



**HAL**  
open science

# Structure et propriétés magnétiques de couches minces d'alliages métalliques

Alain Marty

► **To cite this version:**

Alain Marty. Structure et propriétés magnétiques de couches minces d'alliages métalliques. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. UNIVERSITE GRENOBLE I – JOSEPH FOURIER, 2005. tel-01662159

**HAL Id: tel-01662159**

**<https://hal.science/tel-01662159v1>**

Submitted on 12 Dec 2017

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

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

UNIVERSITE GRENOBLE I – JOSEPH FOURIER

Habilitation à Diriger les Recherches

Discipline : Physique

Soutenue par :

**Alain Marty**

**Le 13/ 07/ 2005 à Grenoble**

Structure et propriétés magnétiques  
de couches minces d'alliages métalliques

Jury :

Bernard Carrière	Rapporteur
Marie-José Casanove	Rapporteuse
Jean Louis Porteseil	Rapporteur

Françoise Bley	Examinatrice
Noel Magnéa	Examineur
Daniel Malterre	Examineur

---

Laboratoire Nanostructures et Magnétisme  
Service de Physique des Matériaux et Microstructures  
Département de Recherche Fondamentale sur la Matière Condensée  
Commissariat à l'Energie Atomique, Grenoble



## Table des matières

<b>INTRODUCTION</b> .....	<b>1</b>
<b>1 MISE EN ORDRE D'ALLIAGES EN COUCHES MINCES</b> .....	<b>3</b>
1.1 CROISSANCES DE FePd SUR Pd(001) .....	3
<i>Les codépôts</i> .....	3
<i>Dépôt couches par couches</i> .....	4
<i>Ordre à courte distance</i> .....	5
<i>Les défauts</i> .....	6
1.2 MISE EN ORDRE ET MORPHOLOGIE DE SURFACE.....	6
<i>La surface en cours de croissance</i> .....	7
<i>Mise en ordre chimique en surface</i> .....	7
1.3 TRAITEMENT THERMIQUE ET IRRADIATION .....	9
<i>Recuit</i> .....	9
<i>Irradiation</i> .....	9
<b>2 MODES DE RELAXATION DES CONTRAINTES EPITAXIALES</b> .....	<b>11</b>
2.1 INTRODUCTION SUR LA RELAXATION DES CONTRAINTES PAR LES DISLOCATIONS .....	11
2.2 RELAXATION PAR LA FORMATION DE MICROMACLES .....	13
2.3 SELECTION DU TYPE DE DISLOCATIONS SELON L'ETAT D'ORDRE CHIMIQUE .....	16
2.4 RELAXATION DE MgO SUR Fe.....	17
<b>3 MAGNETISME DES COUCHES MINCES D'ALLIAGES</b> .....	<b>19</b>
3.1 CONFIGURATIONS MAGNETIQUES DANS LES COUCHES MINCES .....	19
<i>Anisotropie faible, configuration en rubans faibles</i> .....	20
<i>Anisotropie forte, configuration en domaines</i> .....	21
<i>Configurations magnétiques hors d'équilibre, hystérésis</i> .....	22
3.2 RESISTANCE ELECTRIQUE DE PAROIS MAGNETIQUES .....	24
3.3 PROPAGATION DE PAROIS DANS UN RESEAU DE MICROMACLES .....	28
3.4 RESONANCE FERROMAGNETIQUE DANS LES COUCHES MINCES FePd.....	32
<i>Mesures et premières interprétations</i> .....	32
<i>Modélisation numérique</i> .....	33
3.5 DIFFRACTION MAGNETIQUE DE DOMAINES .....	34
<i>Diffusion de neutrons</i> : .....	35
<i>Diffraction magnétique de rayons X mous</i> .....	35
<i>Diffusion magnétique cohérente</i> .....	37
<b>CONCLUSION</b> .....	<b>39</b>
<b>PERSPECTIVES</b> .....	<b>41</b>
DIFFRACTION MAGNETIQUE DE DOMAINES .....	41
PROPAGATION DE PAROIS MAGNETIQUES .....	43
MICROSCOPIE ELECTRONIQUE D'OBJETS MAGNETIQUES .....	44
MODELISATION ET SIMULATION NUMERIQUE.....	46
ELABORATION .....	47
CONVERGENCE DES PERSPECTIVES.....	47
<b>REFERENCES</b> .....	<b>48</b>



## Introduction

L'activité de recherche exposée dans ce mémoire résulte d'un travail d'équipe auquel les doctorants successifs que j'ai eu l'occasion de co-encadrer avec mes collègues ont beaucoup apporté. J'ai rassemblé ici une partie des travaux portant sur les couches minces à anisotropie perpendiculaire d'alliages ferromagnétiques métalliques. Les études présentées, montrent comment le contrôle de l'élaboration des couches et leur caractérisation structurale poussée permet la compréhension et la maîtrise des propriétés magnétiques. Avec ces couches minces nous avons pu proposer des systèmes magnétiques modèles pour tester de nouvelles propriétés et de nouvelles méthodes de mesure.

Outre l'intérêt pour les applications, notamment l'enregistrement magnétique [Nak99], qui justifie l'engouement apparu dans la communauté du magnétisme, les couches minces à anisotropie magnétique perpendiculaire sont d'excellents objets modèles pour étudier la structuration d'un système présentant des tendances antagonistes à différentes échelles. En effet, dans les couches minces ferromagnétiques, l'effet de forme lié au champ démagnétisant tend à coucher l'aimantation dans le plan de la couche. D'autre part, les matériaux peuvent présenter une tendance (anisotropie) à aligner l'aimantation dans la direction perpendiculaire à la couche. Cet antagonisme conduit à une structure en domaines d'aimantation antiparallèle que l'échange ferromagnétique organise vers les grandes échelles de longueur par rapport à sa propre portée.

Les sources de l'anisotropie magnétique sont multiples : anisotropie d'interface, anisotropie magnéto-élastique, anisotropie magnétocristalline. Pour avoir une influence sur la structure de l'aimantation, elles doivent être d'intensité suffisante comme nous le verrons sur un diagramme de phase des états magnétiques, §3. L'anisotropie d'interface ou de surface ne peut se manifester que pour une épaisseur limitée car l'énergie de champ démagnétisant croît proportionnellement à l'épaisseur et finit par dominer. L'anisotropie magnéto-élastique, malgré son caractère volumique se comporte comme un effet d'interface, car son intensité moyenne décroît avec l'épaisseur à cause de la relaxation plastique [Cha88]. Ces deux sources d'anisotropie ont conduit naturellement de nombreuses recherches vers la réalisation de multicouches [Joh95]. Par exemple, les multicouches Co/Pt [Gar88] sont largement utilisées par de nombreuses équipes comme prototype de couches à aimantation perpendiculaire mais aussi pour les applications en raison de leur facilité de mise en oeuvre. Néanmoins les multicouches présentent l'inconvénient de constituer des systèmes hétérogènes et donc plus complexes. L'aimantation moyenne est souvent limitée par les ratios d'épaisseur entre les couches magnétiques et non-magnétiques. De plus les qualités cristallines et d'interfaces peuvent se dégrader avec le nombre de répétitions rendant encore plus délicates les études systématiques en fonction de l'épaisseur. L'anisotropie magnétocristalline ne présente pas ces inconvénients, elle nécessite cependant le contrôle de la structure et de l'orientation cristalline des couches considérées et par conséquent elle requiert des techniques d'élaboration appropriées. Pour les métaux de transition 3d, seul le cobalt présente avec sa structure hexagonale une anisotropie uniaxiale le long de l'axe,  $c$ . Malheureusement cette anisotropie est insuffisante pour vaincre le champ démagnétisant à toute épaisseur. On doit donc se tourner vers les alliages présentant une structure anisotrope, par exemple la structure tétragonale,  $L1_0$  qui sera décrite plus loin. Cette structure conduit à une anisotropie magnétocristalline qui peut dépasser largement l'anisotropie magnétostatique. C'est le cas, par exemple, des deux alliages que nous avons utilisés : FePt et FePd. Le défi consiste alors à choisir le bon substrat et à orienter la croissance cristalline dans la bonne direction lors de l'élaboration ou à réorienter par des traitements particuliers ensuite. C'est le parti pris que nous avons adopté pour une part importante de nos activités de recherche. Pour réaliser

## Introduction

l'élaboration, nous disposons d'un bâti d'épitaxie par jets moléculaires (en réalité, jets atomiques), qui permet d'évaporer les métaux dans un environnement ultravide ( $10^{-8}$  Pa). Il est équipé d'évaporateurs à bombardement électronique, d'un outil de diffraction d'électrons en incidence rasante (RHEED) et d'un spectromètre Auger. Dans des chambres annexes, un microscope de champ proche, un diffractomètre d'électrons lents et un outil d'irradiation permettent analyse et traitement des couches élaborées. Le contrôle in-situ puis ex-situ (diffraction de rayons X, Microscopie électronique) nous a permis d'établir les conditions de dépôt pour obtenir des couches d'alliages présentant la structure recherchée et par conséquent l'anisotropie magnétocristalline perpendiculaire. Les mesures magnétiques sont la deuxième composante de ces recherches. Elles sont faites pour partie dans le laboratoire : magnétométrie, microscopie de force magnétique et pour partie en collaboration ou auprès des grands instruments : mesure de transport, résonance ferromagnétique, diffraction magnétique de domaines aux neutrons ou aux rayons X.

L'étude de la mise en ordre des alliages est l'objet du premier chapitre. Les couches étant déposées sur un substrat ou sur une autre couche mince, il y a inévitablement des contraintes d'épitaxie qui sont relaxées lors de la croissance par divers mécanismes impliquant des dislocations. Nous avons rencontré à plusieurs reprises lors de nos études d'épitaxie divers mécanismes de relaxation par les dislocations, c'est la raison pour laquelle j'ai consacré le deuxième chapitre à ces objets incontournables de la croissance épitaxiale. A cette occasion je me suis écarté du seul sujet des alliages métalliques magnétiques car il m'a semblé intéressant de présenter le mécanisme de relaxation lors de la croissance MgO/Fe qui complète les mécanismes de relaxation observés dans les alliages. Dans le troisième chapitre, est exposée une part importante des résultats concernant les propriétés et les mesures magnétiques. J'y expose l'observation et la modélisation de la structure magnétique des couches minces. Puis à partir de la compréhension de cette structure, en particulier la structure en domaines périodiques alignés, sont présentés différents phénomènes observés sur ces couches : résistance électrique et propagation de parois de domaines, réponse dynamique radiofréquence et diffraction magnétique de domaines.

## 1 Mise en ordre d'alliages en couches minces

Une question importante apparaît lors de l'élaboration épitaxiale des couches minces d'alliages. Comment sont modifiées la structure et la microstructure par rapport à ce que l'on observe dans les alliages massifs. Par exemple, des structures qui n'apparaissent pas dans les alliages massifs peuvent être stabilisées par les contraintes d'épitaxie comme nous l'avons montré avec la croissance AuNi [Dyn97, Aba98]. Avec les alliages FePd et FePt nous avons cherché au contraire à obtenir l'épitaxie d'une structure existante dans l'alliage massif, la structure quadratique  $L1_0$  (Fig. 1.1). Dans les alliages magnétiques, cette structure conduit à une anisotropie magnétique uniaxiale assez forte et donc intéressante tant du point de vue de la recherche de base que pour les applications. Construite sur le réseau cubique à faces centrées légèrement déformé, la structure  $L1_0$  peut être vue comme une multicouche naturelle ultime faite d'un empilement alterné de plans atomiques des deux espèces. Cette structure que l'on trouve dans le diagramme de phase à basse température et autour de la composition équiatomique, est dite ordonnée chimiquement. A haute température on trouve la structure désordonnée chimiquement, A1 pour laquelle les espèces chimiques sont réparties au hasard sur le réseau cubique à faces centrées. En réalité, les mesures (diffusion diffuse, EXAFS, etc.) et les calculs thermodynamiques nous enseignent qu'il demeure un ordre chimique local dans les alliages à l'équilibre thermodynamique.

Lors du dépôt de couches minces de ces alliages, les questions naturellement posées sont alors multiples. i) Quel substrat choisir pour obtenir l'épitaxie ? ii) Quelle sera l'orientation de l'axe quadratique ? Cette question est de première importance puisque les propriétés magnétiques en dépendent. iii) Quel sera l'état d'ordre chimique et peut on contrôler ce dernier ? Dans ce chapitre, je présente nos résultats obtenus par plusieurs méthodes de croissance de FePd/Pd(001). Puis je tente de montrer que la mise en ordre se produit en surface lors de la croissance. Enfin, je décris succinctement comment des post-traitements permettent de modifier l'état d'ordre chimique des couches.

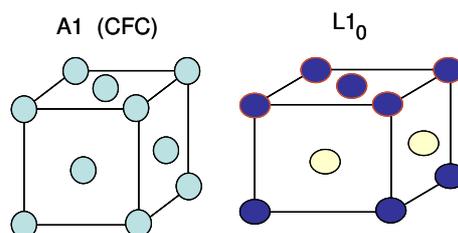


Fig. 1-1 : Structures, A1 (cubique à faces centrées, chimiquement désordonnée) et  $L1_0$  (quadratique, ordonnée).

### 1.1 Croissances de FePd sur Pd(001)

Trois approches de dépôt peuvent être utilisées pour obtenir la structure  $L1_0$ . Dans la technique dite de codépôt, les deux éléments sont évaporés en même temps ; on compte alors sur la tendance thermodynamique vers l'ordre de l'alliage. Avec la technique couche par couche (CC) on tente de forcer la structure en déposant alternativement les éléments couche atomique après couche atomique. Enfin un traitement thermique ultérieur peut être envisagé.

#### Les codépôts

A température ambiante, bien que la phase ordonnée soit thermodynamiquement stable, nous n'avons observé l'épitaxie que de la structure désordonnée, A1. Le dépôt est un



processus hors d'équilibre. A température ambiante, les mobilités en surface ou en volume ne sont pas suffisantes pour permettre le retour vers l'équilibre. Cependant, la température de transition ordre-désordre étant suffisamment élevée (790°C) nous avons pu obtenir la mise en ordre en augmentant la température du substrat tout en restant en dessous de cette température limite. Les images de microscopie électronique en transmission (Fig. 1.1-1) illustrent les résultats obtenus. Le codépôt à température ambiante donne une structure bien cristallisée mais sans ordre chimique apparent, tandis que le codépôt à 350°C montre un contraste des plans atomiques. Plus significatifs, les clichés de diffraction de la figure b), avec la présence de taches de type {110} et l'absence de taches de type {100} permettent de conclure à la présence de la structure  $L1_0$  avec l'axe quadratique, [001] perpendiculaire à la couche. Nous appellerons le variant correspondant variant Z. Nous avons évalué quantitativement l'état d'ordre, par diffraction de rayons X (Fig. 1.1-2) à partir des rapports des intensités intégrées des raies de surstructure (001) et (003) et fondamentales (002) et (004). Pour le codépôt à 350°C le paramètre d'ordre obtenu est de l'ordre de 0.8, proche du maximum, 1. Le domaine de température, 350°C-500°C conduit pour le codépôt à ce paramètre d'ordre optimum. A température plus basse, le paramètre d'ordre décroît rapidement car les mécanismes de diffusion et d'échange sont insuffisants pour que l'équilibre thermodynamique soit atteint lors du codépôt [Gil01]. A plus haute température, c'est le paramètre d'ordre à l'équilibre qui décroît constituant ainsi une valeur plafond pour celui du codépôt. Le résultat essentiel de cette étude est l'obtention du variant ordonné ayant l'axe de facile aimantation perpendiculaire à la couche mince (variant Z) et la possibilité de contrôler l'état d'ordre (et donc l'anisotropie) par la température de dépôt.

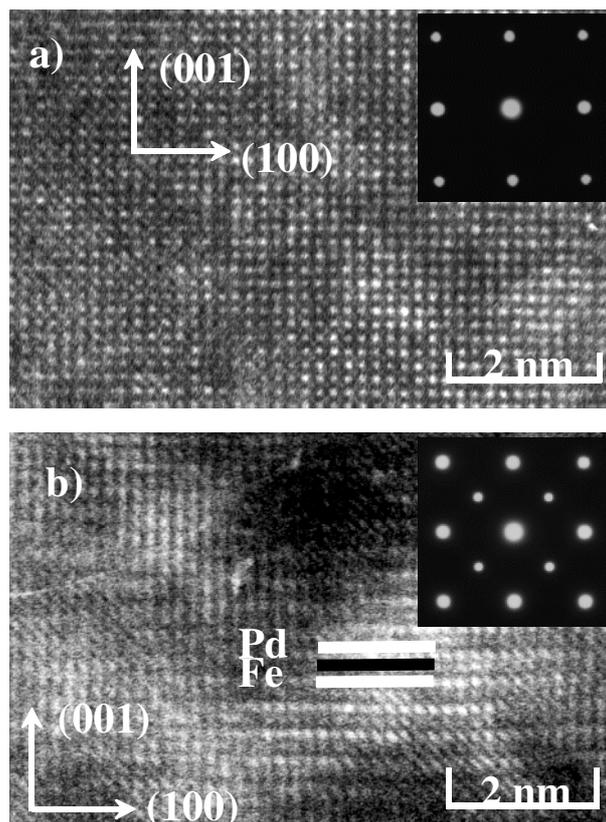


Fig. 1.1-1: Coupes haute résolution obtenues en microscopie électronique pour des dépôts de FePd sur Pd(001). a) codépôt à température ambiante, b) codépôt à 350°C. L'axe [100] est dans le plan de la couche. Les inserts représentent les diagrammes de diffraction en vue plane.

### Dépôt couches par couches

Pour disposer d'une température de dépôt plus basse, nous avons tenté d'élaborer à température ambiante la structure  $L1_0$  par le dépôt alterné des plans atomiques de fer et de palladium. L'état d'ordre obtenu est toujours faible, avec un paramètre d'ordre à longue distance fluctuant de l'ordre de 0.1. On peut voir sur le spectre de diffraction de rayons X, (Fig. 1.1-2) la faible intensité du pic de surstructure (001). De plus ce pic est très élargi et semble formé de deux pics de part et d'autre de la position attendue. Ce phénomène que nous avons déjà rencontré dans la croissance d'AuNi [Dyn97] provient d'un léger décalage entre la période structurale (les plans atomiques) et la période chimique (l'alternance des dépôts de

Fe et de Pd). Il est bien sûr dû à l'incertitude sur les flux d'évaporation et la difficulté de déposer exactement un plan atomique durant le temps nominal correspondant. Nous appelons ce type de dépôt : couche par couche en temps (CC-temps). Afin de mieux contrôler la complétion des couches atomiques, nous avons utilisé une technique dite de « phase-locked epitaxy » [Sak85], basée sur le contrôle des oscillations d'intensité de diffraction d'électrons (RHEED). Les maxima d'intensité de RHEED correspondent aux minima de rugosité et donc à la complétion des couches atomiques. L'alternance des éléments déposés se fait lors de la survenue de ces maxima, on parle de dépôt couche par couche RHEED (CC-RHEED). Avec ce contrôle des flux, l'état d'ordre est meilleur que pour le dépôt CC-temps. Donnant un paramètre d'ordre d'environ 0.4, il n'est cependant pas maximum. Il faut aussi noter que cette technique ne fonctionne que pour une épaisseur limitée car généralement les oscillations d'intensité de RHEED décroissent au fur et à mesure du dépôt. On notera que pour l'alliage de FePt, la technique CC-Temps donne un ordre chimique meilleur.

Enfin, pour une couche codéposée à température ambiante, un recuit à 420°C pendant une durée équivalente à celle du dépôt (~10min), ne conduit pas à une mise en ordre mesurable comme on peut le voir sur le spectre de diffraction correspondant. Nous verrons plus loin, §1.3 qu'une mise en ordre peut être obtenue pour des recuits significativement plus longs mais conduit à l'apparition de 3 variants.

### Ordre à courte distance

L'ordre à longue distance mesuré par diffraction de rayons X ou observé en microscopie électronique ne suffit pas à caractériser l'ordre chimique. Il peut subsister un ordre à courte distance qui peut avoir une incidence sur les propriétés magnétiques, notamment l'anisotropie. Dans un alliage à l'équilibre thermodynamique au dessus de la température de transition ordre-désordre, cet ordre local est bien connu et mesurable. On va jusqu'à s'en servir pour caractériser les ingrédients élémentaires de l'énergie d'ordre [Mar94]. Qu'en est il dans une couche élaborée par une technique hors d'équilibre telle que l'évaporation par jet moléculaire ? Pour avoir une idée de l'environnement atomique des espèces présentes dans l'alliage, nous avons mesuré par EXAFS les couches élaborées selon les différentes techniques [Geh98]. L'analyse des mesures des dépôts couches par couches a

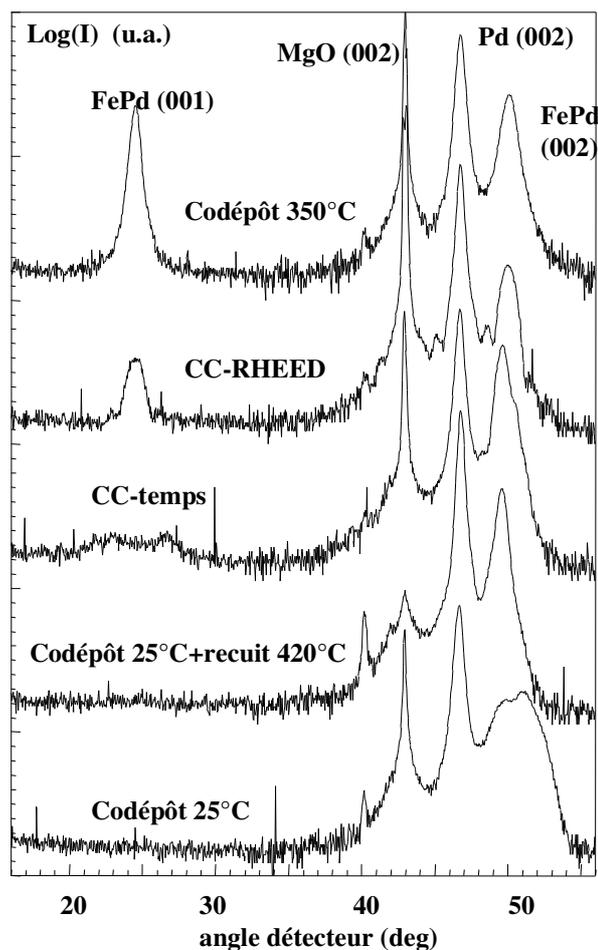


Fig. 1.1-2 : Spectres  $\theta/2\theta$  de diffraction de rayons X pour des couches de FePd élaborées de différentes façons. L'intensité du pic de surstructure, 001 rapportée à celle du pic fondamental, 002 permet d'évaluer l'ordre chimique à longue distance dans la structure  $L1_0$ .

