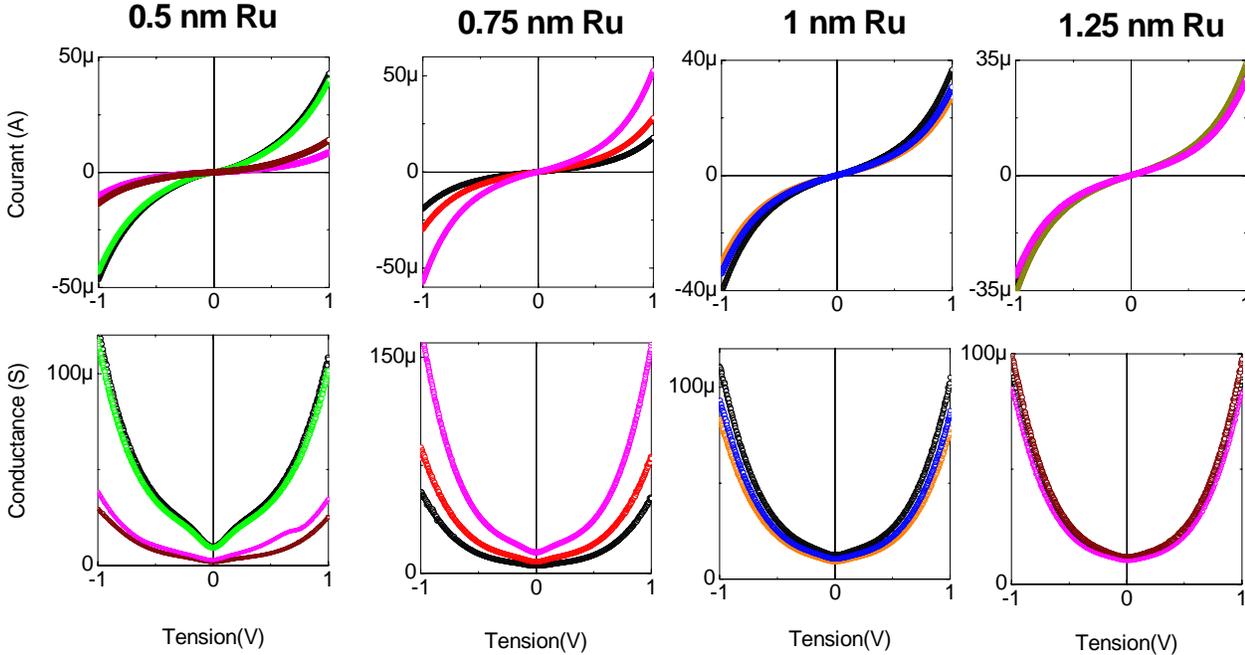
Nous avons employé le Ru pour réaliser la couche intermédiaire dans la structure MIMIM et nous avons étudié la structure et les propriétés de transport. Dans la figure A.1 est présentée l'image de MET d'une telle structure avec une épaisseur nominale de la couche de Ru déposée de 1.25 nm. On observe une très bonne continuité de la couche de Ru dans ce régime d'épaisseur déposée et on voit très bien les deux barrières tunnel et la différence d'épaisseur entre les deux barrières.



**Figure A.1** Image de MET d'une structure à deux barrières avec une couche intermédiaire de Ru.

Les caractéristiques courant – tension de cette série nous donnent des informations indirectes sur la croissance de la couche intermédiaire (figure A.2). Dans cette série, nous

n'avons pas mesuré de caractéristiques I(V) asymétriques. Pour les épaisseurs de 1 nm et 1.25 nm de Ru, on observe une régularité des mesures de courant et les courbes I(V) correspondantes sont



**Figure A.2** Caractéristiques courant-tension pour la série avec du Ru ainsi que les conductances correspondantes. La surface de ces échantillons est de  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ .