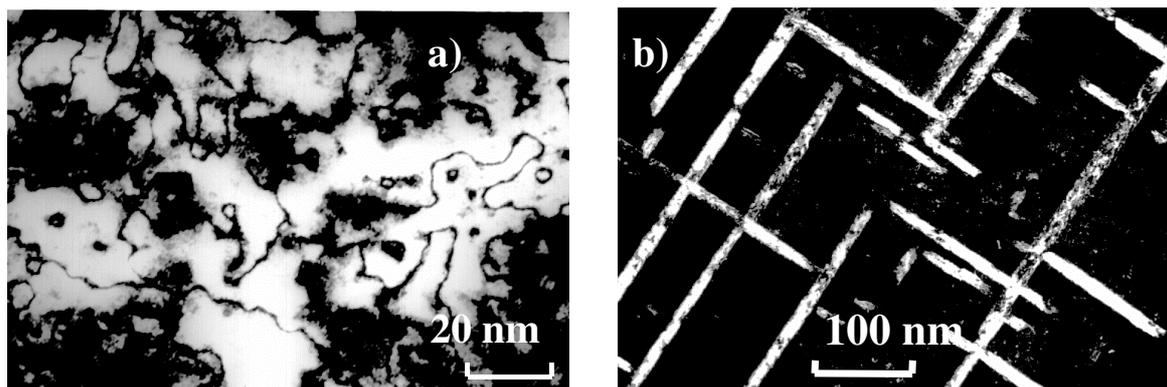


Fig. 1.1-3 : Images en champ sombre de microscopie électronique en transmission en vue de dessus sur des couches de FePd/Pd(001) élaborées à 350°C. a) Les taches de diffraction sélectionnées,  $\{110\}$  font apparaître en clair les domaines ordonnés. Les lignes sombres sont les parois d'antiphase. b) Les taches de diffraction sélectionnées,  $1/3\{151\}$  font apparaître en clair les zones maclées.

mis en évidence une tendance à l'ordre directionnel local (anisotropie) supérieur à celui obtenu à partir du paramètre d'ordre à longue distance par le simple produit des concentrations des sous réseaux de la structure ordonnée. On constate aussi une tendance à l'homocoordination sur tous les échantillons : la probabilité des paires homoatomiques de premiers voisins est supérieure au produit des concentrations de sites concernés. Notons que l'ordre local directionnel est un paramètre fondamental pour la compréhension des mécanismes de mise en ordre lors des post-traitements.

## Les défauts

A plus grande échelle, l'état de la couche est caractérisé par la présence de défauts cristallins. Nous en avons identifié de deux types par microscopie électronique en transmission. Les défauts liés à l'ordre chimique peuvent être révélés par les images en champ sombre en sélectionnant les taches de diffraction correspondant à la structure ordonnée. La figure 1.1-3a fait apparaître les domaines ordonnés séparés par des parois d'antiphase. Pour les codépôts bien ordonnés (350°C) la densité de parois d'antiphase est assez faible. Nous étudierons au chapitre 1.2 une source possible de ces parois d'antiphase. Pour les dépôts moins ordonnés leur densité est bien plus élevée [Gil01]. D'autre part, la présence de taches de diffraction extérieures au réseau réciproque de l'alliage FePd(001), nous a permis de mettre en lumière des défauts alignés selon les directions  $[110]$ , (Fig. 1.1-3b). Les taches de diffraction sélectionnées de type  $1/3\{151\}$  indiquent qu'il s'agit de zones maclées par rapport au reste de la couche. Nous verrons dans les chapitres suivants le rôle déterminant de ces défauts dans la relaxation des contraintes et pour les propriétés magnétiques.

## 1.2 Mise en ordre et morphologie de surface

Dans le chapitre précédent, l'absence de mise en ordre significative par recuit d'une couche désordonnée dans des conditions de température et de durée similaires à celles du codépôt à 350°C montre que la mise en ordre se fait au moment du dépôt. Les observations que nous avons pu faire par diffraction d'électrons, microscopie tunnel et spectrométrie Auger indiquent le rôle essentiel de la surface en cours de croissance sur cette mise en ordre.

## La surface en cours de croissance

Lors de la croissance bidimensionnelle (couches atomiques après couches atomiques), la rugosité de la surface liée à la densité de marches atomiques varie avec le remplissage des couches atomiques. Elle est minimale quand les couches sont complètes. Cela donne lieu à un régime de croissance avec des oscillations de réflectivité qui ont été observées par diverses techniques : diffraction d'électrons [Nea83], diffraction de rayons X, diffraction d'atomes d'hélium [Tol98]. Habituellement il y a une oscillation par couche atomique, c'est bien le cas pour le codépôt de FePd à température ambiante (Fig. 1.2-1a) qui est chimiquement désordonné. Les couches atomiques successives sont équivalentes en composition, morphologie, etc. Mais pour le codépôt à 350°C, la période des oscillations correspond à 2 couches atomiques d'alliages (Fig. 1.2-1b). La surface semble être plus lisse tous les deux plans atomiques. Pour comprendre ce qui se passe en surface, nous avons observé par

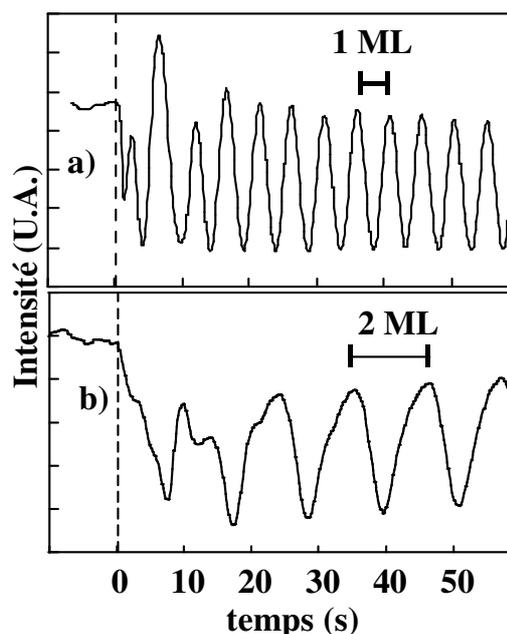


Fig. 1.2-1 : oscillations d'intensité de RHEED pour des dépôts de FePd sur Pd(001) effectuées à une vitesse de dépôt de 0.2 couche atomique/s. a) codépôt à 25°C, b) codépôt à 350°C.

microscopie tunnel nos échantillons sous vide immédiatement après le dépôt (Fig. 1.2-2). L'analyse d'image des hauteurs des marches montre l'existence de marches de hauteur bi-atomique à côté de marches de hauteur mono-atomique. L'histogramme des hauteurs de marches (Fig. 1.2-3) est bimodal avec une proportion de marches bi-atomiques de l'ordre de 50%. Par contre celui de la surface de palladium de départ (non représenté ici) ne présente que le pic des marches mono-atomiques. Cette analyse a été effectuée pour plusieurs épaisseurs de dépôt de l'alliage. Les densités de marches mono- et bi-atomiques ne semblent pas évoluer après les premières couches déposées. D'autre part la densité des marches mono-atomiques de l'alliage est similaire à celle de la surface de palladium initiale ( $\sim 40\mu\text{m}^{-1}$ ). Il semble donc que les marches mono-atomiques de la couche d'alliage soient un reliquat de la surface sur laquelle elle est déposée. Comment ces marches mono-atomiques se propagent-elles à travers l'alliage ? Les observations de parois d'antiphase en champ sombre en microscopie électronique (Fig. 1.1-3a) ou l'analyse des largeurs des pics de surstructure en diffraction de rayons X [Hal01] conduisent à des tailles latérales de domaines ordonnés de l'ordre de 30nm. Ceci suggère que les marches mono-atomiques de la surface de la couche de Pd se propagent à travers la couche d'alliage par l'intermédiaire des parois d'antiphase. Considérer cette seule source de parois d'antiphase serait sans compter la contribution possible des dislocations parfaites  $1/2[101]$ , dues à la relaxation. Or justement, nous verrons au chapitre suivant que pour les dépôts où l'alliage se met en ordre, (350°C) les dislocations partielles sont préférées aux dislocations parfaites. Ainsi ces dernières ne doivent que peu contribuer à la densité de parois d'antiphase.

## Mise en ordre chimique en surface

La formation de marches bi-atomiques est surprenante ; elle est défavorable du point de vue de l'entropie. La plupart des observations de marches bi-atomiques ont été réalisées dans les alliages ordonnés. Utilisant des monocristaux de  $\text{Cu}_{83}\text{Pd}_{17}$  et  $\text{AuCu}_3$ , Barbier et al.

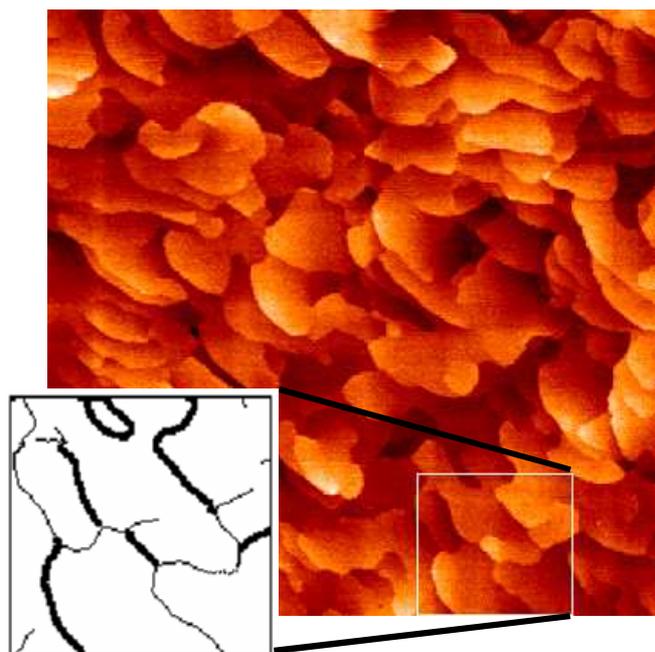


Fig. 1.2-2 : Image de 400nmX400nm, observée par microscopie tunnel sur une couche de FePd (5nm) déposée à 350°C sur Pd(001). Dans l'insert, l'épaisseur des traits correspond à la hauteur des marches obtenues par analyse d'image.

[Bar94, Goa98] ont étudié l'influence de la transition ordre ( $L1_2$ )-désordre sur les marches de surface. Cette transition dans le volume se traduit par une transition bi-atomique/mono-atomique sur une surface vicinale voisine de (001). L'explication avancée repose sur la conjonction d'une structure bicouche due à l'ordre chimique et de la ségrégation de l'un des éléments. Dans notre cas, le Palladium semble être l'élément qui ségrège [Ber93]. En effet, un alliage  $Fe_{99}Pd_1$  recuit à 800K aboutit à la formation d'une couche de surface enrichie à 55% en Palladium. Nos mesures Auger sur les couches d'alliage FePd [Gil01] ont confirmé cette tendance. De plus cette ségrégation apparaît nécessaire au mécanisme de mise en ordre en surface. En effet, à l'occasion de la thèse de C. Bourgoignon, [Bou01] des couches FePd ont été déposées sur des substrats semi-conducteurs (CdTe, ZnSe). Les atomes de Tellure ou de Sélénium présentent une forte tendance à la ségrégation lors de la croissance de FePd et se manifestent par l'apparition d'une reconstruction [Bou00]. L'ordre chimique obtenu dans la couche FePd est alors médiocre. Par contre, si on débarrasse la surface de l'alliage de cette couche de surfactant par un léger bombardement ionique, la qualité de la mise en ordre s'accroît fortement. Il semble donc que l'élément surfactant contrarie la ségrégation du palladium limitant ainsi son rôle dans la mise en ordre.

On peut donc proposer un mécanisme de mise en ordre attribué à la diffusion des atomes en surface et à un mécanisme de montée atomique (ségrégation) des atomes de palladium sur les atomes de fer pour former des bicouches Pd/Fe. Ceci expliquerait l'apparition du seul variant observé, la présence de marches bi-atomiques et la période double des oscillations d'intensité de RHEED. Ce mécanisme dépendrait fortement de la température de dépôt via les mobilités et tensions superficielle des éléments de l'alliage et ne serait pas actif à température ambiante.

[Bar94, Goa98] ont étudié l'influence de la transition ordre ( $L1_2$ )-désordre sur les marches de surface. Cette transition dans le volume se traduit par une transition bi-atomique/mono-atomique sur une surface vicinale voisine de (001). L'explication avancée repose sur la conjonction d'une structure bicouche due à l'ordre chimique et de la ségrégation de l'un des éléments. Dans notre cas, le Palladium semble être l'élément qui ségrège [Ber93]. En effet, un alliage  $Fe_{99}Pd_1$  recuit à 800K aboutit à la formation d'une couche de surface enrichie à 55% en Palladium. Nos mesures Auger sur les couches d'alliage FePd [Gil01] ont confirmé cette tendance. De plus cette ségrégation apparaît nécessaire au mécanisme de mise en ordre en surface. En effet, à l'occasion de la thèse de C. Bourgoignon, [Bou01] des couches FePd ont été

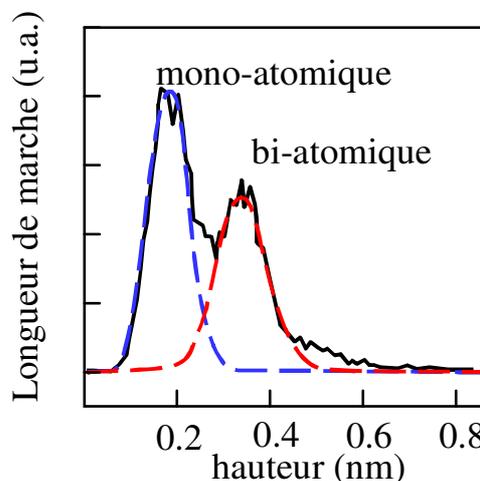


Fig. 1.2-3 : histogramme des hauteurs de marches issus de l'analyse d'image de microscopie tunnel (Fig. 1.2-2).

### 1.3 Traitement thermique et irradiation

Nous avons tenté deux approches pour ordonner à près dépôt une couche mince d'alliage élaborée désordonnée ou partiellement ordonnée, le recuit simple [Hal04] et l'irradiation à température modérée [Ber03].

#### Recuit

A une température de 400°C, comparable à celle utilisée pour le codépôt qui s'ordonne, le recuit d'une couche de FePd initialement désordonnée conduit à un état d'ordre avec les 3 variants. Le paramètre d'ordre à longue distance correspondant au variant Z n'atteint sa valeur plafond,  $s = 0.65$  qu'après une vingtaine d'heures alors que lors du codépôt à 350°C la mise en ordre se faisant en surface implique des durées de l'ordre de la minute. L'analyse des intensités des raies de diffraction de rayons X des différents variants montre que cette valeur plafond correspond à une proportion volumique du variant Z bien ordonné de l'ordre de 2/3, les deux variants restants se partageant le tiers du volume restant. Nous avons attribué cette asymétrie à la conservation de l'état de contrainte moyen lors du recuit. En effet, selon les mesures de diffraction, le paramètre de maille moyen dans le plan n'est pas modifié lors du recuit,  $a_{\parallel} = 0.3825 \text{ nm}$ . Avec les paramètres de maille de la structure  $L1_0$ ,  $a = 0.385 \text{ nm}$  et  $c = 0.371 \text{ nm}$ , on peut relier la proportion volumique de variant Z,  $p_z$  au paramètre de maille moyen dans le plan.  $a_{\text{moy}} = p_z a + (1-p_z)(a+c)$ . La conservation de l'état de contrainte moyen conduit à une valeur de  $p_z = 0.64$  comparable au résultat issu des mesures d'intensités. Cette proportion des trois variants doit permettre à la couche de se mettre en ordre sans augmenter les contraintes élastiques et sans nécessiter le passage de nouvelles dislocations.

#### Irradiation

L'irradiation d'un matériau avec un faisceau d'ions lui cause en général des dommages. Les collisions induites par l'irradiation désordonnent le réseau cristallin et modifient éventuellement ses propriétés. Cependant, la mobilité induite par l'irradiation peut permettre le retour vers les phases d'équilibre. Cette possibilité de mise en ordre par irradiation avait été conjecturée par Néel [Pau62]. Récemment, nous avons montré que l'irradiation peut induire l'ordre chimique dans les alliages bimétalliques FePd ou FePt initialement peu ordonnés [Ber03]. Lors de l'irradiation par des ions légers (hélium), à des énergies de 20 à 130 keV, l'interaction ion-matière est faible (un atome déplacé pour 100 plans atomiques traversés). Elle conduit essentiellement à la création de lacunes qui diffusent au sein de l'alliage. Ces lacunes

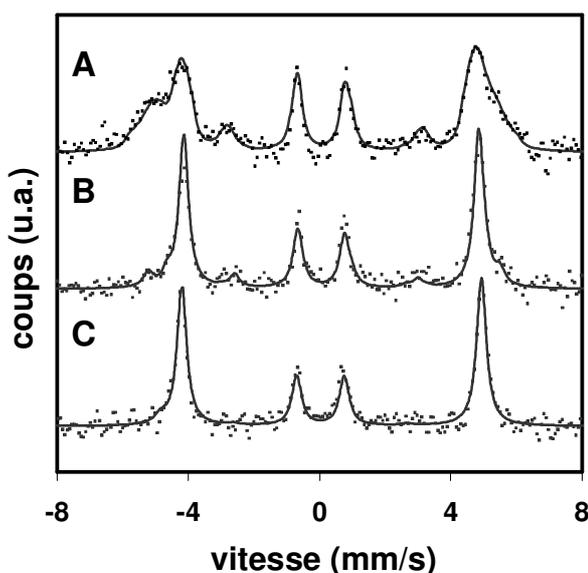


Fig. 1.3-1 : spectres Mössbauer sur des couches FePt/Pt(001). a) FePt élaboré couche par couche à 25°C, b) même couche après irradiation à 300°C, c) couche FePt codéposée à 500°C et donc ordonnée.

## Mise en ordre d'alliages en couches minces

comme celles obtenues par la voie thermique permettent aux atomes des échanges qui amènent l'alliage vers son état d'équilibre plus ordonné. Mais avec l'irradiation ceci peut être obtenu à une température modérée. Cependant, l'irradiation d'une couche d'alliage d'ordre chimique initial nul, obtenues par codépôt à température ambiante, n'aboutit qu'à une mise en ordre limitée et à la formation des 3 variants. Par contre l'irradiation de couches minces d'alliage obtenues par dépôt alterné de monocouches atomiques conduit à une mise en ordre chimique quasi parfaite avec le seul variant Z. Des simulations MonteCarlo montrent que l'ordre local directionnel initial détermine ce résultat [Ber03]. Nous avons caractérisé cette mise en ordre par spectroscopie Mössbauer. Sur la figure 1.3-1 concernant le cas de l'alliage FePt, on voit l'évolution du spectre de la couche avant irradiation, a) et après irradiation, b) à seulement 300°C. Alors que l'état bien ordonné s'obtient pour un codépôt, c) réalisé vers 500°C dans le cas des couches de FePt. L'intérêt de cette technique par rapport à un recuit simple réside dans la moindre température nécessaire à la mise en ordre et surtout dans la possibilité de moduler spatialement l'état d'ordre chimique à une échelle sub-micrométrique par des techniques de masquage avant irradiation ou de bombardement par des faisceaux d'ions focalisés.

## 2 Modes de relaxation des contraintes épitaxiales

Lors de la croissance épitaxiale se pose le problème des contraintes dues au désaccord de maille entre la couche déposée et le substrat. Ces contraintes sont relaxées par l'introduction de défauts qui ont souvent une grande influence sur les propriétés de la couche. Dans ce chapitre nous présenterons les différents mécanismes de relaxation que nous avons rencontrés. Bien que le présent mémoire soit orienté vers les alliages, j'ai aussi abordé ici le cas de la relaxation MgO/Fe qui nous a permis de mettre en évidence un mécanisme intéressant de ralentissement de la relaxation à cause de la répulsion entre dislocations.

### 2.1 Introduction sur la relaxation des contraintes par les dislocations

Lors de l'hétéroépitaxie, il est bien rare que les paramètres de maille des différentes couches soient strictement égaux. De plus, un accord de maille qui peut se produire à une température peut être mis en défaut lors d'autres étapes d'élaboration à différentes températures à cause de coefficients de dilatation différents. On définit le désaccord de maille par le facteur,  $f=1-a_{\text{film}}/a_{\text{substrat}}$  qui est positif quand le film est en tension sur le substrat. Pour assurer la continuité des plans cristallins, on parle de cohérence cristalline, les couches successives devraient être contraintes les unes sur les autres. On voit bien

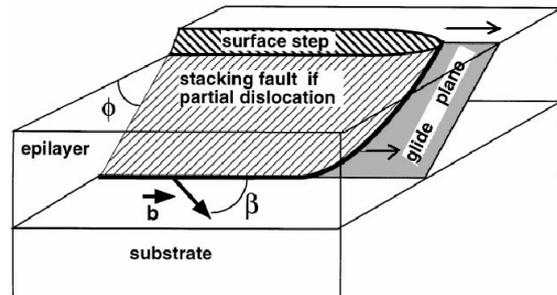


Fig. 2.1-1 : propagation d'une dislocation de vecteur de Burgers,  $\mathbf{b}$  sur le plan de glissement. Elle crée (ou détruit) une marche en surface correspondant à la composante verticale de  $\mathbf{b}$ . Si la dislocation est partielle, elle crée aussi dans son sillage une faute d'empilement.

que l'énergie élastique emmagasinée croîtrait proportionnellement à l'épaisseur des couches et donc finirait par dépasser l'énergie d'une interface complètement incohérente. En réalité, au-delà d'une épaisseur critique, plutôt qu'une interface complètement incohérente la nature utilise des défauts de moindre énergie, les dislocations afin de relaxer la contrainte épitaxiale. Si le film était approché en bloc du substrat il se formerait vraisemblablement un réseau périodique de dislocations coin ayant leur vecteur de Burgers parallèle à l'interface comme lors d'un collage moléculaire idéal. Cependant, dans la croissance épitaxiale, cette solution d'énergie minimale n'est pas toujours observée. En effet, Le type et la répartition des dislocations dépendent des mécanismes d'apparition et de propagation de ces dernières.

Pour relaxer une couche épitaxiée, une dislocation doit se mettre en mouvement afin de déposer à l'interface la ligne de dislocation (Fig. 2.1-1). On distingue deux types de mouvements : la montée, qui est un mouvement non conservatif car il nécessite le transport de matière et le glissement qui est conservatif. Aux températures habituellement utilisées en épitaxie par jets moléculaires, la montée qui nécessite la diffusion des espèces chimiques est trop lente pour assurer la relaxation. Seul reste le glissement qui se produit le long de plans de glissement associés au cristal. Le plan de glissement contient le vecteur de Burgers et la ligne de dislocation. Le moteur du glissement est la contrainte extérieure à la dislocation, ici la contrainte épitaxiale. Le vecteur force exercé par la contrainte sur un élément de longueur  $d\mathbf{l}$  de dislocation et sa composante dans le plan de glissement s'expriment à l'aide de la relation de Peach Köhler [Hir82] :

$$d\vec{F} = \boldsymbol{\sigma} \cdot \vec{b} \times d\vec{\ell} \quad \mathbf{F}_g = \vec{b} \cdot \boldsymbol{\sigma} \cdot \vec{n} \quad (2.1-1)$$



Où  $\mathbf{n}$  est le vecteur unitaire normal au plan de glissement. Dans un cristal, le potentiel d'interaction atomique est périodique. Aux ondulations de potentiel correspondent les forces de Pierls-Nabarro [Hir82] qui s'opposent au glissement des dislocations. Dans les métaux et leurs alliages, cette force est assez faible. Les forces de Pierls-Nabarro sont anisotropes et différentes suivant les plans cristallins. Ces forces décroissent avec l'écartement atomique, ce qui favorise le glissement le long des plans denses comme par exemple, le plan (111) du réseau cubique à faces centrées. Dans le cas de films minces continus, les plans de glissement actifs sont obliques : il faut que la dislocation se termine sur un défaut du cristal, ici la surface. Il faut aussi que le vecteur de Burgers ait une composante coin non nulle parallèle à l'interface de façon à relaxer la contrainte biaxiale. Ceci limite les systèmes de glissement possibles pour la relaxation.

Mais pour que la relaxation soit effective il faut qu'il y ait des dislocations en quantité suffisante. Celles-ci sont soit des dislocations préexistantes provenant de la couche sous-jacente (threading dislocations) soit des dislocations ayant nucléé à la surface [Mar87] ou près d'un défaut. Avec cette hypothèse, plusieurs auteurs ont proposé de rendre compte du mécanisme de relaxation à partir d'un calcul de force [Mat75]. Le calcul de la force totale exercée sur la dislocation est équivalent au calcul d'énergie par unité de longueur de ligne posée à l'interface. La force totale est la somme algébrique de la force motrice  $U_{film}$  due à la contrainte épitaxiale et des forces de rappel : la tension de ligne,  $U_{self}$  et la force nécessaire à la création d'un éventuel défaut,  $U_{fault}$ .

$$F_{tot} = -U_{tot} = -(U_{self} + U_{film} + U_{fault}) \quad (2.1-2)$$

Exprimons ces termes dans le cadre de l'élasticité isotrope. La tension de ligne est liée à l'interaction attractive avec la surface (eq. 2.1-3).  $\alpha$  est le paramètre de cœur qui dépend du type de dislocation et de l'énergie de cœur. Il est connu approximativement, entre 0.6 et 4 selon les systèmes de glissement et de matériaux. Certains auteurs utilisent implicitement la valeur 1. Par la suite on notera :  $\mu$  le module de cisaillement,  $\nu$  le coefficient de Poisson,  $h$  l'épaisseur de la couche,  $\beta$  l'angle entre la ligne de dislocation et le vecteur de Burgers et  $\phi$  l'angle du plan de glissement avec la surface.

$$U_{self} = \frac{\mu b^2 (1-\nu \cos^2 \beta)}{4\pi(1-\nu)} \ln\left(\frac{\alpha h}{b}\right) \quad (2.1-3)$$

L'énergie de la force motrice est due à la contrainte biaxiale d'épitaxie :

$$U_{film} = -2\mu \frac{1+\nu}{1-\nu} h b f \sin \beta \cos \phi$$

Enfin l'énergie d'une éventuelle faute d'empilement fait intervenir un terme proportionnel à l'épaisseur du film.

$$U_{fault} = \gamma_{fault} \frac{h}{\sin \phi}$$

Pour qu'il y ait relaxation, il faut dépasser une certaine épaisseur critique que l'on obtient formellement en écrivant l'équation d'équilibre :  $F_{tot}(h_c)=0$ . L'épaisseur critique est alors présentée sous une forme implicite qui se prête facilement au calcul itératif :

$$h_c = \frac{b(1-\nu \cos \beta) \ln\left(\frac{\alpha h_c}{b}\right)}{8\pi(1+\nu)(f - f_c) \sin \beta \cos \phi} \quad (2.1-4)$$

$$f_c = \frac{1-\nu}{1+\nu} \frac{\gamma_{fault}}{\mu b \sin \beta \sin 2\phi}$$

Ici, j'ai introduit le désaccord critique,  $f_c$  en dessous duquel le système de glissement impliquant une

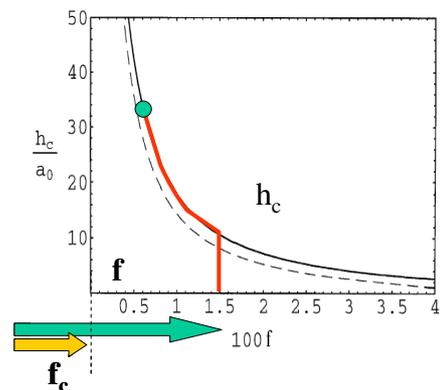


Fig. 2.1-2 : épaisseur critique en fonction du désaccord de maille pour un système de glissement de vecteur de Burgers  $b=1/2[101]$  et de plan de glissement (111) dans le réseau CFC. Les deux courbes correspondent à deux paramètres de cœur différents ( $\alpha=2$ , courbe continue,  $\alpha=4$ , courbe en tirets)

dislocation partielle munie de sa faute ne peut être activé quelque soit l'épaisseur. L'épaisseur critique varie quasiment comme l'inverse du désaccord de maille (Fig. 2.1-2). Au delà de 4% de désaccord de maille, l'épaisseur critique est tellement faible que l'on peut s'interroger sur la validité de ce modèle reposant sur l'élasticité linéaire dans un modèle de matière continue.

Au delà de l'épaisseur critique, la couche ne relaxe que progressivement car les dislocations en se propageant interagissent entre elles de façon répulsive et il faut augmenter l'épaisseur de la couche pour alimenter le moteur qui les fait avancer. Au fur et à mesure que la relaxation avance, la densité de dislocations augmente. Elles forment à l'interface un réseau plus ou moins périodique dont le pas diminue progressivement. Des calculs analytiques [Wil90, Dyn94] ont été proposés pour calculer l'énergie d'un réseau périodique de dislocations. Mais compte tenu du mode de production des dislocations (dislocations du substrat ou nucléation aléatoire) la périodicité du réseau n'est pas assurée. D'autres auteurs [Jai92] ont proposé le calcul d'énergie d'interaction d'un réseau pseudo-périodique (avec une distribution des distances entre dislocations). Tous ces modèles prennent en compte le caractère non uniforme du champ élastique dû au réseau de dislocations. Cependant si on se limite à la partie uniforme (moyenne) de ce champ élastique, l'expression de l'énergie est grandement simplifiée. C'est une approximation simple pour considérer une distribution aléatoire de dislocations. Cette approche correspond en fait aux premiers modèles couramment utilisés [Mat75, Her96]. Avec cette approximation, La densité surfacique d'énergie du réseau de dislocations s'écrit :

$$\mathbf{u}_{\text{tot}} = \mathbf{u}_{\text{film}}(\boldsymbol{\varepsilon}_{\text{res}}) + \rho_{\text{disloc}}(\mathbf{U}_{\text{self}} + \mathbf{U}_{\text{fault}})$$

Où  $\mathbf{u}_{\text{film}}$  est la densité d'énergie élastique du film soumis à la déformation résiduelle  $\boldsymbol{\varepsilon}_{\text{res}}$  et  $\rho_{\text{disloc}}$  est la densité de dislocations du réseau. Dans l'approximation élastique isotrope on peut écrire :

$$\mathbf{u}_{\text{film}} = 2\mu \frac{1+\nu}{1-\nu} \boldsymbol{\varepsilon}_{\text{res}}^2 h \quad \text{et} \quad \rho_{\text{disloc}} = \frac{2|f - \boldsymbol{\varepsilon}_{\text{res}}|}{b \sin \beta \cos \phi}$$

Pour une épaisseur donnée, la déformation résiduelle d'équilibre peut être obtenue par la minimisation de la densité d'énergie totale,  $\mathbf{u}_{\text{tot}}$  par rapport à la déformation résiduelle, c'est-à-dire par rapport à la densité de dislocations. La minimisation conduit à :

$$\frac{\delta \mathbf{u}_{\text{tot}}}{\delta \boldsymbol{\varepsilon}_{\text{res}}} = 4\mu \frac{1+\nu}{1-\nu} \boldsymbol{\varepsilon}_{\text{res}} h - \frac{2}{b \sin \beta \cos \phi} (\mathbf{U}_{\text{self}} + \mathbf{U}_{\text{fault}}) = 0 \quad (2.1-4)$$

On peut remarquer que cette équation, après quelques remaniements algébriques correspond à l'annulation de la force (eq. 2.1-2) subie par une dislocation dans une couche qui aurait un désaccord de maille,  $\boldsymbol{\varepsilon}_{\text{res}}$ . La déformation résiduelle d'équilibre est donc la valeur qui rend critique l'épaisseur  $h$  dans (eq. 2.1-4) où l'on a remplacé  $f$  par  $\boldsymbol{\varepsilon}_{\text{res}}$ .

$$\boldsymbol{\varepsilon}_{\text{res}}(h) = f_c + \frac{b(1-\nu \cos \beta) \ln\left(\frac{\alpha h}{b}\right)}{8\pi(1+\nu)h \sin \beta \cos \phi} \quad (2.1-5)$$

La courbe de la figure 2.1-2 fournit donc une représentation de la relaxation en remplaçant en abscisse  $f$  par  $\boldsymbol{\varepsilon}_{\text{res}} - f_c$  et en ordonnée  $h_c$  par  $h$ . A la lumière de ces modèles, nous avons pu interpréter les différents résultats obtenus.

## 2.2 Relaxation par la formation de micromacles

Lors du dépôt de l'alliage ordonné FePd à 350-400K sur la surface de Pd(001), la contrainte épitaxiale due au désaccord de maille (de l'ordre de 1%) relaxe progressivement comme on pourra le voir sur la figure 2.3-1. La microscopie électronique, (Fig. 2.2-1) nous a permis d'identifier les dislocations qui participent à cette relaxation. Il s'agit de dislocations

partielles (dites de Shockley) de vecteur de Burgers  $1/6[112]$  glissant sur les plans denses (111) du réseau de sites atomiques cubique à faces centrées. Nous verrons plus loin, §2.3 pourquoi ces dislocations apparaissent dans ces conditions de dépôt. Au lieu d'être réparties périodiquement ou aléatoirement, ces dislocations sont rassemblées et bordent un défaut qu'elles ont vraisemblablement créé, une zone maclée que nous avons aussi pu voir en champ sombre (Fig. 1.1-3b). Nous avons déjà rencontré ces défauts que l'on appelle micromacles lors de l'étude AuNi/Au(001) [Dyn98].

On peut comprendre la formation des micromacles d'un point de vue énergétique. La propagation de la dislocation partielle crée une faute d'empilement le long du plan de glissement. Pour la suite de la relaxation, il peut être plus avantageux de propager de nouvelles dislocations partielles dans les plans atomiques premiers voisins. Ce mouvement en cascade crée une région du cristal maclée représenté schématiquement sur la figure 2.2-2. L'énergie totale des deux joints de macles qui la bordent est de l'ordre de grandeur de l'énergie de faute d'empilement. Donc l'énergie de faute ne change pas significativement avec le glissement de nouvelles dislocations sur les plans adjacents. Cependant les dislocations formant une même micromacle, de vecteurs de Burgers identiques, se repoussent entre elles. On peut voir sur la figure 2.2-1 que les dislocations n'atteignent pas toutes l'interface et se tiennent à une certaine distance les unes des autres. Ce comportement est finalement assez similaire à l'empilement de dislocations bloquées par un précipité dans un matériaux massif, la couche de palladium jouant le rôle de l'obstacle. C'est cette répulsion qui retarde la relaxation, car il faut une épaisseur suffisante de la couche pour introduire de nouvelles dislocations à distance des premières. Pour modéliser ce comportement, Halley, [Hal02] minimise l'énergie totale d'un groupe de N dislocations qui bordent la micromacle par rapport à leurs positions. Il augmente N jusqu'à ce qu'il n'y ait plus de position stable dans la couche pour N+1 dislocations. Ce modèle nous a permis d'interpréter la lenteur et la linéarité de la relaxation d'un dépôt de FePd ordonné sur Pd(001) observés par

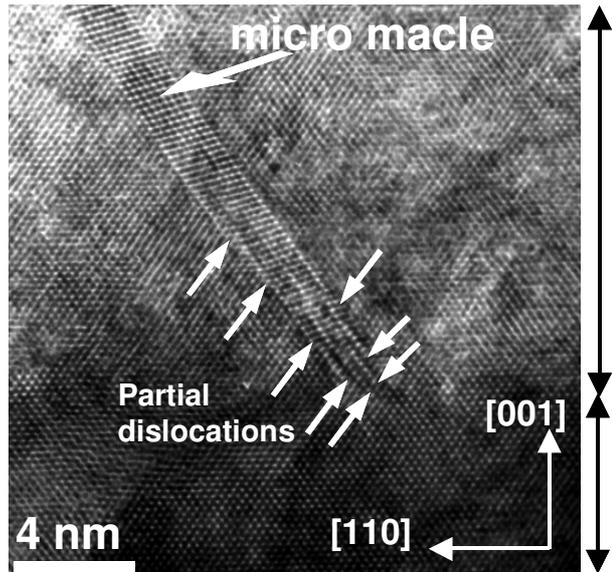


Fig. 2.2-1 : Image de microscopie électronique à haute résolution sur FePd codéposé à 350°C sur Pd(001). La coupe selon l'axe  $\langle 110 \rangle$  montre une micromacle bordée par les dislocations partielles qui l'ont formée (flèches).

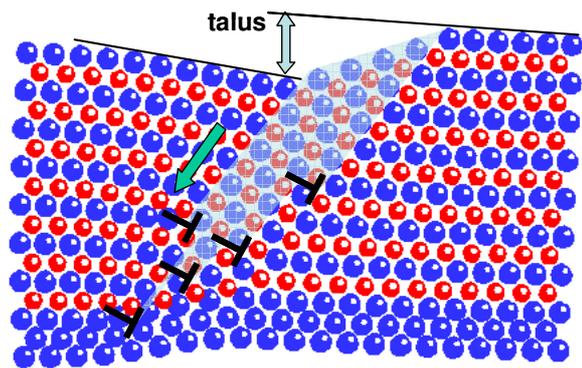


Fig. 2.2-2 : Les micromacles résultent du glissement de dislocations partielles (dites de Shockley) de vecteur de Burgers  $1/6[112]$  sur les plans atomiques (111) adjacents. Chaque dislocation contribue à la relaxation des contraintes épitaxiales par un déplacement  $b// = a 2^{1/2}/6$ .

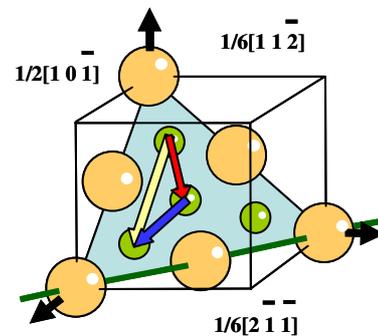


Fig. 2.2-3. Schéma des vecteurs de Burgers des dislocations parfaites et partielles dans le plan de glissement (111).

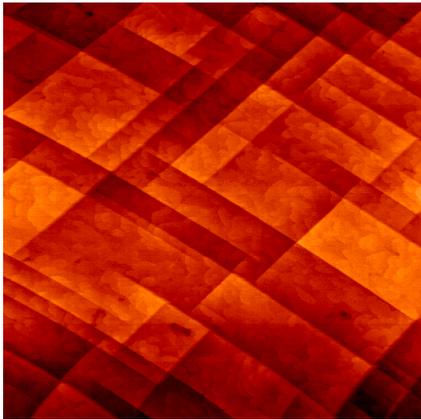


Fig. 2.2-4 : Image de microscopie tunnel (1 $\mu$ m) sur une surface de FePd (80nm) codéposé sur Pd(001). Les talus sont alignés selon les directions <110>.

diffraction d'électrons (Fig. 2.3-1).

D'où proviennent les dislocations ? Nous avons envisagé la nucléation de demi-boucles de dislocations en surface en estimant la barrière d'énergie et leur rayon critique dans le cas de l'alliage AuNi [Dyn96]. Mais si l'on observe la surface de départ Pd(001) par microscopie tunnel on constate l'émergence d'un nombre non négligeable de dislocations qui se manifestent aux extrémités des marches atomiques par une morphologie en hélice. Il s'agit de dislocations parfaites<sup>1</sup>,  $1/2[101]$  dont la composante verticale,  $1/2[001]$  correspond à la hauteur d'une marche atomique de palladium. Lors de la croissance, ces dislocations se prolongent dans l'alliage jusqu'à la surface. Elles apparaissent alors aux extrémités des marches mono-atomiques ou aux points de rencontre entre marches mono- et bi-atomiques (Fig. 1.2-2). Plutôt que d'invoquer la nucléation de dislocations nouvelles, on pense que ces dislocations émergentes parfaites se dissocient en deux partielles  $1/2[10\bar{1}] \rightarrow 1/6[11\bar{2}] + 1/6[2\bar{1}\bar{1}]$  (Fig. 2.2-3). La première, la plus efficace pour la relaxation des contraintes d'épitaxie, conduit à un déplacement horizontal,  $u=2^{1/2}a_0/6$  lorsqu'elle se propage dans l'alliage. La deuxième est moins efficace avec un déplacement de  $u=2^{-1/2}a_0/6$  et reste donc en place.

La propagation d'une dislocation dans une couche mince crée (ou efface) une marche atomique à la surface. Pour une dislocation parfaite,  $1/2[101]$  la marche serait de hauteur atomique,  $h=a_0/2$ . Mais pour une dislocation partielle,  $1/6[112]$  la hauteur de la marche est deux tiers atomique,  $h=a_0/3$ . Comme on peut le voir sur la figure 2.2-2, les N dislocations constituant une micromacle conduisent à un talus de hauteur  $Na_0/3$  le long des directions <110>. Nous avons observé de tels talus en microscopie tunnel (Fig. 2.2-4). L'analyse quantitative des images donne la densité des micromacles, et la distribution des hauteurs des talus donne la distribution d'épaisseur de celles-ci. La densité de micromacles qui apparaissent à partir de l'épaisseur critique (<5nm) n'augmente que très peu ensuite. Par contre la hauteur moyenne du talus s'accroît à peu près proportionnellement à l'épaisseur. Ceci montre comment le mécanisme de relaxation accroît la densité de dislocations. L'histogramme des hauteurs de talus, (Fig.2.2-5) présente des pics pour les valeurs multiples entières de la hauteur de talus élémentaire,  $a_0/3$ . Nous pouvons donc compter le nombre de dislocations présentes dans une micromacle donnée. Avec la densité de micromacles et le nombre moyen de dislocation par micromacles, il est aisé de calculer la relaxation due à celles-ci. Ce calcul, comparé aux mesures de la relaxation totale (RHEED et rayons X) montre que les micromacles assurent l'essentiel de la relaxation.

Le mécanisme de relaxation de la couche se déroule donc en deux temps : immédiatement après l'épaisseur critique, des fautes

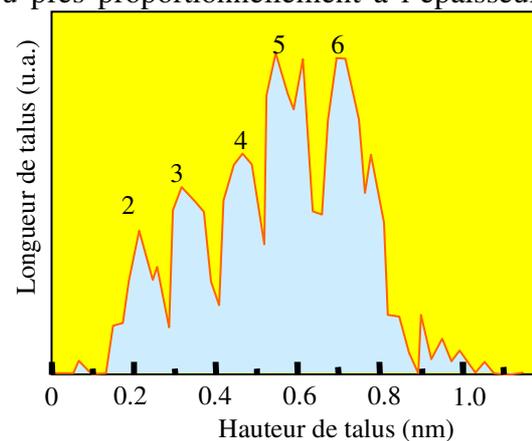


Fig. 2.2-5 : Histogramme des hauteurs de talus obtenu à partir de la mesure STM sur une couche FePd(40nm)/Pd(001). L'indexation des pics correspond aux nombres de dislocations partielles formant une micromacle.

<sup>1</sup> Ces dislocations sont parfaites pour le réseau de sites atomiques, mais pour la structure chimique ordonnée,  $L1_0$  il faudrait les qualifier de partielles.

d'empilement sont créées avec une densité qui dépend essentiellement de la densité de dislocations préexistantes. Puis dans une deuxième phase les fautes d'empilement deviennent des micromacles par le glissement de dislocations partielles sur leurs flans, tandis la densité du réseau de micromacles ne varie que très peu.