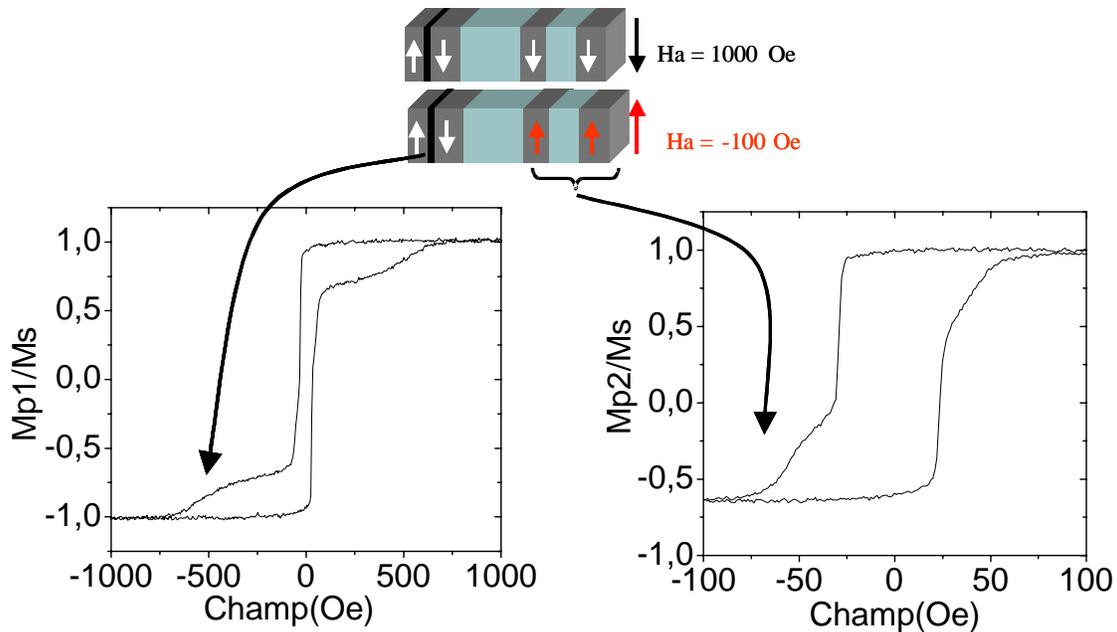
assez reproductibles. Pour les autres échantillons avec 0.5 nm et 0.75 nm de Ru, on se trouve dans une situation où la couche de Ru n'est plus continue ; de fait, les valeurs de la résistance fluctuent énormément d'un échantillon à l'autre. Ceci peut être attribué à l'inhomogénéité de la forme des amas. Un seul échantillon parmi ceux mesurés a montré une petite asymétrie : l'épaisseur de la couche intermédiaire étant de 0.5 nm, celle-ci a une morphologie granulaire.

Comme on peut le remarquer, tous les matériaux testés en tant que couche intermédiaire n'induisent pas des asymétries très importantes. Il est fort probable que ce soit le mode de croissance de la couche intermédiaire sur la première barrière tunnel qui favorise l'asymétrie. Vu que la forme et la distribution de la taille des amas sont imposées par le mode de croissance du métal sur l'oxyde, la réalisation contrôlée de ces couches constituées d'amas métalliques est très délicate.

- *MIMIM avec du cobalt comme couche intermédiaire*

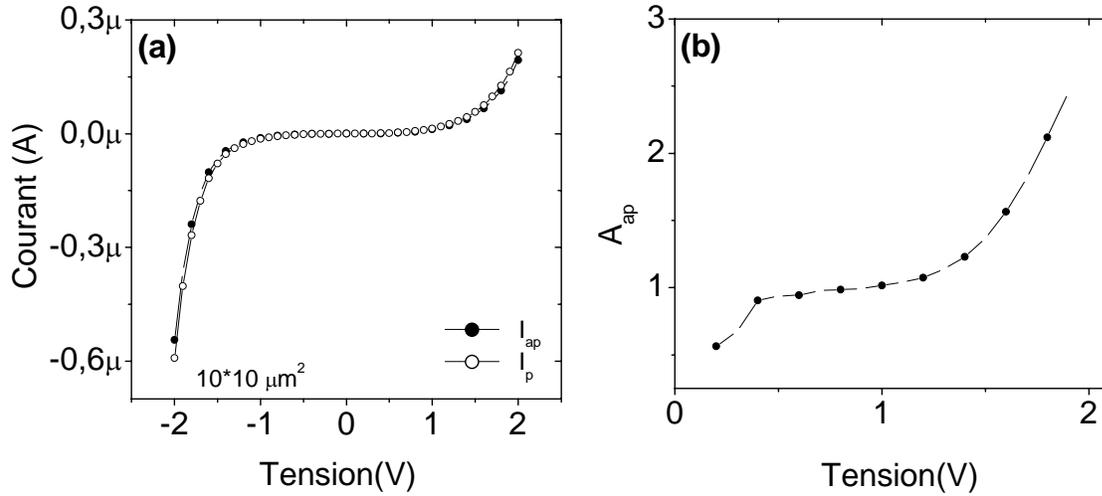
Nous avons aussi élaboré une série d'échantillons avec une couche intermédiaire de Co pour essayer d'intégrer à la fois le magnétisme et l'asymétrie dans une même structure à deux barrières. Le cobalt a une croissance en amas dans la gamme des épaisseurs nominales de 0.5 nm à 1.5 nm. Le magnétisme dans une telle structure est difficile à contrôler compte tenu de la différence de coercitivité qui existe entre chaque amas.