### 2.3 Sélection du type de dislocations selon l'état d'ordre chimique

L'état d'ordre chimique, par l'intermédiaire de l'énergie de parois d'antiphase, peut jouer un rôle important dans le mécanisme de relaxation. C'est ce que nous avons pu constater dans la relaxation FePd/Pd(001) et FePt/Pt(001). Quand ces alliages sont codéposés à température suffisante pour la mise en ordre (600-700K), nous venons de voir (§2.3) que la relaxation était assurée par les micromacles. Par contre avec le codépôt à température ambiante, donc désordonné, nous n'avons pas observé la présence de micromacles. La microscopie électronique montre au contraire des dislocations parfaites,  $1/2[101]$ , [Hal04]. Quand l'alliage est désordonné, la structure est cubique et le désaccord de maille avec la couche de départ est plus élevé qu'avec la structure ordonnée quadratique, par exemple 2.3% pour FePd/Pd. La relaxation est alors plus rapide, (Fig. 2.3-1). De plus la courbe de relaxation présente une allure plus classique (courbure) conforme aux modèles avec des dislocations qui s'établissent à l'interface [Mat75, Her96]

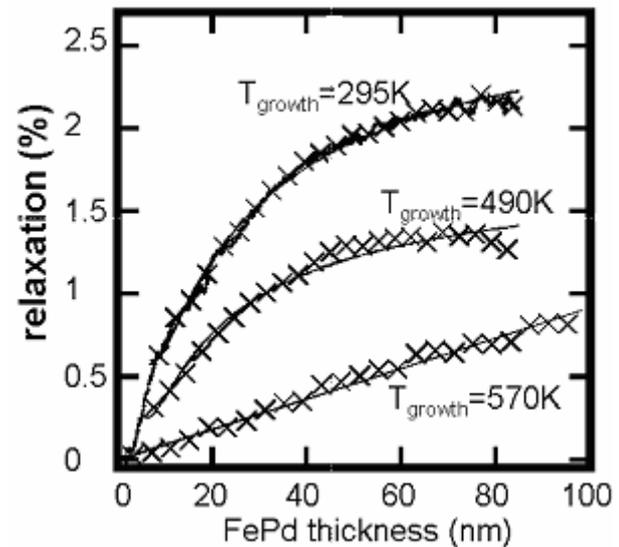


Fig. 2.3-1: Relaxations à différentes températures mesurées par diffraction d'électrons en cours de dépôt de FePd sur Pd(001).

Il ne semble pas que la température soit en cause dans le type de dislocations actif. En effet, le dépôt couches par couches à température ambiante de FePt, qui donne un alliage assez bien ordonné présente des micromacles. A l'inverse, lors du codépôt à 350°C sur un substrat semi-conducteur qui s'ordonne mal à cause de l'effet surfactant d'un des éléments du semi-conducteur, les micromacles ne sont alors pas observées [Hal01]. La sélection du mécanisme de relaxation semble plutôt dépendre de l'état d'ordre de la couche. Le coût énergétique de la création pour une paroi d'antiphase lors de la propagation d'une dislocation parfaite dans un alliage ordonné favorise la propagation de dislocations partielles. Certes, les dislocations partielles doivent aussi créer une faute d'empilement. Mais l'énergie surfacique des fautes d'empilement est du même ordre de grandeur que celle des parois d'antiphase. Une estimation de ces énergies donne : parois d'antiphase :  $0.2\text{J/m}^3$ , faute d'empilement :  $0.16\text{J/m}^3$  [Hal04]. Le caractère coin et un vecteur de Burger plus petit donnent alors aux dislocations partielles

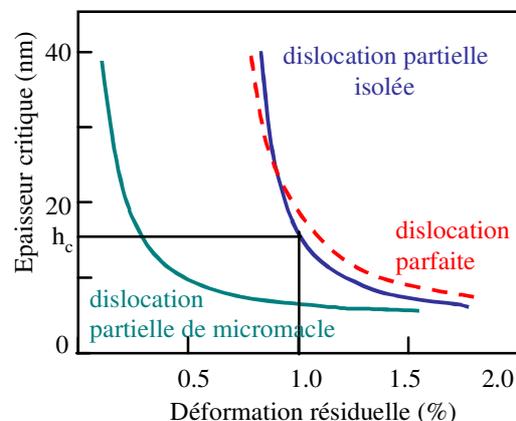


Fig. 2.3-2 : épaisseurs critiques de propagation de dislocations partielles et parfaites dans FePd ordonné et des dislocations partielles glissant sur une micromacle.

un léger avantage.

Le calcul de l'épaisseur critique (eq. 2.1-4) est représenté sur la figure 2.3-2. Avec un désaccord de maille de 1% pour FePd(ordonné)/Pd, les dislocations partielles isolées sont les premières à être activées. La déformation résiduelle décroît alors, mais les dislocations parfaites ne sont pas activées pour autant car les dislocations partielles des micromacles avec une épaisseur critique bien plus faible assurent la suite de la relaxation. A l'inverse, dans une couche d'alliage désordonné ou faiblement ordonné, l'énergie de paroi d'antiphase s'estompe<sup>2</sup> ne retenant plus les dislocations parfaites. Cette étude montre l'influence de l'état d'ordre sur la présence et le type de défauts de relaxation. Comme nous le verrons dans le chapitre suivant, ces défauts jouent un rôle majeur dans les propriétés magnétiques des couches minces. Il est donc important de comprendre leur structure et leurs conditions d'apparition.

## 2.4 Relaxation de MgO sur Fe

Le caractère biaxial de la contrainte et donc de la relaxation suppose qu'il existe au moins deux réseaux de dislocations dans des directions différentes, C'est le cas par exemple pour la croissance de MgO de structure NaCl (cubique) sur Fer (cubique centré) selon la face (001) que nous avons étudiée à l'aide de la diffraction d'électrons [Vas96]. Les plans de glissement dans MgO sont du type {101}, obliques par rapport à l'interface. On attend deux réseaux de dislocations coin orthogonaux de vecteur de Burgers 1/2[101] le long des axes <100>. La propagation d'une dislocation peut être arrêtée par une autre dislocation orthogonale (Fig. 2.4-1). Pour franchir cet obstacle elle doit passer au dessus dans un canal d'épaisseur h\* . On peut exprimer les forces de rappel sur la dislocation en termes de la déformation nécessaire pour la faire avancer dans ce canal. Il y a d'abord la tension de ligne, caractérisée par  $\epsilon_{line}(h^*)$ , (eq. 2.1-5) avec  $f_c=0$  car il n'y a pas de faute d'empilement puis la force due à la contrainte de la dislocation orthogonale, D<sub>2</sub>. Cette dernière équilibre une déformation qui peut être calculée à partir de l'équation (eq. 2.1-1).

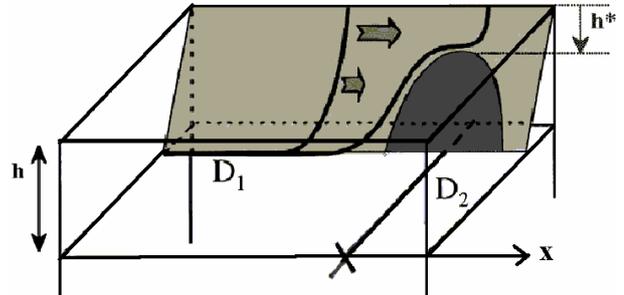


Fig. 2.4-1 : La dislocation D<sub>1</sub> subit le champ élastique d'une dislocation orthogonale D<sub>2</sub>. Elle parvient à passer au dessus dans un canal d'épaisseur h\* quand l'épaisseur h est suffisante, mais ce mécanisme de blocage retarde la relaxation.

On peut exprimer les forces de rappel sur la dislocation en termes de la déformation nécessaire pour la faire avancer dans ce canal. Il y a d'abord la tension de ligne, caractérisée par  $\epsilon_{line}(h^*)$ , (eq. 2.1-5) avec  $f_c=0$  car il n'y a pas de faute d'empilement puis la force due à la contrainte de la dislocation orthogonale, D<sub>2</sub>. Cette dernière équilibre une déformation qui peut être calculée à partir de l'équation (eq. 2.1-1).

$$\epsilon_D(x, h^*) = - \frac{\vec{b} \cdot \sigma_D(x, h^*) \cdot \vec{n}}{\vec{b} \cdot \sigma(f=1) \cdot \vec{n}}$$

où  $\sigma(f=1)$  est le tenseur de contrainte biaxial pour une déformation unité et  $\sigma_D$  est le champ de contraintes dues à la dislocation D<sub>2</sub>, dont une expression analytique a été proposée [Hea53]. Pour que la dislocation passe dans le canal, la déformation résiduelle de la couche  $\epsilon_{res}$  doit être supérieure à la somme  $\epsilon_{line}(h^*) + \epsilon_D(x, h^*)$  pour tout x. Il s'agit donc de calculer la valeur de col :

$$\epsilon_{res} = \text{Min}_{h^*} \left[ \text{Max}_x (\epsilon_{line}(h^*) + \epsilon_D(x, h^*)) \right]$$

<sup>2</sup> En réalité dans un alliage désordonné mais présentant un ordre local, le passage d'une dislocation modifie l'état d'ordre dans son sillage. L'énergie mise en jeu est néanmoins faible par rapport à celle d'une paroi d'antiphase.

## Modes de relaxation des contraintes épitaxiales

Nous avons appliqué ce modèle de blocage proposé par Freund [Fre90] au cas MgO/Fe. Représenté sur la figure 2.4-2, il est à comparer aux modèles à l'équilibre des forces qui correspondent à la minimisation de l'énergie totale d'un réseau de dislocations. Le mécanisme de blocage décrit bien la relaxation pour les fortes épaisseurs, c'est là précisément que la densité de dislocations est suffisamment élevée pour jouer un rôle significatif dans le blocage des dislocations.

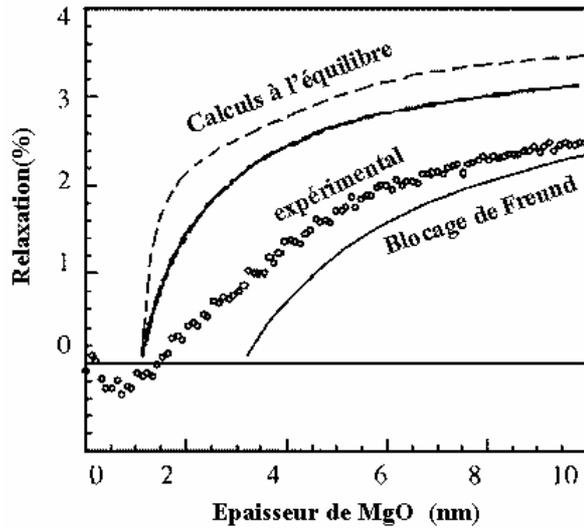


Fig. 2.4-2 : la relaxation de MgO déposé sur Fe(001). Courbe discontinue : modèle de réseau périodique de dislocations alternées, courbes continues : modèle de relaxation uniforme présenté dans le texte. Ces modèles d'équilibre relaxent trop vite. Le modèle de blocage rend mieux compte de la relaxation aux fortes épaisseurs.

### 3 Magnétisme des couches minces d'alliages

Dans ce chapitre nous présentons nos résultats sur des couches minces d'alliages ferromagnétiques présentant une anisotropie perpendiculaire plus ou moins forte. L'anisotropie dont il est question ici est liée à la structure quadratique de l'alliage qui induit un axe de facile aimantation le long de son axe. Le premier chapitre montre dans quelles conditions il est possible d'obtenir que cet axe soit perpendiculaire aux couches minces. Avec les alliages FePd et FePt nous disposons de systèmes modèles à forte aimantation et dont l'anisotropie parcourt une grande gamme de valeurs, notamment grâce à la possibilité de faire varier l'état d'ordre chimique (§1). L'alliage FePt en particulier avec sa très forte anisotropie magnétocristalline [Ova73] a beaucoup attiré l'attention et a donné lieu à un grand nombre de publications [Oka02]. Il est un candidat potentiel pour permettre de repousser la limite superparamagnétique et accroître ainsi la densité d'enregistrement des média magnétiques. Avec ces caractéristiques magnétiques, ces alliages nous ont permis de nombreuses études : structure en domaines et taille d'équilibre, coercitivité liée à la microstructure, résistance électrique de parois et cinétique de propagation des parois, dynamique radiofréquence de l'aimantation. De plus ils ont constitué des candidats intéressants pour valider des techniques de mesure nouvelles : microscopie de force magnétique, diffraction magnétique de rayons X mous et de neutrons sur les domaines, diffraction magnétique cohérente de rayons X. Ce chapitre passe en revue des résultats que nous avons établis progressivement. Par exemple, c'est l'observation de la structure en domaines bien alignés qui nous a permis de mener à bien les expériences de résistance de parois ou de diffraction magnétique.

#### 3.1 Configurations magnétiques dans les couches minces

Dans une couche mince, quand l'anisotropie magnétique perpendiculaire est suffisante, cette dernière tend à orienter l'aimantation perpendiculairement au plan des couches tandis que l'énergie démagnétisante tend à coucher l'aimantation dans le plan. Cette frustration est résolue en formant des domaines d'aimantation pointant alternativement vers le haut et vers le bas de la couche [Kit46]. Il en résulte la présence de parois de domaines d'énergie surfacique  $\sigma_w$ . L'énergie minimale est obtenue pour une configuration en domaines périodiques alignés où l'énergie d'échange et d'anisotropie présentes dans les parois équilibre la diminution d'énergie démagnétisante due à cette structure alternée. Une configuration en domaines entrelacés avec une taille caractéristique proche de la période d'équilibre conduit à une énergie proche de ce minimum. La configuration magnétique peut souvent rester dans cet état proche de l'équilibre. Pour comprendre les configurations statiques et les courbes d'aimantation, dans un modèle micromagnétique le plus simple, on décompose l'énergie magnétique en

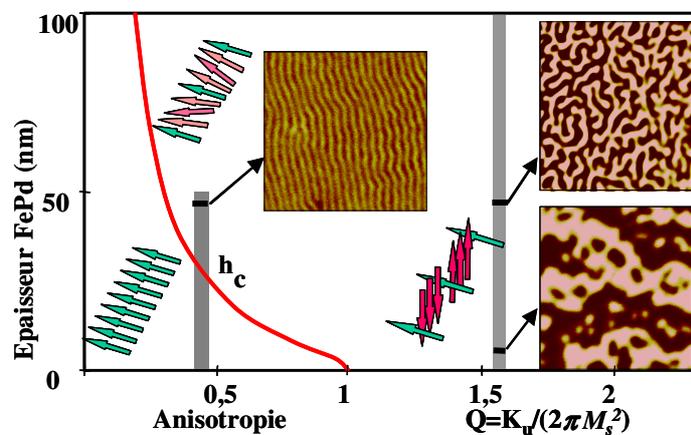


Fig. 3.1-1: diagramme de phase des configurations magnétiques de couches minces de FePd en fonction de l'anisotropie et de l'épaisseur. Les barres grises représentent deux échantillons en coin d'épaisseur de facteur d'anisotropie,  $Q=0.4$  et  $Q=1.6$ .



présence d'un champ extérieur en la somme de l'énergie d'échange, l'énergie d'anisotropie, l'énergie démagnétisante et l'énergie de champ appliqué:  $E=E_{ech}+E_{an}+E_{dem}-M.H$ . Les 3 premiers termes de l'énergie magnétique sont proportionnels respectivement à la constante d'échange,  $A$ , la constante d'anisotropie uniaxiale,  $K_u$  et au carré de l'aimantation à saturation  $M_s$ . A partir de ces constantes on peut former 2 rapports sans dimension qui caractérisent les couches magnétiques à anisotropie perpendiculaire : le facteur d'anisotropie,  $Q=2K_u/(\mu_0 M_s^2)$  et l'épaisseur réduite,  $h/l_{ex}$ . Où  $l_{ex} = [2A/(\mu_0 M_s^2)]^{1/2}$  est la longueur d'échange. L'alliage FePd nous a permis de parcourir ces deux paramètres en jouant sur l'épaisseur et l'anisotropie magnétique. Pour cela nous avons élaboré des échantillons en coin d'épaisseur présentant plusieurs états d'ordre chimique (§1). Les résultats obtenus peuvent être alors situés dans le plan  $(Q,h)$  du facteur de d'anisotropie, et de l'épaisseur (Fig. 3.1-1). Dans le cadre d'un modèle rustique [Suk97], on peut séparer la partie du « diagramme de phases » où l'aimantation à l'équilibre est uniformément dans le plan de la couche de la partie du diagramme où l'aimantation sort du plan. Cette limite définie par l'expression paramétrique, (eq. 3.1-1) est représentée par la ligne continue sur la figure 3.1-1.

$$Q = (3u - (\pi + 3u) \exp(-\pi/u))/(2\pi) \quad h = \sqrt{2\pi^3 / (u \sqrt{u - (\pi + u) \exp(-\pi/u)})} \quad (\text{eq. 3.1-1})$$

Le paramètre  $u$  correspond au rapport de la taille des domaines et de l'épaisseur de la couche. Quand l'épaisseur est très faible, cette limite correspond à un facteur d'anisotropie,  $Q$  voisin de 1. L'aimantation sort du plan à toute épaisseur pour  $Q>1$ , c'est à dire pour une énergie d'anisotropie,  $K_u$  supérieure à l'énergie de champ démagnétisant,  $1/2\mu_0 M_s^2$ . Néanmoins, quand le facteur d'anisotropie est compris entre 0 et 1, on peut trouver une épaisseur critique,  $h_c$  au delà de laquelle l'aimantation sort aussi du plan.

### Anisotropie faible, configuration en rubans faibles

Au voisinage de cette limite, l'aimantation sort du plan par une ondulation sinusoïdale de faible amplitude, on parle de configuration en rubans faibles. L'amplitude de l'ondulation augmente au fur et à mesure qu'augmentent l'anisotropie et l'épaisseur. On peut se faire une idée de la configuration d'aimantation sur la figure 3.4-2a, obtenue par simulation micromagnétique d'une couche de FePd ayant un facteur d'anisotropie de l'ordre de 0.4. Nous avons pu mettre en évidence l'épaisseur critique sur un échantillon en coin d'épaisseur présentant un facteur d'anisotropie modéré,  $Q=0.4$  (fig. 3.1-2 haut). A faible épaisseur, l'aimantation est dans le plan et l'aimantation rémanente planaire est

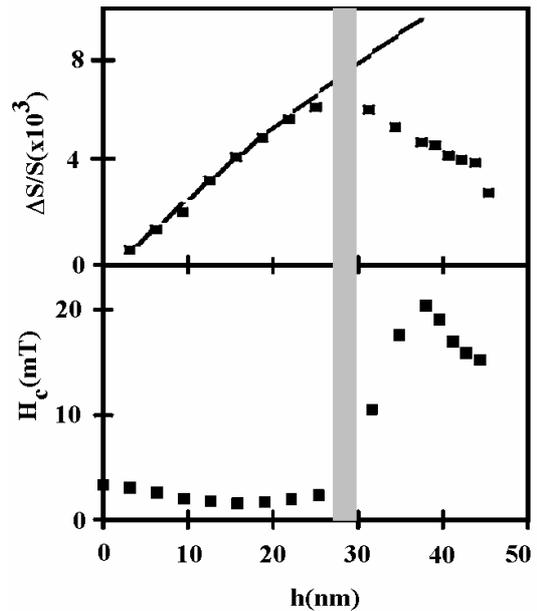


Fig. 3.1-2 : mesures par effet Kerr transverse en fonction de l'épaisseur de FePd sur un échantillon en coin d'épaisseur avec  $Q=0.4$ . En haut: signal rémanent. La courbe en continu donne le signal correspondant à la saturation. En bas : Champ coercitif. Le trait vertical représente l'épaisseur critique.

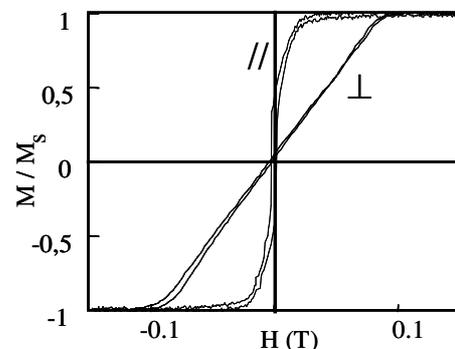


Fig. 3.1-3 : Courbes d'aimantation en champ perpendiculaire et parallèle pour une couche de FePd de 50nm ayant une anisotropie modérée,  $Q=0.4$ .

de 100% c'est-à-dire égale à l'aimantation à saturation. Au delà de l'épaisseur critique, l'aimantation en champ nul sort du plan en ondulant de part et d'autre de celui-ci. L'aimantation rémanente planaire n'est plus de 100% (Fig. 3.1-3) et il faut un champ planaire de plus en plus important pour atteindre la saturation. L'épaisseur critique correspond à l'épaisseur pour laquelle l'aimantation rémanente décroche de l'aimantation à saturation, vers 30nm dans notre cas. C'est aussi l'épaisseur limite en dessous de laquelle nous n'avons plus observé de domaines magnétiques en microscopie de force magnétique [Geh99]. On constate aussi une forte augmentation du champ coercitif au passage de l'épaisseur critique alors que la tendance avant et après celle-ci est à la diminution (Fig 3.1-2 bas).