L'électrode du bas est constituée d'un système AAF CoFe(1.5nm)/Ru(0.8nm)/CoFe(3nm) qui représente la couche "dure" de la structure. Le magnétisme de cette structure MIMIM à base de Co est représenté dans la figure A.3 : les champs coercitifs de la couche intermédiaire et de l'électrode supérieure sont presque identiques.



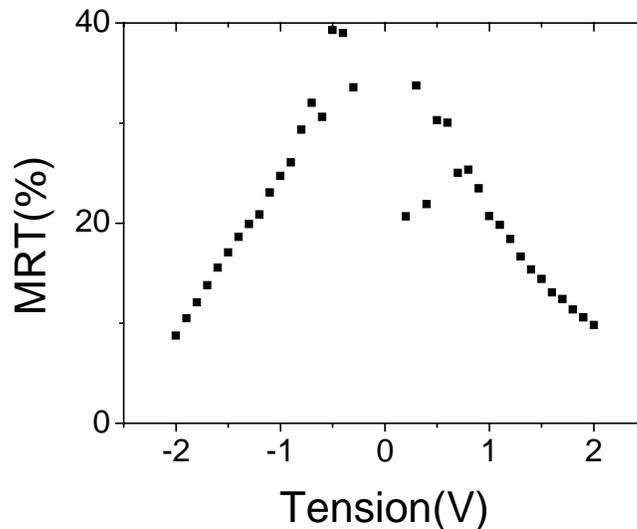
**Figure A.3** Cycles d'hystérésis pour une structure à deux barrières avec 0.7 nm de Co comme couche intermédiaire.

Les jonctions mesurées présentent de l'asymétrie comme on peut le constater dans la figure A.4. (b). L'asymétrie augmente avec la tension appliquée et peut être interprétée en termes d'électrons "chauds" qui passent au dessus de la deuxième barrière.



**Figure A.4** (a) Caractéristique courant-tension pour une structure à deux barrières avec 0.7 nm de Co comme couche intermédiaire et (b) asymétrie correspondante en configuration antiparallèle.

En effet, l'asymétrie commence à augmenter fortement à partir de 1.5 V ce qui en terme d'énergie correspond à la hauteur de la deuxième barrière. Ce système montre de la magnétorésistance tunnel alors que les autres dispositifs étudiés à base de Cu, d'Al, et de Ru n'ont montré aucune sensibilité du courant transmis à un champ magnétique extérieur. A partir des mesures magnétiques, nous avons établi les deux états : parallèle et antiparallèle en appliquant respectivement un champ magnétique de +10000 Oe et -100 Oe.



**Figure A.5** Magnétorésistance en fonction de la tension pour une structure à deux barrières avec 0.7 nm de Co comme couche intermédiaire.

La magnétorésistance en fonction de la tension peut alors se déduire des données de la figure A.4 (a) et nous obtenons la courbe de la figure A.5. Le maximum de MRT est de l'ordre de 30% ce qui est comparable aux valeurs observées pour des jonctions simples. Si on regarde attentivement la courbe de la magnétorésistance, on observe des fluctuations de la MRT autour des petites tensions. Ces fluctuations sont dûes au fait que la résistance de la structure est très grande. La MRT ne décroît pas très vite avec la tension appliquée et n'est divisée de moitié qu'à une tension de 1V. Dans le cas d'une barrière unique, la magnétorésistance décroît avec la tension beaucoup plus rapidement (typiquement à 1V on devrait avoir 5 % MRT <sup>[Tiusan\_thèse]</sup>) ce qui peut être une preuve que le système est bien composé de deux barrières tunnel <sup>[Montaigne\_APL\_98]</sup>.