### Anisotropie forte, configuration en domaines

Quand le facteur d'anisotropie est supérieur à 1, la structure en domaines est avantageuse pour toute épaisseur. Pour un facteur d'anisotropie suffisamment supérieur à 1, l'épaisseur des parois est petite devant la taille des domaines et l'épaisseur. Alors les modèles courants, [Koo60], considèrent des domaines d'aimantation parfaitement perpendiculaire séparés par des parois d'épaisseur nulle mais porteuses d'une énergie par unité de surface  $\sigma_w=4(A.K_u)^{1/2}$  dans laquelle sont rassemblées l'énergie d'échange et l'énergie d'anisotropie. En champ perpendiculaire, on peut alors écrire l'énergie par unité de volume comme la somme d'un terme de parois, d'un terme de champ démagnétisant et d'un terme de champ appliqué.

$$E = \frac{\sigma_w}{d} + \frac{1}{2} \mu_0 M_s^2 E_{dem} (d/h, m) - M_s (m.H)$$

Ici  $m = M/M_s$  est l'aimantation normalisée et  $d$  est la taille moyenne des domaines. L'expression du facteur sans dimension d'énergie démagnétisante,  $E_{dem}$  est obtenue dans une approche potentiel scalaire, en considérant la distribution alternée de « charges magnétiques » en surface. On remarque que l'énergie démagnétisante dépend du rapport d'aspect des domaines,  $d/h$  : le rapport entre taille et l'épaisseur. La taille d'équilibre et l'aimantation s'obtiennent à partir de la minimisation de l'énergie magnétique par rapport à  $d$  et  $m$ . Dans le cas des faibles rapports d'aspect ( $d/h > 1.5$ ), nous avons proposé une approximation qui conduit à une expression simple de la période d'équilibre et de la susceptibilité perpendiculaire [Geh97].

$$\ln\left(\frac{d}{h}\right) = \frac{\pi D_0}{2h} + \ln(\pi) - 1 + \mu\left(\frac{1}{2} - \ln(2)\right)$$

$$\ln(\chi_r) = \frac{\pi D_0}{2h} + \ln(4) - 1 + \mu\left(\frac{1}{2} - \ln(2)\right)$$

Où  $D_0 = 2\sigma_w/\mu_0 M_s^2$  est la longueur dipolaire et  $\mu = 1 + 1/Q$  permet d'introduire l'effet de perméabilité latérale, dit «  $\mu$  effect ». Notre expression de la taille d'équilibre est analogue à celle dérivée par Kaplan et al. [Kap93] pour  $\mu \sim 1$ , c'est-à-dire pour les très fortes anisotropies. Nous avons mesuré la taille et la susceptibilité initiale

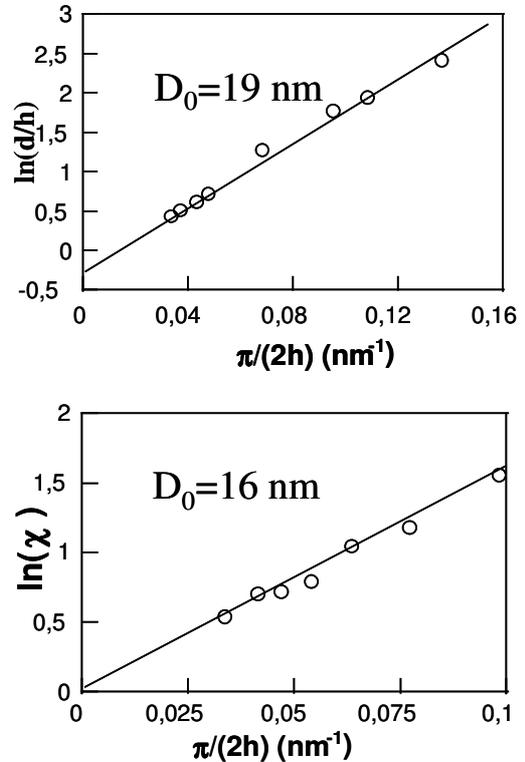


Fig. 3.1-4 : logarithme de l'épaisseur (haut) et de la susceptibilité (bas) en fonction de l'inverse de l'épaisseur. La pente de la droite d'ajustement donne la longueur dipolaire  $D_0$ .

sur un échantillon en coin d'épaisseur présentant un facteur d'anisotropie,  $Q=1.6$ , représenté par la barre grisée sur le diagramme 3.1-1. Le tracé du logarithme de ces grandeurs en fonction de l'inverse de l'épaisseur montre une dépendance linéaire, conforme au modèle proposé (Fig. 3.1-4). A partir de la pente des droites d'ajustement nous avons obtenu la longueur dipolaire,  $D_0$ . Cette donnée permet d'en déduire l'énergie de paroi. Avec la donnée du facteur d'anisotropie et des mesures d'aimantation on peut extraire la constante d'échange. Dans le même cadre d'approximation on peut aussi montrer que l'aimantation en champ perpendiculaire s'exprime de façon simple par :

$$\mathbf{m} = \frac{\mathbf{M}}{M_s} = \frac{2}{\pi} \arcsin\left(\frac{\pi}{2} \chi_r \frac{\mathbf{H}}{M_s}\right)$$

Cette expression rend bien compte de la forme des courbes d'aimantation qui présentent une accélération avant la saturation (Fig. 3.1-5). En réalité, les cycles d'hystérésis sont souvent ouverts car le mouvement des parois est retenu par des défauts présents dans les couches et il faut un champ inverse plus fort pour décrocher les parois de ces défauts. Pour approcher la courbe d'équilibre, seule prise en compte dans ce modèle énergétique, nous avons utilisé la technique de désaimantation alternative qui donne les courbes d'aimantation anhystérétiques.

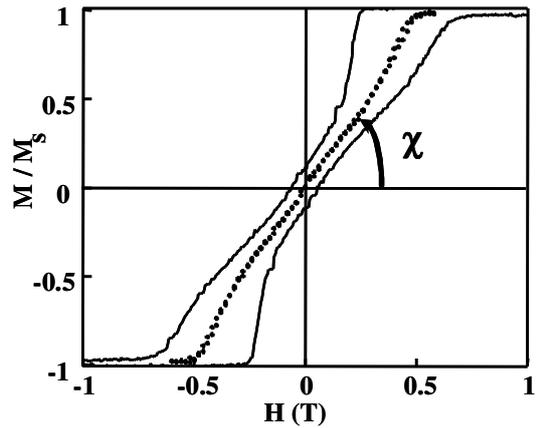


Fig. 3.1-5 : Cycle d'hystérésis en champ perpendiculaire sur une couche de FePd ( $Q=1.6$ ) de 30 nm. Les points représentent la courbe d'aimantation anhystérétique.

### Configurations magnétiques hors d'équilibre, hystérésis

Ces considérations sur les configurations d'équilibre basées sur des modèles énergétiques simples ne suffisent pas à rendre compte dans tous les cas, des configurations d'aimantation observées et des cycles d'hystérésis. Par exemple lors d'une mesure de cycle d'hystérésis, les obstacles sont nombreux qui empêchent le système de rejoindre l'équilibre, entraînant rémanence et coercitivité. Dans les couches minces, l'anisotropie conduit à l'existence d'une barrière au retournement. Il en résulte un mécanisme par propagation de parois. Ce mécanisme est conditionné par la nucléation de domaines inverses et la présence de défauts structuraux obstacles à la propagation. Nous avons pu mettre en évidence le rôle de défauts que nous connaissions bien, les micromacles sur le cycle d'hystérésis et la configuration magnétique. Les défauts structuraux (cristallins ou de forme) peuvent bloquer la propagation des parois de deux manières différentes selon le signe de l'énergie quand la paroi passe sur ce défaut. Si cette énergie est positive, la paroi reste bloquée entre les défauts ou en leur voisinage et franchit les obstacles par activation. Si l'énergie est négative, la paroi se piège dans le défaut et c'est le désancrage qui est activé thermiquement. Dans les couches minces, il existe de nombreux types de défauts que l'on peut classer par leur dimension. Parmi les défauts 1D, on pense bien sûr aux dislocations qui sont forcément présentes quand il y a une relaxation plastique lors de l'hétéroépitaxie. Mais les marches atomiques aussi peuvent jouer un rôle dans la coercitivité [Kir96] d'autant plus fort que la couche est mince. Pour les défauts 2D, il y a les joints de grains, les parois d'antiphase [Ris99], les plans de maillage. Les défauts 3D, inclusions, précipités, fréquents dans les matériaux massifs (aimants permanents) ont quelques fois été invoqués comme source de coercitivité dans les couches minces [Pra99]. Dans les couches minces où l'anisotropie perpendiculaire est d'origine magnétocristalline, les

défauts cristallins réduisent ou changent la direction de l'anisotropie pouvant conduire à une réduction de l'énergie de la paroi positionnée dans le défaut. Il s'agit donc d'un mécanisme d'ancrage. Nous allons illustrer cet effet dans le cas des couches de FePt épitaxiées.

Dans les couches minces d'alliages épitaxiés FePd et FePt, nos études structurales nous avaient montré la présence de différents types de défauts. Dislocations, micromacles et parois d'antiphase, marche mono et biatomiques. Il était donc intéressant de chercher le lien entre ces défauts identifiés et la coercitivité. L'alliage FePt dans la structure quadratique  $L1_0$ , présente une très forte anisotropie, le champ d'anisotropie est de l'ordre de 8T [Ova73]. Les variations de cette anisotropie dans les défauts doivent donc être aussi proportionnellement grandes. En effet, sur cet alliage que nous avons observé des champs coercitifs supérieurs à ceux de FePd. Sur la figure 3.1-6 on compare le cycle d'hystérésis en champ perpendiculaire d'une couche de FePt déposée sur une couche tampon de Pt à une couche FePt déposée directement sur le substrat de MgO. Dans les deux cas, l'état d'ordre et l'anisotropie sont semblables, mais seule la couche déposée sur Pt présente des micromacles. La différence des champs de début de retournement et coercitifs montre clairement la contribution importante des micromacles à la coercitivité.

Le rôle de piège joué par les micromacles est encore plus apparent avec l'imagerie de champ proche. En microscopie de force magnétique, on voit les parois orientées selon les direction cristallographiques  $\langle 110 \rangle$ , précisément celles des micromacles. Sur la figure 3.1-7, le mode de fonctionnement du microscope a été choisi pour « voir » simultanément le champ de fuite (les domaines et les parois) et la topographie (les micromacles). Les parois (contraste blanc) sont ancrées sur quelques micromacles. Pour faciliter l'identification des domaines, l'image a été faite dans un état magnétique obtenu à partir du cycle de recul pour un champ juste après le début du retournement,  $M/M_s \sim 0.76$  (étoile sur la figure 3.1-6). Les domaines retournés, n'occupent qu'une faible partie de la surface et sont séparés par de grandes zones non retournées.

Pour une image de plus grande taille, (Fig. 3.1-8) la configuration en domaines présente une allure fractale. L'aspect fractal du domaine retourné peut s'interpréter dans un modèle de percolation [Att04]. La couche peut être considérée comme un ensemble de cellules approximativement carrées séparées par les micromacles qui constituent les points de passage des parois entre les cellules. La dispersion des épaisseurs des micromacles conduit à une dispersion des énergies d'ancrage des parois et donc des champs qui rendent les micromacles

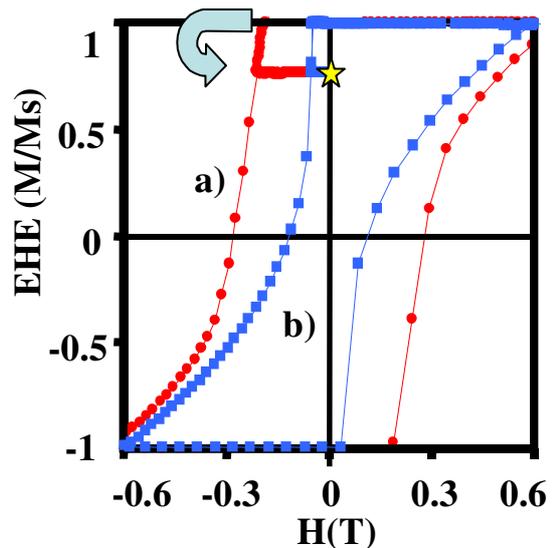


Fig. 3.1-6 : Cycles d'hystérésis en champ perpendiculaire, réalisés par effet Hall extraordinaire. a) sur une couche FePt présentant des micromacles, b) sur une couche FePt sans micromacles.

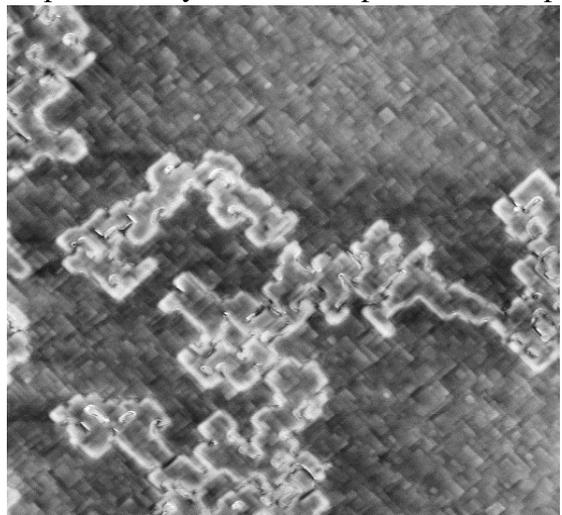


Fig. 3.1-7 : Image de champ proche réglée dans un mode mélangeant l'image topographique et magnétique. Les parois sont alignées sur les micromacles.

passantes. Si on suppose qu'il y a peu de sites de nucléation, l'aimantation ne change pas de façon significative tant qu'il n'y a pas eu percolation. La percolation des domaines retournés correspond donc au champ pour lequel l'aimantation devient différente de l'aimantation à saturation. On peut donc penser que la configuration fractale immédiatement après le début du retournement peut s'interpréter dans le cadre de la percolation. En effet la dimension fractale au seuil de percolation peut être calculée à partir des exposants critiques de la percolation et vaut en 2D,  $D_f=91/48=1.896$  [Bun91]. Cette valeur correspond bien à celle estimée par la méthode de comptage des boîtes sur plusieurs images MFM semblables à celle de la figure 3.1-8.

Les couches sur lesquelles nous avons montré le rôle des micromacles sur la coercitivité sont d'une épaisseur suffisante pour que les micromacles aient relaxé la majeure part des contraintes épitaxiales. Pour des couches de plus faible épaisseur, les micromacles sont moins larges (§2.2) et ancrent donc moins fortement les parois. Inversement pour FePt déposé directement sur MgO, la relaxation est assurée par des dislocations situées à l'interface. Elles jouent un rôle proportionnellement plus fort dans la coercitivité lorsque l'épaisseur de la couche est faible. En effet les mesures magnétiques montrent que pour des épaisseurs d'alliages de plus en plus faibles, le rapport des coercitivités des couches FePt avec et sans micromacles se réduit et même s'inverse. Ceci illustre comment des défauts de dimensionnalités différentes, les dislocations, (1D) et les micromacles, (2D) peuvent tour à tour jouer le rôle majeur dans la coercitivité quand l'épaisseur de la couche s'accroît.

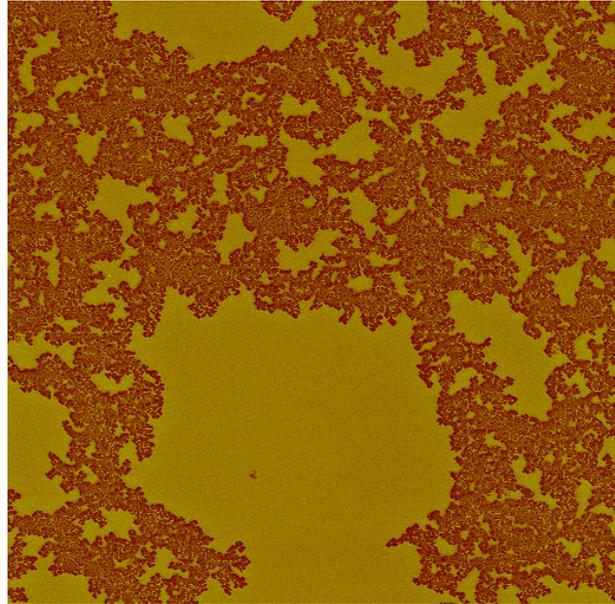


Fig 3.1-8: Image MFM (64µm) d'une couche de FePt dans l'état magnétique correspondant au début du retournement  $M/M_s=0.76$  (voir fig 3.1-6). La dimension fractale de la partie retournée (sombre) est estimée à  $D_f=1.87$ .

### 3.2 Résistance électrique de parois magnétiques

La contribution des parois magnétiques à la résistivité électrique est restée longtemps un sujet purement théorique. Parmi les premiers travaux, citons ceux présentés par Cabrera et Falicov en 1974 [Cab74], dont les calculs conduisent à l'existence d'une très faible contribution d'une paroi de Bloch à la résistance d'un échantillon ferromagnétique. En 1978, Berger [Ber78] considère que le spin de l'électron suit de très près la rotation du champ d'échange dans la paroi, celle-ci étant trop étendue pour causer une diffusion appréciable. Après la découverte de la magnétorésistance géante [Bai88], un nouvel intérêt pour les phénomènes de transport dépendant du spin est apparu. Dans ce cadre, la résistance de parois a été le sujet de nombreuses études. Levy et Zhang ont proposé le premier modèle réaliste, à partir du hamiltonien utilisé pour décrire la magnétorésistance géante [Lev97]. Dans ce modèle, l'accroissement de la résistance lié à la paroi résulte du mélange des canaux de conduction des spins provoqué par la rotation de l'aimantation. En effet, le mélange des états de spin conduit à un accroissement de la probabilité de diffusion des électrons de spin majoritaire, qui connaissent usuellement une résistivité plus faible. Ainsi, la résistivité dans la

paroi est accrue. Le modèle prédit de plus une contribution des parois à la résistance lorsque le courant se propage parallèlement à la paroi, et non seulement lorsque le courant se propage perpendiculairement à celle-ci.

Les mesures expérimentales se sont multipliées et ont conduit à une certaine confusion. Ainsi, Gregg et al. [Gre96] ont annoncé des résultats spectaculaires à partir de mesures effectuées sur des domaines magnétiques obtenus dans des couches minces de cobalt, mais il s'est avéré ensuite que l'essentiel des contributions à la résistance mesurées par ces auteurs correspondait à l'anisotropie de magnétorésistance (AMR), liée aux composantes de l'aimantation perpendiculaires aux parois [Ken99]. Ravelosona et ses collègues ont obtenu la première estimation convaincante de la contribution des parois à la résistance électrique, à partir de mesures de résistance en fonction de la température [Rav99]. Leurs résultats, compatibles avec le modèle de Levy et Zhang, ne permettaient cependant pas de séparer les deux contributions (parallèle et perpendiculaire) à la résistance, car la configuration magnétique consistait en domaines entrelacés de façon isotrope.

Dans ce contexte, nous avons pu mettre en évidence l'anisotropie de la résistance de parois en utilisant un système bien adapté : nous disposons en effet de couches de FePd déposées directement sur MgO, qui présentaient après dépôt une structure magnétique anisotrope, constituée de rubans parallèles

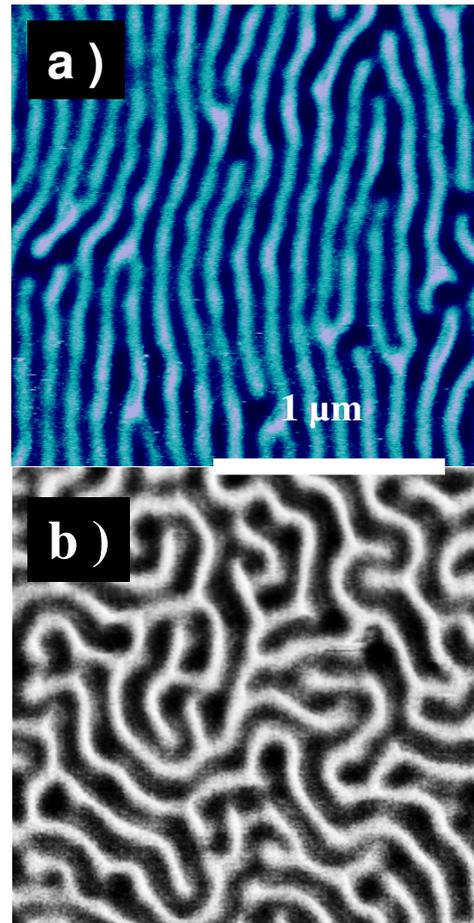


Fig. 3.2-1 : Images MFM de  $2\mu\text{m}$  de côté. a) dans l'état rémanent après la croissance, b) en champ nul après saturation perpendiculaire.

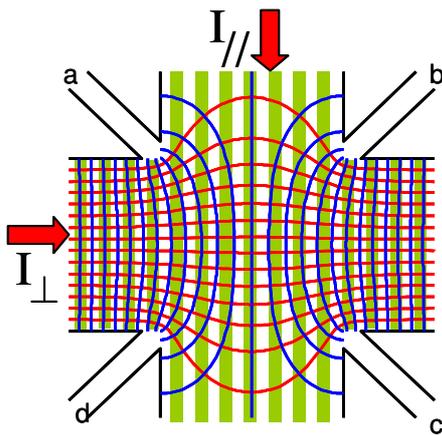


Fig. 3.2-2 : Schéma de la croix de mesure. Les bandes parallèles symbolisent les domaines. Dans l'état initial. Les contacts obliques abcd permettent les mesures de résistance et d'effet Hall. Les lignes de courant et les équipotentielles sont représentées pour la mesure perpendiculaire, leur géométrie a été calculée analytiquement en utilisant une transformation conforme.

alignés suivant l'une des deux directions équivalentes  $\langle 100 \rangle$  du substrat (Fig. 3.2-1a). La mesure de transport à basse température a été réalisée par M. Viret et P. Warin au Service de Physique de l'Etat Condensé du CEA, après avoir gravé la couche sur son substrat isolant en forme d'«Union Jack» (Fig. 3.2-2). Le courant est injecté successivement suivant l'une des deux branches principales, tandis que les quatre contacts diagonaux permettent la mesure des tensions longitudinales (résistance) et transverses (effets Hall classique et extraordinaire). La forme choisie a ainsi permis de mesurer simultanément la magnétorésistance pour un courant appliqué perpendiculairement et parallèlement aux parois, et ce pour chaque pas de champ appliqué. En effet, la configuration en rubans magnétiques alignés est perdue si on sature l'échantillon, c'est-à-dire qu'une structure entrelacée isotrope apparaît quand on revient en champ nul (Fig. 3.2-1b). Il est donc nécessaire de pouvoir mesurer les deux composantes de la résistance lors de la

première aimantation.