En utilisant une couche intermédiaire de Co nous avons mesuré de l'asymétrie et de la magnétorésistance dans la structure mais l'asymétrie n'est pas suffisamment importante (jusqu'à 2.5).



---

## Références

- [Averin\_JLTP\_86] D. V. Averin, K. K. Likharev, *J. Low Temp. Phys* **62**, 345 (1986).
- [Bardou\_EPL\_97] F. Bardou, *Europhys. Lett.* **39** (3), 239 (1997).
- [Binnig\_PRL\_86] G. Binnig, C. F. Quate and G. Gerber, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 930 (1986).
- [Blügel\_FN] Stefan Blügel, Martina Luysberg, Knut Urban, Rainer Waser, *Fundamentals of Nanoelectronics*, Forschungszentrum Jülich, (2003).
- [Bonet\_PRB\_02] Edgar Bonet, Mandar M. Deshmukh, D. C. Ralph, *Phys. Rev. B* **65**, 045317, (2002).
- [Brinkmann\_JAP\_70] Brinkman, Dynes, Rowell, *J. Appl. Phys.* **41(5)**, 1915 (1970).
- [Choudhury\_HMMM] *Handbook of Microlithography, Micromachining, & Microfabrication. Volume 1: Microlithography*, P.Rai. Choudhury, publié par SPIE--The International Society for Optical Engineering (March 1997).
- [Chshiev\_EPL\_02] M. Chshiev, D. Stoeffler, A. Vedyayev and K. Ounadjela, *Europhys. Lett.* **58**, 257–263 (2002).
- [Colis\_APL\_03] S. Colis, G. Gieres, L. Bär, and J. Wecker, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 948, (2003).
- [Da Costa\_EPJ\_99] V. Da Costa, Y. Henry, F. Bardou, M. Romeo, K. Ounadjela, *Eur. Phys. J. B* **13**, 297 (1999).
- [Delft\_PR\_01] Jan Von Delft, D. C. Ralph, *Physics Reports* **345**, 61-173 (2001).

---

[**Dimopoulos\_APL\_2001**] T. Dimopoulos, V. Da Costa, C. Tiusan, K. Ounadjela, H.A.M. van den Berg, Appl. Phys. Lett. **79**, 3110 (2001).

[**Dimopoulos\_thèse**] T. Dimopoulos, thèse de doctorat, Université Louis-Pasteur, (2002).

[**Duke\_TS**] C. B. Duke, Tunneling in Solids, Academic Press, New York (1969).

[**Esaki\_APL\_73**] R. Tsu, L. Esaki, Appl. Phys. Lett. **22**, 562 (1973).

[**Ferry\_TN**] David K.Ferry, Stephen M.Goodnick, *Transport in Nanostructures*, Cambridge University Press (1997).

[**Fettar\_PRB\_02**] F. Fettar, S.-F. Lee, F. Petroff, A. Vaures, P. Holody, L. F. Schelp, A. Fert, Phys. Rev. B **65**, 174415 (2002).

[**Flanders\_JAP\_88**] P.J. Flanders, J. Appl. Phys. **63**, 3940 (1988).

[**Greiner\_JAP\_71**] J. H. Greiner, J. Appl. Phys. **42**, 5151 (1971).

[**Halperin\_RMP\_86**] W. P. Halperin, Rev. Mod. Phys. **58**, 533,(1986).

[**Harrison\_PR\_61**] W. A. Harrison, Phys. Rev. **123**, 85 (1961).

[**Hartman\_JAP\_64**] Thomas E. Hartman, J. Appl. Phys. **35**, 3283 (1964).

[**Hehn\_PRB\_02**] M. Hehn, F. Montaigne, A. Schuhl, Phys. Rev. B. **66**, 144411 (2002).

[**Heiblum\_SSE\_81**] Mordehai Heiblum, Solid-State Electronics **24**, 343-366 (1981).

[**Himpsel\_AP\_98**] F. J. Himpsel, J. E. Ortega, G. J. Mankey, R. F. Willis, Advances in Physics **47**, 451- 597 (1998).

---

[**Hirota\_GMRD**] E. Hirota, H. Sakakima, K. Inomata, *Giant Magneto-resistance Devices*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg (2002).