Compte tenu de la forme des lignes de courant qui « bavent » dans les branches principales latérales (Fig. 3.2-2) il y a un mélange des contributions parallèles et perpendiculaires. Ce mélange peut être calculé analytiquement, à l'aide d'une transformation conforme dans le plan complexe. Pour une couche d'épaisseur  $h$ , et de résistivités  $\rho_1$  et  $\rho_2$  (respectivement parallèle et perpendiculaire à la branche de courant), nous avons établi que la résistance mesurée entre les branches mineures de l'« Union Jack » s'écrit :

$$hR_1 = \frac{\sqrt{\rho_1 \rho_2}}{\pi} \text{Log} \left( \frac{\sqrt{1 + \rho_2 / \rho_1} + 1}{\sqrt{1 + \rho_2 / \rho_1} - 1} \right) \approx \frac{hR_s}{\rho_s} (0.9\rho_1 + 0.1\rho_2)$$

Le dernier terme est obtenu en utilisant un développement au premier ordre des résistivités par rapport à la résistivité de la couche sans paroi  $\rho_s$  (résistivité à la saturation). Il donne les coefficients de mélange des deux résistivités dus à la forme des lignes de courant. Une autre source de mélange provient des imperfections de l'alignement des domaines magnétiques (Fig. 3.2-1a). Nous avons également tenu compte de l'AMR, due à l'aimantation au cœur des parois quand le courant est parallèle aux rubans ( $\rho_{amr//}$ ), et dans les « chapeaux de Néel » des parois quand le courant est perpendiculaire aux rubans ( $\rho_{amr\perp}$ ). Pour les estimer, nous avons d'abord mesuré la magnétorésistance anisotrope  $\rho_{amr}$ , en saturant l'échantillon avec un champ dans le plan.  $\rho_{amr//}$  et  $\rho_{amr\perp}$  sont alors obtenues en multipliant la magnétorésistance par la moyenne du carré du cosinus de l'angle entre le courant et l'aimantation. Cette moyenne est calculée à partir d'une simulation micromagnétique de la configuration d'aimantation. Après ces corrections, nous avons pu alors établir la relation entre les résistances mesurées dans les deux configurations de courant et les contributions à la résistivité due aux parois  $\rho_{w//}$  et  $\rho_{w\perp}$  :

$$\begin{pmatrix} hR_{\perp} \\ hR_{//} \end{pmatrix} = \frac{hR_s}{\rho_s} \begin{pmatrix} 1-p & p \\ p & 1-p \end{pmatrix} \left\{ \begin{pmatrix} \rho_s \\ \rho_s \end{pmatrix} + \frac{\delta}{d} \begin{pmatrix} \rho_{w\perp} + \rho_{amr\perp} \\ \rho_{w//} + \rho_{amr//} \end{pmatrix} \right\}$$

$d=60\text{nm}$  est la taille moyenne des domaines,  $\delta=8\text{nm}$  est l'épaisseur des parois et  $p$  est le paramètre de mélange global évalué à 21% [Vir00]. Les mesures en champ perpendiculaire faites à 18K sont représentées sur la figure 3.2-3. Lors de la première aimantation, les résistances sont maximales en champ nul, c'est-à-dire dans la configuration pour laquelle la densité de parois est maximale. Ensuite, les résistances décroissent tout comme la densité de parois. La résistance perpendiculaire reste supérieure à la résistance parallèle jusqu'à la saturation : la résistivité est anisotrope. Toutes deux décroissent de plus en plus vite à l'approche de la saturation : en effet, la densité des parois décroît plus vite près de la saturation [Koo60]. Au-delà du champ de saturation ( $B_s=0.85\text{T}$ ) qui apparaît aussi sur le cycle mesuré par effet Hall extraordinaire (fig. 3.2-3b), la légère décroissance des résistances avec le champ est perceptible. Lors du retour, les résistances décollent à nouveau en dessous du champ de nucléation ( $B_n=0.6\text{T}$ ), qui correspond à l'apparition brutale d'une forte densité de parois. Cependant les deux résistances sont identiques : en effet, l'alignement des domaines est perdu après saturation (fig. 3.2-1b). A partir des résistances initiale et saturée, nous avons pu estimer les contributions relatives perpendiculaire et parallèle à la résistivité au sein de la paroi. Elles valent respectivement 8.2% et 1.3%.

Au sein de la paroi, le gradient de la direction d'aimantation conduit à un terme supplémentaire dans le potentiel de diffusion des électrons. Ce terme induit un mélange des canaux de spins, ce qui conduit à un accroissement de la résistivité car les porteurs de spins majoritaires sont habituellement moins diffusés dans un échantillon ferromagnétique. Cet effet est observé seulement s'il existe au départ une asymétrie dans la diffusion pour les deux états de spin, Levy et al. [Lev97] obtiennent ainsi

$$\frac{\rho_{\perp}}{\rho_{\parallel}} = 3 + \frac{10 \cdot \sqrt{\rho_{\uparrow} \cdot \rho_{\downarrow}}}{\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow}}$$

Avec nos résultats expérimentaux, nous obtenons un rapport,  $\rho_{\uparrow}/\rho_{\downarrow} \approx 10$ , comparable à l'ordre de grandeur observé dans divers métaux ou alliages ferromagnétiques. De plus, des calculs de structure de bande effectués au Service de Physique de l'Etat Condensé du CEA indiquent une différence d'un ordre de grandeur environ entre les densités d'état de spins « up » et « down » au niveau de Fermi, ce qui est tout à fait cohérent avec le rapport des résistivités que nous avons pu évaluer.

Ces mesures montraient la contribution globale d'une assemblée de parois parallèles à la résistance électrique. Par la suite nous avons pu mesurer l'effet individuel des parois dans une structure gravée de taille submicronique [Dan02]. Une partie des résultats est illustrée dans la figure 3.2-4. Une structure en forme de double croix est gravée dans une couche de FePd/MgO. La structure est constituée d'une ligne de 400nm de large, avec des contacts latéraux pour la mesure de résistance. Lors de la gravure, la structure en domaines magnétiques alignés est préservée (insert fig. 3.2-4). Lors de la première aimantation, la résistance reste constante jusqu'à vers 0.4 T, puis elle diminue par sauts pour ensuite rester constante au delà de 0.5T. Il y a deux types de sauts. Trois d'entre eux sont de hauteur « double » ; nous les avons attribués au retournement de chacun des trois domaines « up » visibles entre les 2 croix. Le retournement d'un domaine entraîne la disparition de deux parois. Les autres sauts, de hauteur approximativement moitié sont attribués au retournement de domaines dans l'une des croix. En effet la contribution à la mesure de résistance d'une paroi dépend de sa position. Dans la zone située entre les croix, elle est maximale, mais dans les croix elle diminue progressivement pour tendre vers 0 à l'extérieur. Le retournement d'un domaine situé au sein d'une croix donne ainsi des sauts de résistance de hauteur approximativement moitié moindre. Lors du cycle retour, la résistance reste constante jusqu'à 0.2 T, avant que la réapparition de domaines ne donne lieu à une augmentation de résistance par sauts.

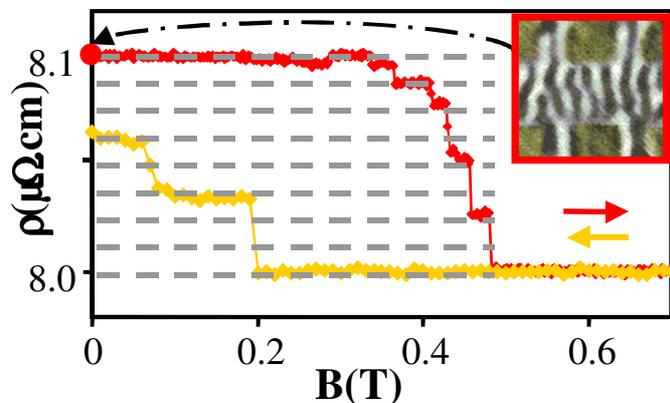


Fig. 3.2-4 : Variation de la résistance en fonction du champ, première aimantation et retour. L'image MFM correspond à l'état initial. Les lignes en tirés mettent en valeur la présence de 2 hauteurs typique de sauts.

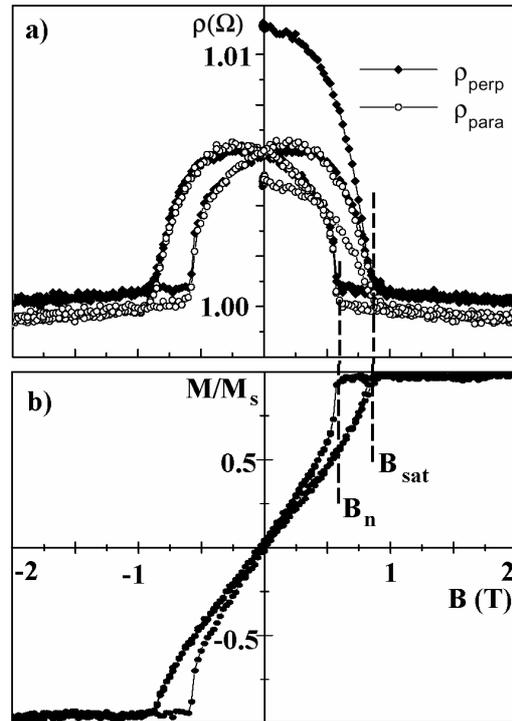


Fig. 3.2-3 : a) évolution des résistances parallèle et perpendiculaire aux parois en champ perpendiculaire. b) cycle d'hystérésis normalisé correspondant.

Lors du cycle retour, la résistance reste constante jusqu'à 0.2 T, avant que la réapparition de domaines ne donne lieu à une augmentation de résistance par sauts. La valeur des sauts de résistance est tout à fait compatible avec les estimations précédentes de la résistivité de paroi. Pour conclure, soulignons que la mesure de résistance de parois permet de mesurer la densité de paroi. Elle constitue une technique complémentaire aux mesures de magnéto-transport classiques, comme l'effet Hall extraordinaire qui permet de mesurer l'aimantation



perpendiculaire. Comme toute mesure de transport, elle permet en outre d'envisager des études de dynamique rapide.

### ***3.3 Propagation de parois dans un réseau de micromacles***

Dans les dernières décennies, l'étude de la propagation de parois a bénéficié du développement des méthodes de fabrication (dépôt de couches minces, objets nanométriques) et des méthodes de mesures (mesures de transport, techniques d'imagerie, etc...). Ces techniques expérimentales permettent maintenant d'étudier et de mieux appréhender les mécanismes microscopiques qui gouvernent les propriétés des matériaux magnétiques, coercitivité, comportement dynamique, etc.

Les cycles d'hystérésis des matériaux ferromagnétiques mesurés à l'échelle macroscopique sont généralement continus. En réalité à une échelle sub-micronique, dans le régime thermodynamiquement activé, la présence de défauts rend le mouvement de parois discontinu : l'aimantation varie par sauts rapides des parois entre les défauts. Ces sauts sont appelés sauts de Barkhausen. Ils se manifestent dans les mesures de traînage magnétique thermiquement activé. Dans les matériaux massifs, ils peuvent être mis en évidence par effet inductif. Mais dans les couches minces, le signal beaucoup plus faible rend la mesure des sauts de Barkhausen plus délicate. Diverses méthodes ont été récemment présentées, pour les étudier.

Par exemple, Cowburn et al. [Cow98] ont réalisé des mesures magnéto-optiques de traînage sur des couches minces à aimantation planaire de Fe/Ag(001) (~10 monocouches). A partir de la réponse à des créneaux de champ très brefs (~10 ns) et de faible intensité, ils mettent en évidence l'existence de sites de piégeage faibles mais denses, et de sites de piégeage forts, distants d'environ 10  $\mu\text{m}$ , à l'origine des sauts de Barkhausen observés. Don-Hyun-Kim et al. [Don03] ont observé par microscopie magnéto-optique les sauts de Barkhausen de parois dans des couches de cobalt (25nm) pour un champ proche du champ coercitif. Ils montrent que l'amplitude des sauts et l'intervalle de temps séparant deux sauts sont distribués selon une loi de puissance. L'aire des plus petits déplacements de la paroi entre deux points d'ancrage est de l'ordre de 60  $\mu\text{m}^2$ . Novoselok et al. [Nov02] ont utilisé une croix de Hall semiconductrice déposée au-dessus d'un film à anisotropie perpendiculaire (grenats), afin d'étudier la propagation d'une paroi unique. Ce dispositif possède une très grande sensibilité : d'après les auteurs, le seuil de sensibilité atteint 0.1 nm pour une paroi se déplaçant uniformément sur toute la largeur de la croix (0,4-2  $\mu\text{m}$  de large). L'aimantation avec le champ variant lentement laisse apparaître des paliers correspondant à l'ancrage sur des défauts non identifiés. A basse température, deux croix voisines, montrent aussi une corrélation des sauts de Barkhausen, ce qui indique une propagation cohérente de la paroi sur de grandes distances (9  $\mu\text{m}$ ). Mais ces auteurs ne proposent pas de lien entre la microstructure de leurs échantillons et leurs observations.

Pour mieux contrôler le rôle du défaut et s'assurer de son unicité, certains auteurs ont créé artificiellement un défaut par les techniques lithographiques ou de croissance, dans des dispositifs nanométriques, et ont étudié l'ancrage d'une paroi sur ce défaut unique. La mesure est le plus souvent faite dans une piste entre 2 croix de Hall, éventuellement complétée par des observations de magnéto-optique qui permettent d'observer plus directement le piégeage de la paroi. Avec ce type de dispositif, Wunderlich et al. [Wun01] ont étudié le piégeage d'une paroi quittant une bande lithographiée et pénétrant dans une zone plus large (le centre d'une croix de Hall). Les auteurs montrent que les variations du temps de piégeage sur le défaut en fonction du champ appliqué suivent une loi exponentielle d'activation thermique. Notons que ce temps de passage semble reproductible d'une mesure à l'autre.

A notre connaissance, seuls Mangin et al. [Man99] ont mesuré le caractère statistique du temps de relaxation associé au franchissement d'un défaut par une paroi. Les auteurs ont réalisé une étude très élégante de la dynamique de propagation de parois à  $180^\circ$  dans un empilement tricouche. Le mouvement des parois se fait perpendiculairement à la multicouche. Les parois sont piégées par la couche intermédiaire qui possède une forte anisotropie. Ce défaut est étendu, mais unique. Ils ont étudié la relaxation de l'aimantation et montré qu'elle pouvait être ajustée par une loi exponentielle avec un seul temps de relaxation. Notons qu'ils n'ont pas étudié cette statistique en renouvelant un certain nombre de fois le franchissement d'un seul défaut : la statistique obtenue est basée sur la mesure collective d'une assemblée de parois supposées indépendantes franchissant une assemblée de défauts identiques.

Les mesures de cycles d'hystérésis et de MFM sur les couches de FePt épitaxiés nous avaient montré que les micromacles piègeaient les parois. Nous avons alors entrepris d'étudier le piégeage des parois sur un nombre réduit de tels défauts, en collaboration avec D. Ravelosona et al. (IEF-Orsay). Pour cela, un dispositif de taille submicronique a été réalisé par lithographie et gravure (Fig. 3.3-1c). Il est constitué d'une ligne centrale de 200nm de large comprise entre deux croix de Hall. Les mesures d'effet Hall extraordinaire dans les croix montrent des sauts de Barkhausen sur les cycles d'hystérésis (Fig. 3.3-1b). Ces sauts sont attribués au retournement de cellules d'aimantation encadrées par les micromacles lorsque la paroi qui délimite le domaine d'aimantation retournée saute d'une micromacle à sa voisine. Les sauts sont visibles parce que le nombre de défauts piègeants et de cellules n'est pas trop grand dans la zone de mesure. Cependant, pour interpréter la distribution des hauteurs de sauts, la distribution des aires des cellules ne suffit pas : il faut en effet tenir compte de l'étalement de la fonction de sensibilité de la mesure de Hall dans les branches de la croix. Cette fonction est maximale près des coins de la croix et décroît dans les branches de courant et de tension. Avec cette précaution, et en considérant conformément aux observations AFM que le réseau de micromacles forme des cellules carrées d'environ 70nm, nous avons pu rendre compte de la distribution des amplitudes de sauts [Att03].

Après ces mesures sur les croix individuelles mettant en évidence les sauts de Barkhausen, nous avons étudié la propagation de parois dans la ligne séparant les deux croix. L'échantillon est d'abord saturé, puis une marche de champ inverse est appliquée. L'intervalle de temps entre les retournements successifs de l'aimantation dans les deux croix permet de mesurer le temps de propagation de la paroi dans la ligne. Des mesures répétées et nombreuses ont montré que ce temps de propagation était aléatoire.

Les fonctions de répartition de ce temps, mesurées pour plusieurs champs appliqués et températures (Fig. 3.3-2) présentent une courbure toujours négative dans l'échelle de temps

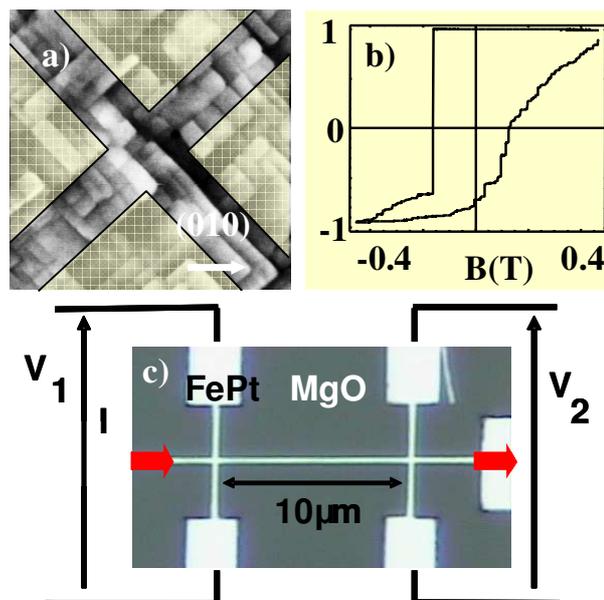


Fig. 3.3-1: Matériaux et dispositif de mesure pour la propagation de parois. a) Image AFM de la surface micromaclée de FePt, les zones semi-transparentes donnent l'échelle des croix (200nm de large). b) cycle mineur mesuré dans une croix par effet Hall extraordinaire. c) Image optique du dispositif de mesure. Une couche de FePt(40nm) déposée sur MgO a été gravée en forme de double croix. Le courant circule dans la ligne centrale, les tensions de Hall  $V_1$  et  $V_2$  mesurent le retournement de l'aimantation dans les croix et donc le passage de la paroi.

qui nous est accessible. Par conséquent, la probabilité de passage décroît avec le temps. Dans le cadre d'un modèle de franchissement de barrière activé sans retour en arrière, cela signifie qu'une barrière domine dans le mécanisme de propagation. En effet si la paroi rencontrait N barrières en série avec des temps caractéristiques comparables, la fonction de répartition présenterait une courbure positive à son début. Si nous appelons  $n_i(t)$  la probabilité de l'état pour lequel la paroi a passé i barrières en série, et  $\tau_i$  les temps caractéristiques des barrières, les équations cinétiques peuvent s'écrire :

$$\frac{\delta n_i}{\delta t} = -\frac{n_i}{\tau_{i+1}} + \frac{n_{i-1}}{\tau_i}$$

avec  $\frac{\delta n_0}{\delta t} = -\frac{n_0}{\tau_1}$  et  $\frac{\delta n_N}{\delta t} = \frac{n_{N-1}}{\tau_N}$

La fonction de répartition mesurée correspond au passage de la dernière barrière,  $F(t)=n_N(t)$ . A l'instant initial, nous avons  $n_0=1$  et tous les autres  $n_i$  sont nuls. Il est alors clair que si plusieurs barrières sont en série ( $N>1$ ), la vitesse  $\delta n_N/\delta t$  est nulle à l'instant initial. Par conséquent, il est nécessaire que l'accélération soit positive quelques temps pour atteindre sa valeur finale. Nous n'observons pas de courbure positive sur les fonctions de répartition. Il faut donc en conclure qu'une barrière domine le mécanisme de propagation. Avec une barrière unique et donc un seul temps caractéristique, on attend une fonction de répartition exponentielle de la forme  $F(t)=1-\exp(-t/\tau)$ . C'est l'allure générale des courbes sur la figure 3.3-2, pour les mesures à 300K. Mais si nous observons ces courbes de plus près, en particulier celles obtenues à 200K, il semble qu'après un début à l'allure exponentielle, il reste des événements aux temps longs trop nombreux pour être reproduits par la simple forme exponentielle.

Pour rendre compte de ce fait nous allons faire l'hypothèse que la paroi peut se présenter de plusieurs façons à la barrière dominante, et que ces différentes approches conduisent à des temps de passage très différents. Le schéma (Fig. 3.3-3) illustre cette idée. La paroi dans l'état 1 peut passer directement dans l'état 3 avec un temps caractéristique  $\tau_{13}$  assez court. Elle peut aussi passer par l'état 2 avec un temps caractéristique  $\tau_{12}$ , puis à partir de cet état mettre plus de temps à passer dans l'état 3, avec un temps caractéristique  $\tau_{23}$ . Nous attribuerons cet allongement du temps de passage au changement de signe du champ démagnétisant exercée par la cellule retournée dans l'état 2 sur la micromacle, qui relève ainsi la hauteur de la barrière 2-3. L'équation d'évolution des probabilités des états peut alors s'écrire :  $\delta n_i/\delta t=M_{ij} n_j$ , (somme sur j), où  $M_{ij}$  est générateur de la transition de ce processus markovien :

$$M_{ij} = \begin{pmatrix} -(1/\tau_{12} + 1/\tau_{13}) & 0 & 0 \\ 1/\tau_{12} & -1/\tau_{23} & 0 \\ 1/\tau_{13} & 1/\tau_{23} & 0 \end{pmatrix}$$

L'équation d'évolution est linéaire et peut se résoudre aisément à l'aide de l'exponentielle de matrice. Nous obtenons finalement pour la fonction de répartition des temps de passage :

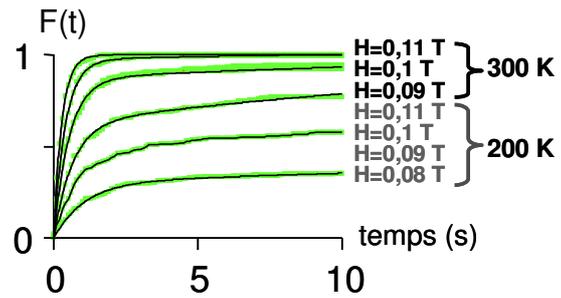


Fig 3.3-2: Fonction de répartition des temps de propagation pour différentes valeurs de la température et du champ. Les courbes continues en noir correspondent à l'ajustement par l'équation 3.3-1. La figure ne représente que le 10 premières secondes mais les mesures ont été faites jusqu'à 300s

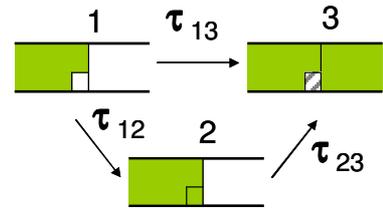


Fig.3.3-3: schéma des 3 états et des transitions du modèle.

$$F(t) = n_3(t) = \exp[tM]_{31} = 1 - (1-r) \cdot \exp[-t(1/\tau_{12} + 1/\tau_{13})] - r \cdot \exp[-t/\tau_{23}] \quad (3.3-1)$$

où,  $r = \frac{1/\tau_{12}}{1/\tau_{12} + 1/\tau_{13} - 1/\tau_{23}}$  est la contribution de l'exponentielle en temps long.