[**Huai\_JAP\_99**] Y. Huai, J. Zhang, G. W. Anderson, P. Rana, S. Funada, C.-Y. Hung, M. Zhao, and S. Tran, *J. Appl. Phys.* **85**(8), 5528-5530 (1999).

[**Jullière\_PL\_75**] M. Jullière, *Phys. Lett.*, **54**, 225 (1975).

[**Kado\_APL\_02**] Kado, *Appl Phys Lett.* **80**, 3382 (2002).

[**Lacour\_thèse**] D. Lacour, thèse de doctorat, Université Henri Poincaré, Nancy, (2002)

[**Kuiper\_JAP\_01**] A. Kuiper, M. Gillies, V. Kottler, G. Hooft, J. van Berkum, C. van Marel, Y. Tamminga, J. Snijders, *J. Appl. Phys.* **89**(3), 1965-1972 (2001).

[**MacColl\_PR\_62**] L. A. MacColl, *Phys. Rev.* **56**, 699 (1939).

[**Mathieu\_PSCE**] Henry Mathieu, *Physique des semiconducteurs et des composants électroniques*, Dunod, Paris (2001).

[**Miyazaki\_JMMM\_95**] T. Miyazaki, N. Tezuka, *J. Magn. Magn. Mater.* **139**, L231 (1995).

[**Montaigne\_APL\_98**] F. Montaigne, J. Nassar, A. Vaurès, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, A. Schuhl, A. Fert, *Appl Phys. Lett.* **73**, 2829 (1998).

[**Moodera\_PRL\_99**] J. S. Moodera, J. Nowak, L. R. Kinder, P.M Tedrow, R. J. M. van de Veerdonk, B. A. Smith, M. van Kampe, H. J. M. Swagten, V. J. M. de Jonge, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 3029 (1999).

[**Moodera\_PRL\_95**] J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong, and R. Meservey, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3273 (1995).

[**MRAM\_Motorola**] MRAM Technology Motorola,

[http://www.freescale.com/files/technology\\_manufacturing/doc/MRAM\\_FACT\\_SHEET.pdf](http://www.freescale.com/files/technology_manufacturing/doc/MRAM_FACT_SHEET.pdf)

[**Néel\_AcadSci\_62**] L. Néel, C. R. Acad. Sci. **255**, 1676 (1962).

[**Oepts\_JAP\_01**], W.Oepts, M. F. Gillies, R. Coehoorn, R. J. M van de Veerdonk, W. J. M. de Jonge, J. Appl. Phys. **89**, 8038 (2001)

[**Parkin\_APL\_99**] S. S. P. Parkin, K. P. Roche, M. G. Samant, P. M. Rice, R. B. Beyers, R. E. Scheuerlein, E. J. O'Sullivan, S. L. Brown, J. Bucchigano, D. W. Abraham, Yu Lu, M. Rooks, P. L. Trouilloud, R. A. Wanner, W. J. Gallagher, Appl Phys Lett. **74**, 3893 (1999).

[**Peterson\_JPC\_01**] I. R. Peterson, D. Vuillaume, R. M. Metzger, J. Phys. Chem. A **105**, 4702-4707 (2001).

[**Simmons\_JAP\_63**] J.G. Simmons, J. Appl. Phys. **34(6)** 1793 (1963).

[**Slonczewski\_PRB\_89**] J. C. Slonczewski, Phys. Rev. B **39**, 6995 (1989).

[**Smits\_Thèse**] Albertus Adrianus Smits, thèse de doctorat, Technische Universiteit Eindhoven, (2001).

[**Soeva\_JAP\_93**] Susumu Soeya, Shigeru Tadokoro, Takao Imagawa, Moriaki Fuyama, Shinji Narishige, J. Appl. Phys. **74**, 6297 (1993).

[**Sousa\_APL\_99**] R. C. Sousa, P. P. Freitas, V. Chu, J. P. Conde, Appl. Phys. Lett. **74**, 3893 (1999).

[**Sousa\_MRSSP\_98**] C.Sousa, P. P. Freitas et al, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. **517**, 97 (1998).

- 
- [**Stein\_SSC\_01**] S. Stein, R. Schmitz, H. Kohlstedt, Solid State Communication **117**, 599 – 603, (2001).
- [**Strahberger\_PB\_99**] C. Strahberger, P. Vogl, Phys. B, **272**, 160-162 (1999).
- [**Sun\_JAP\_99**] Sun J J and Freitas, J. Appl. Phys. **85**, 5264 (1999).
- [**Sze\_JAP\_66**] S. M. Sze, C. R. Crowell, G.P.Carey and E. E. LaBate, J. Appl.Phys. **37**, 2690 (1966).
- [**Tanue\_JAP\_00**] S. Tanoue, A. Yamasaki, J. Appl. Phys. **88**, 4674, (2000).
- [**Tehrani\_JAP\_99**] S. Tehrani, E. Chen, M. Durlam, M. DeHerrera, J. M. Slaughter, J. Shi, G. Kerszykowski, J. Appl. Phys. **85**, 5822 (1999).
- [**Tedrow\_PRL\_71**] P. M. Tedrow and R. Meservey, Phys. Rev. Lett. **26**, 192 (1971).
- [**Tinkham\_JLTP\_00**] M. Tinkham, D. Davidovic, D.C. Ralph, C. T. Black Journal of Low Temperature Physics **118**, 271 (2000).
- [**Tiusan\_APL\_2000**] C. Tiusan, M. Chshiev, A. Iovan, V. da Costa, D. Stoeffler, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, Appl. Phys. Lett. **79**, 4231 (2000).
- [**Tiusan\_PRB\_00**] C. Tiusan, T. Dimopoulos, K. Ounadjela, M. Hehn, H. A. M. van den Berg, V. da Costa, and Y. Henry, Phys. Rev. B **61**, 580 (2000).
- [**Tiusan\_thèse**] C. Tiusan, thèse de doctorat, Université Louis-Pasteur, (2000).
- [**Tsunoda\_APL\_02**] Masakiyo Tsunoda, Kazuhiro Nishikawa, Satoshi Ogata, Migaku Takahashi, Appl. Phys. Lett. **80**, 3135 (2002).

---

[**Tsymbal\_JAP\_99**] E. Tsymbal and D. G. Pettifor, J. Appl. Phys. **85**, 5801 (1999).

[**Tsymbal\_PRB\_01**] E. Y. Tsymbal and D. G. Pettifor, Phys. Rev. B **64**, 212401 (2001).

[**Van den Berg\_IEEE\_96**] H. A. M. Van den Berg, W. Clemens, G. Gieres, G. Rupp, W. Schelter, M. Vieth, IEEE Trans. Magn. **32**, 4624 (1996).

[**Van den Berg\_JMMM\_97**] H. A. M. Van den Berg, W. Clemens, G. Gieres, G. Rupp, M. Vieth, J. Wecker, S. Zoll, J. Magn. Magn. Mat. **165**, 524-528 (1997).

[**Velthuis\_JAP\_2000**] S. G. E. te Velthuis, A. Berger, G. P. Felcher, B. K. Hill, E. Dan Dahlber J. Appl. Phys. **87**, 5046 (2000).

[**Vincent\_PRL\_02**] Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne and A. Schuhl, Phys. Rev. Lett. **89**, 107206 (2002).

[**Vossen\_TFP**] J. L. Vossen and W. Kern, Thin Film Processes II, Academic Press (1991).

[**Vuillaume\_Lang\_99**] Dominique Vuillaume, Langmuir **15**, 4011-4017 (1999).

[**WKB\_1926**] G. Wentzel, Zeits. f. Phys. **38**, 518 (1926); H. A. Kramers, Zeits. f. Phys. **39**, 828 (1926) ; L. Brillouin, Comptes Rendus **183**, 24 (1926)

[**Wulfhekel\_APL\_01**] W. Wulfhekel, M. Klaua, D. Ullmann, F. Zavaliche, J. Kirschner, R. Urban, T. Monchesky, B. Heinrich, Appl. Phys. Lett. **78**, 509 (2001).

[**Yuasa\_Sci\_02**] Yuasa\_Sci\_ S. Yuasa, T. Nagahama, Y. Suzuki, Science **297**, 234(2002).

[**Zhang\_JAP\_00**] Shufeng Zhang, J. Appl. Phys. **87**, 5281 (2000).

[Zhang\_PRB\_97] Xiangdong Zhang, Bo-Zang Li, Gang Sun, Fu-Cho Pu, Phys. Rev. B **56**, 5484 (1997).