Si le passage de la paroi était indépendant de son état dans le défaut, le temps  $\tau_{23}$  devrait être inférieur à  $\tau_{13}$ , car à partir de l'état 2 la paroi dispose d'une voie de passage supplémentaire : celle venant de la cellule retournée dans l'état 2 avec le temps caractéristique  $\tau_{cell}$ . Plus précisément, nous pourrions écrire  $1/\tau_{23} = 1/\tau_{13} + 1/\tau_{cell}$ . L'ajustement des fonctions de répartition à partir de l'équation (eq. 3.3-1) montre au contraire que le temps  $\tau_{23}$  est bien plus long que le temps  $\tau_{13}$  (table 3.3-1). Il faut donc en conclure que l'état de la paroi dans le défaut conditionne la cadence de passage. Même si le temps de passage direct,  $\tau_{13}$  a été estimé à partir de ce modèle hypothétique, nous pouvons avoir une relative confiance dans la valeur obtenue car sa valeur est liée aux temps les plus courts pour lesquels le passage direct domine largement.  $\tau_{13}$  dépend de la température et du champ, le tracé en échelle logarithmique (Fig. 3.3-4) montre le caractère thermiquement activé du franchissement direct de la barrière. Il permet d'estimer un volume d'activation,  $V_B$  et une énergie de barrière  $E$  selon l'expression :

T (K)	H (T)	$\tau_{13}$ (s)	$\tau_{12}$ (s)	$\tau_{23}$ (s)
300	0.09	0.73	16	730
	0.10	0.43	73	200
	0.11	0.27	10	1
200	0.08	5.2	3.2	7300
	0.09	2.9	4.7	3000
	0.10	1.6	5.8	1800
	0.11	0.7	11	1200

Table 3.3-1 Temps caractéristiques obtenus par l'ajustement des fonctions de répartition selon l'équation 3.3-1.

$$\ln[1/\tau_{13}] = \ln[v_0] - \frac{E - 2HV_B M_s}{kT}$$

Le volume de Barkhausen estimé,  $V_B$  est de l'ordre de  $10^{-25} m^3$ , ce qui correspondrait à un cube de 5nm de côté. Ce volume est petit par rapport à l'étendue de la micromacle qui constitue la barrière. En effet, si la paroi se décrochait en bloc d'une micromacle d'aire  $\sim 70nm \times 40nm$ , le déplacement serait de l'ordre de 0.05nm. Ceci est insuffisant pour la sortir du puits de potentiel qui l'ancre à la micromacle. Il faut donc envisager que le décrochement de la paroi se fasse sur une petite partie de la micromacle, peut être sur les bords. Si maintenant nous comparons les temps  $\tau_{23}$  et  $\tau_{13}$ , nous remarquons que leur rapport est grossièrement de l'ordre de  $10^3$  pour les mesures à 200K. Avec la donnée du volume d'activation évaluée plus haut, nous pouvons estimer la contribution au champ démagnétisant  $\Delta H_{dem}$  de la cellule retournée dans l'état 2 sur la barrière à partir de l'expression:

$$\ln[\tau_{23}/\tau_{13}] = \frac{4\Delta H_{dem} V_B M_s}{kT}$$

Le retournement de la cellule conduit au changement de champ démagnétisant de l'ordre de  $2\Delta H_{dem} \sim 0.1T$ . Cette valeur bien plus petite que le champ démagnétisant de la couche saturée ( $\mu_0 M_s$ , de l'ordre du Tesla), paraît tout à fait acceptable compte tenu de la géométrie du dispositif.

Ces résultats très novateurs nous ont permis de mettre en évidence l'existence de sauts de Barkhausen, d'étudier un mécanisme de propagation de parois magnétiques et de le relier à la microstructure du matériau utilisé. Ce travail est le précurseur d'une activité appelée à se

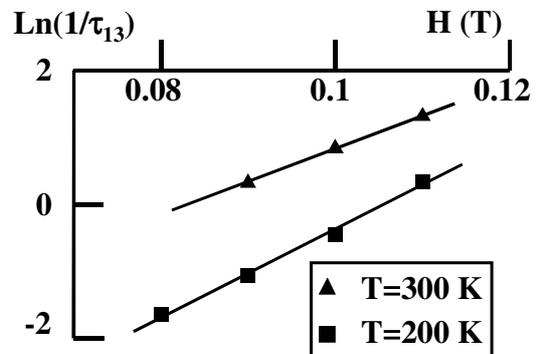


Fig. 3.3-4: logarithme de la fréquence de passage en fonction du champ appliqué. Les lignes correspondent aux régressions linéaires.

développer au sein du laboratoire, portant sur de nouveaux systèmes dans lesquels les mécanismes de la dynamique de l'aimantation font intervenir les fluctuations et les probabilités.

### 3.4 Résonance ferromagnétique dans les couches minces FePd

De très nombreux travaux théoriques et expérimentaux ont été dédiés depuis une cinquantaine d'années à l'étude des excitations magnétiques de faible amplitude apparaissant dans des matériaux possédant une aimantation uniforme. Par contre, la dynamique de l'aimantation dans des systèmes magnétiques à aimantation non uniforme est un sujet d'étude beaucoup plus récent dont l'intérêt s'est accru au cours de ces dernières années. Un exemple idéal de structures magnétiques non uniformes est constitué par les variations spatiales régulières de l'aimantation que sont les domaines et les parois apparaissant au sein des couches minces magnétiques à anisotropie perpendiculaire. En particulier, les couches ferromagnétiques à faible anisotropie perpendiculaire que nous savons élaborer et contrôler par l'état d'ordre chimique présentent une caractéristique remarquable : l'apparition au-dessus d'une épaisseur critique d'une configuration magnétique périodique formée de rubans parallèles (configuration dite en rubans faibles).

#### Mesures et premières interprétations

Nous avons préparé par épitaxie par jets moléculaires une couche mince de FePd de 50nm par la méthode couche atomique par couche atomique (§1.1). L'état d'ordre partiel de cette couche conduit à un facteur d'anisotropie faible,  $Q=0.4$ , que nous avons déterminé par magnétométrie. Les mesures de Résonance Ferro Magnétique (RFM) dans l'état non saturé ont été faites par J. Ben Youssef [Ben99, Vuk00] en utilisant une cellule d'excitation large bande (6-18 GHz). Le champ polarisant est appliqué dans le plan de l'échantillon le long des rubans magnétiques. Dans cette situation, la courbe d'aimantation planaire présente très peu d'hystérésis, (Fig. 3.1-3). La configuration magnétique de l'échantillon présente une ondulation de l'aimantation hors du plan dont l'amplitude diminue continûment quand le champ planaire croît et s'annule à la saturation. Les mesures ont été faites en balayant le champ appliqué à plusieurs fréquences. On observe 3 résonances sur l'ensemble de la plage de fréquence (Fig. 3.4-1). Les premières tentatives d'interprétation avec les modèles analytiques ne suffisent pas. En effet, les modèles de résonance de domaines magnétiques [Smi55] n'expliquent

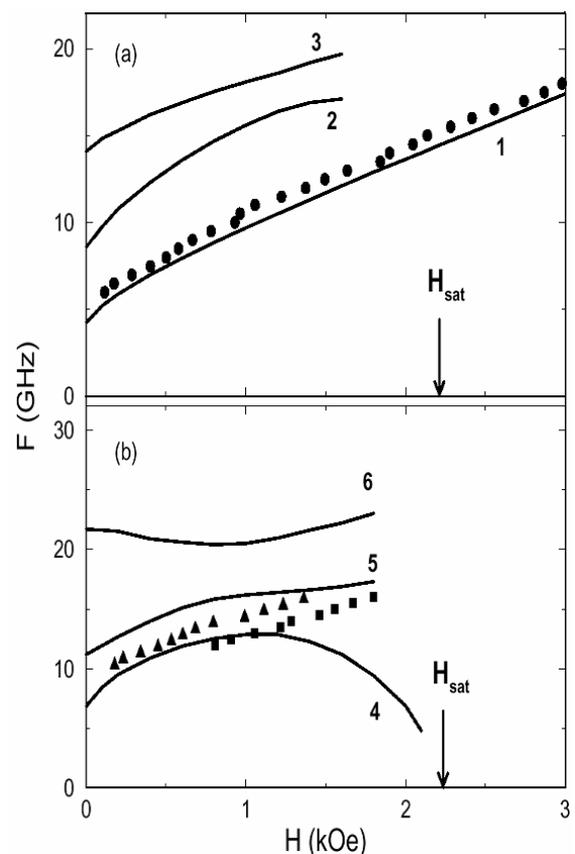


Fig. 3.4-1 Evolution théorique (traits continus) et expérimentale (points, triangles et carrés) des fréquences de résonance en fonction de l'amplitude du champ magnétique appliqué dans le plan le long des rubans. (a) excitation perpendiculaire, (b) excitation le long des rubans.

que qualitativement 2 des 3 résonances, [Vuk03] et les approches par des modèles de résonance de parois ou d'ondes de spins stationnaires semblent ne pas être suffisantes pour expliquer la troisième résonance.

### Modélisation numérique

Une modélisation de la réponse dynamique nécessite la prise en compte de l'aspect non uniforme des configurations d'aimantation et conduit à une approche numérique. La réponse dynamique de l'aimantation se calcule à partir de l'équation de Landau-Lifschitz-Gilbert (LLG) qui est l'équation dynamique du micromagnétisme couramment utilisée :

$$\frac{d\vec{m}}{dt} = -\gamma\mu_0\vec{m} \times (\vec{H}_{eff} + \alpha.\vec{m} \times \vec{H}_{eff})$$

où  $\vec{m}$  est le vecteur unitaire de l'aimantation. Le champ effectif,  $\vec{H}_{eff}$  est la somme des champs agissant sur les moments magnétiques : champ appliqué, champ d'anisotropie, champ d'échange et champ démagnétisant. On peut l'exprimer comme la dérivée fonctionnelle de l'énergie magnétique par rapport à l'aimantation.  $\alpha$  est le coefficient d'amortissement. Ce coefficient phénoménologique mal connu recouvre l'ensemble des mécanismes d'amortissement. Nous avons pris une valeur uniforme et constante de l'ordre de 0.02 compatible avec nos résultats expérimentaux dans l'état saturé [Vuk00].

La réponse dynamique d'une configuration d'aimantation dans le régime des faibles excitations peut être calculée en utilisant soit une approche harmonique soit une approche temporelle. Avec la première méthode, l'équation dynamique de l'aimantation est linéarisée autour de l'état d'équilibre. En considérant une dépendance harmonique du champ exciteur, la susceptibilité dynamique est alors obtenue par résolution d'un système linéaire dense et complexe. Cette approche considérée par S. Labbé [Lab99] pour calculer le spectre de particules tridimensionnelles a été utilisée par N. Vukadinovic [Vuk00bis] pour calculer les spectres de susceptibilité et les modes résonnants dans les couches de FePd [Vuk02]. Il a montré l'intérêt de cette approche pour interpréter les résultats des mesures, (lignes continues fig. 3.4-1). La seconde méthode proposée par O. Gérardin [Ger01] dans le cas de rubans et plots nanométriques, consiste à soumettre l'échantillon (numérique) à une excitation temporelle de faible amplitude, à intégrer directement l'équation dynamique puis, à obtenir le spectre de susceptibilité dynamique à partir du rapport des transformées de Fourier de la réponse temporelle et de l'excitation. Nous l'avons mise en œuvre dans notre cas. Cette dernière technique permet d'obtenir facilement les spectres à l'aide de codes de micromagnétisme existants. Nous avons utilisé le code GL\_FFT développé par J.C. Toussaint [Tou96] dans sa version 2D qui compte tenu de la symétrie de translation de long des rubans magnétiques est suffisante. Après avoir calculé la configuration d'équilibre,  $\mathbf{m}_{eq}(r)$  en champ statique, (Fig. 3.4-2a), une excitation uniforme de faible amplitude  $\Delta h(t)\mathbf{u}_i$  selon l'axe  $i$  est ajoutée au champ statique pour calculer la réponse temporelle de l'aimantation,  $\Delta\mathbf{m}(t,\mathbf{u}_i)$ . Deux types d'excitations ont été testées et validées.

*i) une excitation constante à partir du temps 0.* La susceptibilité s'obtient à partir du rapport des transformées Fourier de la réponse,  $\Delta\mathbf{m}(t,\mathbf{u}_i)$  et de la transformée de Fourier de la fonction marche unité, ce qui donne :

$$\chi_{ij}(\omega) = \frac{\Delta\mathbf{m}(\infty, \mathbf{u}_i) \cdot \mathbf{u}_j}{\Delta h} - \frac{i\omega}{\Delta h_0} \int_0^{\infty} \Delta\mathbf{m}(t, \mathbf{u}_i) \cdot \mathbf{u}_j e^{i\omega t} dt$$

ii) Une excitation impulsionnelle à l'instant  $t=0$ ,  $\Delta h \delta(t) \mathbf{u}_i$ . La réponse à cette excitation requiert le calcul de l'aimantation,  $\mathbf{m}(r,0^+)$  ayant subi l'impulsion au temps  $t=0$ .  $\mathbf{m}(r,0^+)$  peut se calculer par l'intégration pour un temps unité de l'équation LLG en ne considérant que le champ  $\Delta h \cdot \mathbf{u}_i$ . En effet, sur une durée infinitésimale, le champ  $\Delta h \cdot \delta(t)$  domine infiniment  $H_{\text{eff}}$ . Pour ce problème, la solution exacte existe [Kev98] et est assez facile à mettre en œuvre. Pour rester dans le domaine des faibles excitations, il faut simplement ajuster  $\Delta h$  de sorte que nulle part l'aimantation n'ait effectué une trop grande rotation. La susceptibilité est alors directement donnée par la transformée de Fourier de la réponse.

$$\chi_{ij}(\omega) = -\frac{1}{\Delta h} \int_0^{\infty} \Delta \mathbf{m}(t, \mathbf{u}_i) \cdot \mathbf{u}_j e^{i\omega t} dt$$

Le spectre de la susceptibilité est calculé à partir de la réponse moyenne du système, il permet de repérer les résonances, (Fig. 3.4-2c). Les modes résonnants peuvent aussi être obtenus par une sommation de Fourier en chaque noeud du maillage à la fréquence considérée, (Fig. 3.4-2b). Dans le code GL\_FFT, le champ d'échange est calculé par différence finie et le champ démagnétisant à l'aide de la transformée de Fourier rapide ce qui impose un maillage à pas constant. L'équation d'évolution est résolue par une méthode explicite avec un pas de temps maximal inversement proportionnel à l'amortissement. Le calcul de l'équilibre et de la dynamique de la relaxation a été effectué avec une boîte de  $N=64 \times 32$  noeuds. Les résultats obtenus sont identiques à ceux obtenus avec la méthode harmonique. L'intérêt de la méthode temporelle réside dans sa facilité de mise en œuvre quand on dispose d'un code de micromagnétisme, mais aussi dans la croissance en  $N^2 \ln(N)$  du nombre d'opérations. Pour la méthode harmonique une résolution par la méthode de Gauss du système linéaire dense conduit à une croissance en  $N^3$  et le calcul doit être répété à toutes les fréquences.

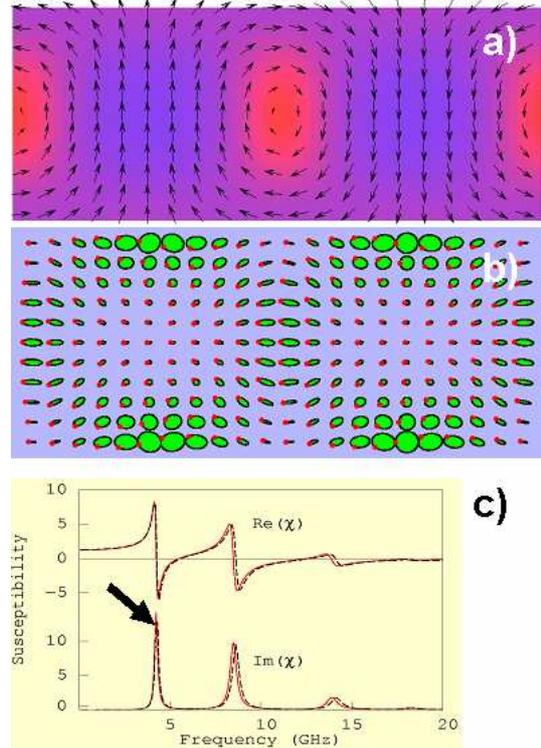


Fig. 3.4-2: simulation micromagnétique de la résonance ferromagnétique par la méthode temporelle pour une couche de FePd de 40nm ayant un facteur d'anisotropie de 0.36 a) configuration d'équilibre b) représentation d'un mode résonnant à 4.25GHz (flèche sur le spectre), les ellipses donnent l'allure des trajectoires du vecteur aimantation dans le plan perpendiculaire localement à l'aimantation d'équilibre (agrandie) c) spectre de la susceptibilité  $\chi_{yy}$  (courbes continue) comparé au calcul par la méthode harmonique (pointillés).

### 3.5 Diffraction magnétique de domaines

Pour caractériser les structures en domaines des couches magnétiques, nous avons fait largement appel à la technique récente issue des techniques de champ proche, la microscopie de force magnétique. Cette technique souffre néanmoins de certains handicaps. Elle n'est sensible qu'au champ de fuite au dessus de l'échantillon, ce qui limite intrinsèquement la résolution. Il est difficile d'effectuer des mesures sous sollicitations : température, champ magnétique, etc... La rapidité des mesures est limitée par le fait qu'il s'agit d'une acquisition par balayage ce qui limite pratiquement les études de cinétique et à fortiori de dynamique.

Enfin, l'influence de la pointe sur l'objet observé doit être prise en compte. Quand on dispose d'objets périodiques, c'est le cas des domaines magnétiques alignés de FePd, il est tentant de se tourner vers les techniques de diffraction. C'est ce que nous avons fait grâce aux possibilités offertes par les sources de neutrons et de rayons-X qui dans certaines conditions sont sensibles au magnétisme.

### Diffusion de neutrons :

Nous avons commencé par une première mesure avec les neutrons qui sont fortement sensibles à l'induction magnétique. Les expériences ont été réalisées au Laboratoire Léon Brillouin en collaboration avec H. Glattli, F. Ott et C. Fermon sur le réflectomètre PAPOL équipé d'un détecteur bidimensionnel. La figure 3.5-1 schématise la géométrie adoptée. Les neutrons monochromatiques ( $\lambda=0.4\text{nm}$ ) arrivent en incidence rasante sur l'échantillon. Ce dernier est constitué d'une couche magnétique de FePd de 50nm d'épaisseur avec des domaines magnétiques périodiques. Il est orienté de sorte que les domaines magnétiques soient dans le plan d'incidence du faisceau de neutrons. Les neutrons diffusés sont comptés dans un détecteur 2D de 128X128 éléments. Au centre du détecteur on peut voir un pic d'intensité associé à la réflexion spéculaire sur la surface. De part et d'autre de celui-ci, les deux pics satellites sont associés à la diffraction sur le réseau de domaines magnétiques. La période évaluée à partir des positions des satellites correspond parfaitement à la détermination à partir des images MFM. On peut voir au bas de la figure trois autres taches, il s'agit du faisceau transmis et des satellites magnétiques correspondants. L'utilisation des neutrons présente plusieurs intérêts. Tout d'abord, la section efficace magnétique est bien connue, ensuite leur faible interaction avec la matière permet d'envisager divers dispositifs autour de l'échantillon (fours, enceintes). Cependant, même si l'interaction magnétique est du même ordre de grandeur que la section efficace nucléaire, elle reste faible et surtout le flux de neutrons utiles est largement inférieur à celui de photons accessibles sur une expérience semblable auprès d'un synchrotron.

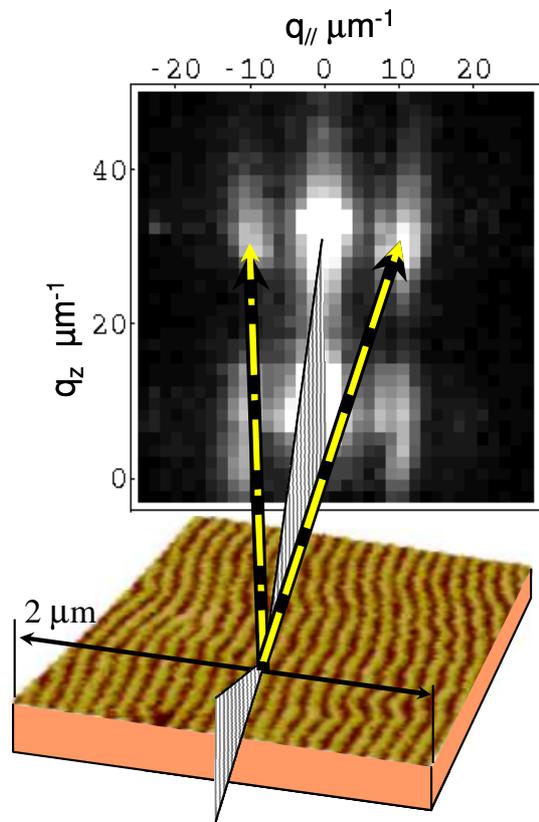


Fig 3.5-1 : schéma représentant la diffraction magnétique de neutrons sur un réseau de domaines magnétiques alignés. La tache centrale correspond à la réflexion spéculaire, les deux taches latérales sont les satellites magnétiques.

### Diffraction magnétique de rayons X mous

C'est pourquoi, en collaboration avec l'équipe de M. Belakhovsky (Cea/SP2M) et l'équipe de G. van der Laan du Daresbury Laboratory (RU) nous avons entrepris de mesurer la diffraction magnétique des domaines avec des rayons X mous. Très tôt l'interaction entre les photons et les moments magnétiques a été envisagée [Kle29], bien plus tard, Platzman et al. [Pla70] prévoient la possibilité d'observer des pics de diffraction magnétique dans les



matériaux antiferromagnétiques. Peu après F. de Bergevin et al. [Ber72] valident cette théorie avec une source de laboratoire sur un monocristal de NiO. Cependant, l'intensité des pics magnétiques est  $4 \cdot 10^{-8}$  fois plus faible que celle des pics ordinaires (de charge). Avec l'arrivée du rayonnement synchrotron, outre l'intensité bien plus forte, l'énergie des photons est maintenant accordable et permet la mise en évidence de l'augmentation considérable (4 ordres de grandeur) de la section efficace magnétique à certains seuils d'absorption des éléments magnétiques. C'est la diffusion magnétique résonnante. Prédite en 1985 par Blume [Blu85] puis calculée par Hannon [Han89], la diffusion magnétique résonnante fait l'objet de nombreuses recherches expérimentales. Dans le cas des métaux de transition, les résonances  $L_{2,3}$  se situent dans le domaine des rayons X mous ( $< keV$ ). Dans ce domaine d'énergie, les premières expériences sont réalisées par Kao et al. [Kao90] sur un monocristal de fer. Ensuite d'autres équipes se sont lancées dans cette technique pour étudier le signal spéculaire et obtenir ainsi des informations sur le profil magnétique en profondeur [Ton93].