## **ELABORATION ET CARACTERISATION DE JONCTIONS TUNNEL A PLUSIEURS BARRIERES POUR L'INTEGRATION DANS UNE NOUVELLE GENERATION DE MEMOIRES MAGNETIQUES.**

### **Résumé :**

Après la découverte d'une grande magnétorésistance tunnel (MRT) dans les jonctions tunnel magnétiques (JTM) à température ambiante, beaucoup d'applications potentielles basées sur le transport polarisé ont émergé, en particulier pour l'utilisation des jonctions tunnel au sein de mémoires magnétiques à accès aléatoire (MRAM). Cependant, les MRAM actuellement proposées, nécessitent d'ajouter un commutateur semi-conducteur (un transistor CMOS ou une diode PN) en série avec la cellule mémoire (JTM). En effet, dans une matrice de JTM, il faut supprimer (ou bloquer) les courants parasites provenant des autres éléments lors de la lecture de l'état magnétique d'un élément donné. Cependant, ce procédé est pénalisé par la difficulté technologique de combiner une partie semi-conductrice, où la conduction se fait dans une géométrie planaire, et une partie métal/oxyde. Un des moyens de contourner cette difficulté d'intégration est d'introduire une diode à base de multicouches métal/isolant (Metal Insulator Diode MID). Dans ce cas, on peut fabriquer des diodes avec la même taille latérale que les jonctions magnétiques conduisant à une augmentation de la densité de stockage de la MRAM. Dans ce travail de thèse, nous avons élaboré de telles structures et nous avons validé le fonctionnement d'une diode Métal/Isolant avec un rapport de rectification élevé. La deuxième partie de ce travail est consacrée à l'intégration en série de la diode MID ainsi obtenue avec une jonction magnétique donnant le signal magnétorésistif (fonction de mémoire) dans une structure MID-RAM. Le fonctionnement de la MID-RAM a été validé à l'aide de simulations et de contacts macroscopiques entre une diode MID et une jonction magnétique. Une structure intégrée a été réalisée montrant à la fois un signal MRT et une rectification du courant. Cependant, nous montrons que cette intégration se heurte à des difficultés liées aux caractéristiques intrinsèques du transport dans ces structures.

## **DEVELOPMENT AND CHARACTERISATION OF TUNNEL JUNCTIONS WITH SEVERAL BARRIERS FOR INTEGRATION IN A NEW GENERATION OF MAGNETIC MEMOIRES.**

### **Abstract:**

After discovery of a great tunnel magnetoresistance (TMR) in magnetic tunnel junctions (MTJ) at room temperature, several potential applications based on polarized transport have emerged. Large TMR values at room temperature are very promising, in particular, for the use of the tunnel junctions within magnetic random access memory (MRAM) devices. However, the MRAM currently proposed, which incorporate magnetic junctions tunnel, require to add a semiconductor switch (a CMOS transistor or a PN diode) in series with the cell memory (MTJ). Indeed, in a matrix of MTJ, it is necessary to remove (or block) the stray currents coming from the other elements during the reading of the magnetic state of a given element. However, this process is penalized by the technological difficulty to combine a semiconductor part, where conduction is done in a planar geometry, and a metal/oxide part. One of the means of circumventing this difficulty of integration is to introduce a diode based on metal/insulator multilayers. In this case, diodes can be manufactured with the same size as the magnetic junctions that will lead to an increase of the storage density in the MRAM. In this thesis, we have elaborated such structures and have validated the operating mode of a Metal-Insulator Diode (MID) with a high rectification ratio. The second part of this work is devoted to the integration of the diode thus obtained with a magnetic junction giving the magnetoresistive signal in a MID-RAM structure. This corresponds to contacting the MID diode (blocking function) in series with a magnetic tunnel junction (memory function RAM). The operating mode of the MID-RAM has been validated using simulations and macroscopic contacts between a MID and a magnetic junction. An integrated structure has been realised exhibiting simultaneously TMR signal and rectified current. However, we show that this integration comes up against difficulties related to intrinsic properties of the transport in such structures.

**Mots-clefs :** Structure à deux barrières tunnel, MRAM, magnétorésistance tunnel, diode métal-isolant, rectification du courant.

### **Discipline :**

Physique de la matière condensée.

### **Laboratoire :**

Groupe d'Etude des Matériaux Métalliques  
Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg (UMR 7504 du CNRS)  
23, rue du Loess, F-67037 Strasbourg