Disposant de systèmes présentant une modulation magnétique latérale (les couches FePd) nous avons entrepris d'étudier sa contribution au signal hors spéculaire. Certaines de ces couches ont été gravées pour délimiter une zone de matériau magnétique de taille réduite [Che02]. En parallèle, des échantillons préparés par pulvérisation cathodique de CoPt déposé sur des substrats de Si prégravés en motifs périodiques ont été élaborés par des collègues du laboratoire. L'ensemble de ces échantillons ont donné lieu à de nombreuses mesures auprès de plusieurs synchrotrons : SRS (Daresbury), ESRF (Grenoble), Lure (Orsay), SLS (Suisse). Elles sont l'objet des thèses de K. Chesnel [Che02bis] et de G. Beutier (en cours). La présentation de l'ensemble des résultats dépasserait le cadre de ce mémoire, je vais donc présenter deux résultats marquants obtenus sur les couches de FePd simples.

Une couche de 40nm d'épaisseur de FePd a été réalisée avec un facteur d'anisotropie intermédiaire,  $Q \sim 0.8$ , conduisant à des domaines bien alignés. Avec un facteur d'anisotropie de cet ordre, la largeur de parois devient non négligeable par rapport à la taille des domaines, et les zones de fermeture ont un volume relativement important comme on peut s'en rendre compte sur la simulation représentée sur la figure 3.4-2a.

Le spectre de diffraction au seuil du fer (Fig. 3.5-2) a été effectué sur la ligne ID12B à l'ESRF, en géométrie longitudinale. Les rubans magnétiques préalablement imagés au laboratoire par microscopie de force magnétique, sont parallèles au plan d'incidence du faisceau. Le détecteur se déplace latéralement, hors de ce plan d'incidence à émergence constante comme on peut voir dans l'insert de la figure. Au centre on retrouve le pic spéculaire et de part et d'autre de celui-ci des pics magnétiques d'ordre 1 et 2. La mesure a été faite dans les 2 polarisations circulaires droite et gauche. Entre les deux polarisations, le rapport des intensités s'inverse. Pour comprendre cet effet dichroïque, il faut rappeler le rôle que joue la polarisation dans le facteur d'amplitude de diffusion de l'atome  $n$ :

$$f_n = (\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_d) F_n^0 - i(\mathbf{e}_i \times \mathbf{e}_d) \cdot \mathbf{m}_n F_n^1 + (\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{m}_n)(\mathbf{e}_d \cdot \mathbf{m}_n) F_n^2$$

$\mathbf{e}_i$  et  $\mathbf{e}_d$  sont les vecteurs de polarisation incidente et diffusée et  $\mathbf{m}_n$ , le vecteur unitaire du moment magnétique. Le premier terme est le terme de charge (diffusion Thomson corrigée de

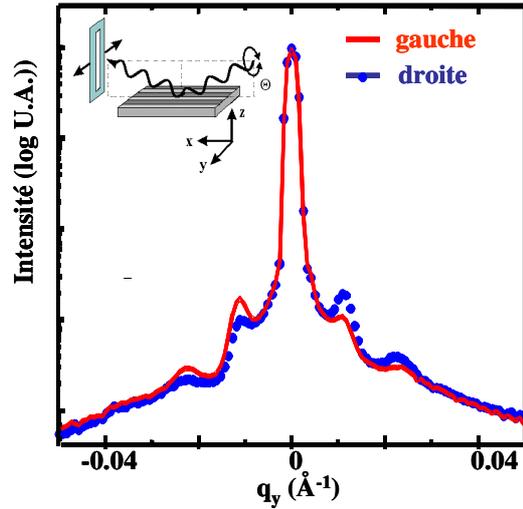


Fig. 3.5-2 Spectre de diffraction sur une couche de FePd présentant des domaines périodiques. Mesure faite en géométrie longitudinale au seuil  $L_3$  du fer en polarisation circulaire droite et gauche. Le schéma en insert montre la géométrie de la mesure.

la diffusion anormale), le deuxième est le terme magnétique dipolaire et le troisième est le terme quadripolaire plus faible. La lumière polarisée circulairement peut s'écrire comme la somme en quadrature des polarisations  $\sigma$ , (perpendiculaire au plan d'incidence) et  $\pi$ , (dans le plan d'incidence)  $\mathbf{p} = \sigma + \varepsilon i \pi$  ( $\varepsilon=1$ , circulaire droite et  $\varepsilon=-1$ , circulaire gauche). En l'absence d'analyse de polarisation, il y a deux canaux de polarisation orthogonaux en sortie dont il convient de sommer les intensités. L'intensité en  $q$ , loin de la position spéculaire dans l'espace réciproque s'écrit, si on se limite au terme magnétique du premier ordre :

$$I(q) = |F^1|^2 \left( \left| \vec{k}_d \cdot \vec{m}(q) + i\varepsilon \sin(2\theta) m_y(q) \right|^2 + \left| \vec{k}_i \cdot \vec{m}(q) \right|^2 \right)$$

où  $\theta$  est l'angle d'incidence,  $\mathbf{k}_i$  et  $\mathbf{k}_d$  sont les vecteurs unitaires incident et diffusé et  $m_y$  est la composante orthogonale au plan d'incidence. Les 2 pics du premier ordre correspondent à la condition  $|q| = \tau = 2\pi/p$ , où  $p$  est la période des rubans magnétiques. Les composantes de l'aimantation  $m_y$  et  $m_z$  sont décalées d'un quart de période ; i.e. leurs composantes de Fourier,  $m_y(q)$  et  $m_z(q)$  sont en quadrature dans le plan complexe. Cela se traduit par une interférence constructive ou destructive selon les signes comparés du vecteur de diffusion,  $q$  et de la polarisation,  $\varepsilon$ . Nous avons pu ainsi à partir du rapport d'asymétrie des intensités droite/gauche à plusieurs angles d'incidence, estimer la proportion d'aimantation  $m_y$  et la profondeur impliquées dans les zones de fermetures [Dur99]. Pour la couche de 40nm de FePd, l'épaisseur effective des zones de fermeture a été estimée à 8.5nm en accord avec les simulations micromagnétiques correspondantes. Ces expériences ont montré l'intérêt de la diffusion magnétique de rayons X pour la caractérisation des structures magnétiques. Elles ouvrent d'intéressantes perspectives pour des mesures dans des conditions que d'autres techniques ne permettent pas comme les mesures en température (Mul04) ou les mesures dynamiques.

## Diffusion magnétique cohérente

La diffusion en lumière cohérente permet d'accéder plus précisément que la diffusion en lumière incohérente au désordre et à la structure locale de la zone étudiée. Les mesures de diffusion de rayons X cohérents sont surtout des spectroscopies de fluctuation d'intensité [Cai94] en particulier pour l'étude de l'évolution dynamique des systèmes [Mal98, Liv01]. Un nouveau champ d'étude est apparu avec la diffusion magnétique cohérente [Pet00, Pie05]. Lors de la diffusion cohérente, les différentes parties de l'échantillon interfèrent et donnent lieu une image granulaire formée de tavelures, appelée «speckles pattern» ou «speckles». Cette image correspond en champ lointain à la transformée de Fourier de l'objet. A l'inverse, la diffusion incohérente peut être considérée comme une moyenne d'ensemble de l'intensité cohérente. La diffusion cohérente survient quand l'objet observé, ou plus précisément la zone éclairée de l'objet est dans le volume de cohérence du faisceau incident. La cohérence longitudinale (ou temporelle) est liée à la monochromaticité de la lumière. Dans notre cas, au seuil  $L_3$  du fer, la longueur de cohérence,  $\lambda^2/(2\Delta\lambda) > 0.5\mu\text{m}$ , est largement supérieure à la profondeur d'absorption  $\mu^{-1} \sim 30\text{nm}$ . La cohérence transverse (ou spatiale) fait à la fois intervenir la taille du faisceau et sa divergence, elle résulte de la limite de diffraction,  $\lambda z/(2\pi d)$ , de la source de diamètre  $d$  placé à une distance  $z$  de l'échantillon. Cette longueur de cohérence peut d'ailleurs être modifiée par les éléments d'optique de la ligne. Finalement, la cohérence spatiale est assurée par un filtrage spatial obtenu par la mise en place devant l'échantillon d'un masque avec un trou de petite taille appelé «pinhole». Si l'échantillon reste dans la limite du champ proche ( $\text{dist}_{\text{pin-ech}} \ll (\text{diam}_{\text{pin}})^2/\lambda$ ) de la «pinhole», la zone éclairée reste du même ordre de grandeur que l'aire de cette dernière.

Dans nos mesures nous avons utilisé des «pinholes» de  $20\mu\text{m}$  et  $10\mu\text{m}$  qui sont disponibles chez les fabricants d'accessoires pour la microscopie électronique en transmission. La condition de champ proche était à peine satisfaite, mais la cohérence transversale était néanmoins suffisante. L'intensité diffusée est captée par une caméra CCD placée dans le champ lointain de l'échantillon ( $\sim 50\text{cm}$ ). La figure 3.5-3 illustre les mesures faites sur la ligne ID08 (ESRF), sur des échantillons avec des rubans magnétiques de FePd alignés selon le plan d'incidence. La géométrie de l'expérience est semblable à celle des neutrons (Fig. 3.5-1). L'incidence était de  $22.5^\circ$  car la chambre de mesure disposait d'une bride pour fixer la caméra à  $45^\circ$ . Le pic spéculaire au centre de l'image est bordé par 2 satellites magnétiques en forme de «bananes». Cette forme est due à l'incidence oblique et à l'imperfection de l'alignement des domaines. L'alignement parfait conduirait à deux taches ponctuelles tandis qu'une configuration en domaines entrelacés de façon isotrope donnerait une ellipse centrée sur le pic spéculaire. La polarisation étant circulaire, on remarque aussi l'asymétrie d'intensité entre les pics droit et gauche due à la chiralité de l'aimantation dans les domaines magnétiques. Une analyse détaillée des satellites magnétiques montre le caractère granulaire de l'intensité (vue 3D de la figure). Cet aspect granulaire est la signature de la cohérence. Pour cette image, nous avons estimé le degré de cohérence,  $\beta=0.5$  [Che04]. Sur un échantillon où nous avons réduit la taille de la zone magnétique utile par gravure, nous avons obtenu  $\beta=0.85$  [Che02]. D'autre part, nous avons observé la modification de la figure de «speckles» lors de l'application d'un créneau champ. Ce phénomène, du à la réorganisation des domaines magnétiques, pourrait être utile à la compréhension de la dynamique des structures magnétiques. Une question ouverte par la diffusion magnétique cohérente est celle de la reconstruction de la structure en domaines. Elle se heurte bien entendu à la perte de l'information sur la phase.

Néanmoins l'utilisation de contraintes liées à l'amplitude de diffusion, à la forme de la zone diffractante et à toute connaissance à priori sur la structure mesurée peut permettre de délimiter l'ensemble des structures compatibles avec les mesures. Des algorithmes itératifs ont été proposés et utilisés sur des mesures effectuées en transmission [Lör03]. Pour notre part, nous explorons cette possibilité sur nos mesures en réflexion. Les résultats sont cependant trop préliminaires pour être exposés ici.

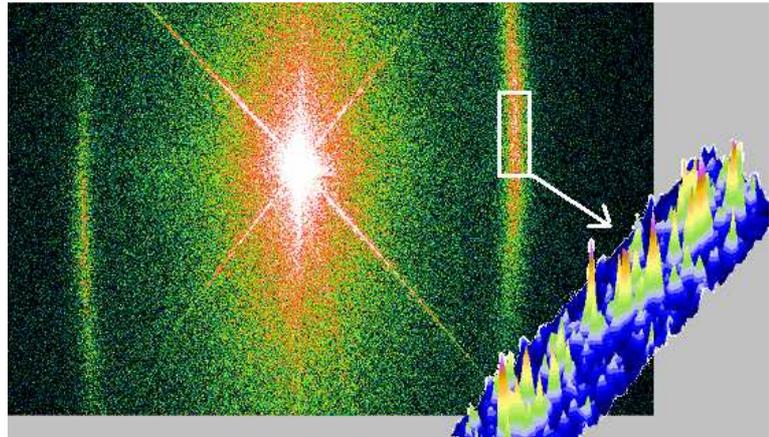


Fig. 3.5-3 : Image de diffraction magnétique cohérente. Le faisceau incident est rendu cohérent par le passage par un trou de  $20\mu\text{m}$ . Au centre le pic spéculaire, et de part et d'autres les satellites magnétiques. La vue 3D montre que le satellite magnétique est constitué de tavelures dues à la cohérence.

### Conclusion

Dans ce mémoire, nous avons présenté nos résultats concernant la croissance et les propriétés magnétiques d'alliages ferromagnétiques présentant une structure quadratique  $L1_0$ , FePd et FePt. Nous avons étudié le phénomène de mise en ordre dépendant des conditions de dépôt ou de traitements ultérieurs. Nous avons montré que pour le codépôt à température suffisante cette mise en ordre se faisait en cours de croissance dans les couches atomiques de surface donnant lieu à une structure avec le seul variant z. Puis nous avons observé que la mise en ordre sélectionnait le mécanisme de relaxation conduisant à la formation de micromacles. Les recuits suffisants ou l'irradiation de la phase désordonnée conduisent par contre aux 3 variants ordonnés. Pour obtenir l'unique variant z par irradiation, il faut partir d'une structure qui présente déjà un ordre local directionnel, comme celle obtenue par le dépôt couches par couches.

Outre leur intérêt intrinsèque, ces études avaient pour objectif d'obtenir des couches magnétiques à anisotropie perpendiculaire. Le contrôle de l'état d'ordre et donc de l'intensité de cette anisotropie nous a permis d'étudier de façon paramétrique les configurations d'équilibre des domaines magnétiques de couches minces à anisotropie perpendiculaire. Avec les micromacles nous avons identifié un défaut structural qui joue un rôle majeur dans la propagation de parois magnétiques et donc dans la coercitivité.

Enfin, ces couches ont constitué des systèmes modèles pour la mise en évidence de la résistance électrique de parois magnétiques et l'étude de la cinétique de propagation thermiquement activée des parois magnétiques sur des défauts identifiés. Nous avons aussi montré l'intérêt de la diffraction magnétique de domaines avec des neutrons ou des rayons X, pour une investigation de la structure magnétique des couches et leur évolution sous sollicitation.

Les couches minces d'alliages ferromagnétiques épitaxiés offrent encore d'autres perspectives tant en croissance que pour leurs propriétés, mais aussi comme systèmes modèles maîtrisés et modélisés pour la validation de nouvelles techniques de mesure ou d'observation. Nous allons présenter quelques perspectives possibles utilisant ce savoir faire.

## Conclusion et perspectives

## Perspectives

Pour la facilité de compréhension de ce mémoire, les résultats ont été présentés de façon linéaire en partant de la croissance de couches minces d'alliages pour finir par les propriétés de ces couches. En réalité la démarche est souvent pensée à partir d'objectifs en termes de propriétés et on cherche alors à partir des connaissances acquises et des moyens d'élaboration et de caractérisation comment obtenir des structures présentant ces propriétés. Ce fut le cas de l'anisotropie magnétique perpendiculaire que l'on a cherché à obtenir à partir d'alliages ordonnés. Lors de ces expériences d'autres résultats non attendus sont apparus, comme par exemple, le rôle des micromacles dans la coercitivité. Ces recherches ont commencé dans le contexte des potentialités de ces alliages pour l'enregistrement magnéto-optique perpendiculaire. Il semble maintenant que les propriétés de transport pour la détection mais aussi pour l'enregistrement constituent le nouveau paradigme. Moyennant les techniques de lithographie, il devient possible de sonder ces propriétés aux échelles sub-microniques et d'observer des objets ou des phénomènes individuels. On rentre aussi dans le domaine où les fluctuations ne peuvent plus être négligées, ce fut par exemple le cas du temps de propagation de parois thermiquement activées. Dans cette descente vers des échelles plus petites, le simple prolongement des lois phénoménologiques utilisées aux échelles supérieures n'est pas toujours pertinent. Il devient nécessaire et possible d'utiliser la simulation numérique des lois les plus fondamentales pour comprendre et rendre compte des phénomènes à ces échelles. Pour s'assurer de la pertinence de ces modélisations il convient aussi de progresser sur la voie de l'observation, notamment des techniques de microscopie. Enfin, la recherche de propriétés reposant sur des structures particulières devrait nous conduire vers de nouvelles études de croissance. Pour illustrer ces orientations, nous allons présenter quelques perspectives possibles : l'étude de la propagation de paroi, de l'interférométrie en diffusion magnétique cohérente, l'observation par microscopie électronique, la simulation numérique et de nouvelles études de croissance.

### *Diffraction magnétique de domaines*

Les résultats obtenus en diffraction magnétique de domaines avec les neutrons ou les rayons X mous montrent qu'il y a là une technique permettant de sonder les configurations magnétiques au cœur de la matière. La mise en évidence des domaines de fermeture près de la surface d'une couche de FePd en est une illustration [Dur99]. La relation entre la structure magnétique et l'intensité diffractée dans l'espace réciproque n'est pas directe. Elle nécessite une modélisation paramétrique de l'objet pour le calcul de l'amplitude diffusée. Dans le cas de la réflectivité magnétique, des méthodes et des logiciels ont été mis à disposition pour la communauté des utilisateurs de neutrons ou de rayons X. Ces codes reposent sur un traitement optique de la contribution des interfaces. La réflectivité ne rend compte que des moyennes par tranche d'épaisseur. Pour rendre compte des modulations latérales (domaines magnétiques) il faut s'écarter de la diffusion spéculaire et par exemple suivre l'intensité des pics magnétiques latéraux. Pour rendre compte de nos premiers résultats, nous avons utilisé une approche cinématique de la diffraction magnétique [Beu04]. Valable aux grands angles, cette approche n'est plus correcte aux incidences proches de l'angle critique. Une approche de type, approximation de Born de l'onde distordue, peut être proposée. Elle repose sur l'idée que l'interaction magnétique de la particule sonde avec les domaines magnétiques reste faible. Dans ces conditions il est possible de calculer l'onde incidente et l'onde sortante à la façon de la réflectivité sur des couches sans modulation latérale avec un formalisme matriciel. Puis de

## Conclusion et perspectives

calculer l'interaction entre l'onde incidente et l'onde sortante au travers d'un potentiel perturbatif lié à la configuration magnétique.

Un des résultats les plus marquant de la diffraction magnétique cohérente de domaines réside dans l'obtention de tavelures. Ces tavelures sont reliées à la transformée de Fourier de la configuration magnétique locale dans la zone éclairée par le faisceau. Il est alors tentant d'envisager la reconstruction de la configuration magnétique à partir de l'intensité diffusée. La zone étant éclairée au travers d'un trou de petit diamètre (10  $\mu\text{m}$  dans nos dernières expériences), la configuration magnétique peut être caractérisée par un nombre limité de variables. Nous pouvons espérer retrouver ces variables à partir de la mesure d'intensité dans un nombre suffisant de pixels du détecteur 2D. La phase de l'onde diffusée reste néanmoins inconnue et une transformée de Fourier inverse n'est pas envisageable. Pour résoudre cette question des algorithmes itératifs ont été proposés [Fie78] et appliqués au cas de la diffusion magnétique [Rah01]. Ils présentent des problèmes de convergence et d'unicité. Pour simplifier le problème nous avons choisi un système de lignes périodiques gravées de silicium sur lesquelles sont déposées des couches à anisotropie perpendiculaire. Les observations en microscopie de force magnétique montrent que les lignes sont des monodomains magnétiques. L'état de l'ensemble peut alors être représenté par une chaîne linéaire de taille limitée de sites à 2 états. Dans ces conditions, un algorithme de MonteCarlo par recuit simulé semble le plus approprié. Cette approche est en cours dans le cadre de la thèse de G. Beutier.

Pour régler le problème de la phase, l'approche holographique s'est montrée très attrayante. Elle a été utilisée en géométrie de transmission [Eis04]. La couche magnétique est déposée sur une face d'une membrane  $\text{SiN}_x$ . L'autre côté est recouvert d'un masque d'or percé d'un trou. A proximité de ce dernier, un autre trou traverse l'ensemble de la structure afin de laisser passer une onde de référence. L'interférence entre l'onde de référence et l'onde transmise à travers la couche magnétique donne un hologramme qui permet la reconstruction de la structure magnétique par transformation de Fourier. La nécessité de procéder en transmission constitue une limitation de cette approche, car beaucoup de systèmes à étudier sont déposés sur un substrat opaque aux rayons X mous. On pourrait cependant envisager une approche équivalente en réflexion. L'interférométrie de rayons X en réflexion a déjà montré son intérêt pour la reconstruction de profil de surface [Mar00]. L'idée du dispositif de mesure est schématisée sur la figure p1. Une onde cohérente passant au travers d'un masque percé de deux trous éclaire la couche à étudier et une couche servant de miroir placés en incidence oblique dans la zone de champ proche des trous (pas plus de quelques mm). Le miroir est monté sur un moteur piézoélectrique permettant translation et/ou rotation. Les trous doivent être séparés d'une distance inférieure à la longueur de cohérence verticale, qui a été estimée de l'ordre de quelques mm. L'onde réfléchiée par le miroir sert de référence et interfère avec celle diffusée par la couche à étudier. Le mouvement du miroir permet de faire varier la différence de marche entre les 2 ondes. On pourrait ainsi réaliser plusieurs interférogrammes avec différents déphasages entre l'onde échantillon et l'onde référence. Ces images permettraient une reconstruction plus directe. Pour éviter au maximum les vibrations, le dispositif devrait être compact.

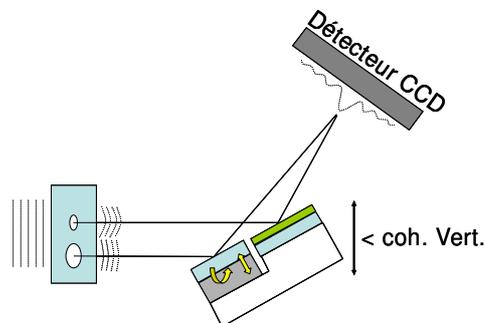


Fig. p1 : Schéma de principe d'un dispositif d'interférométrie en réflexion. Une onde cohérente passe à travers deux trous puis est réfléchiée par l'échantillon et le réflecteur vers un détecteur 2D. La distance verticale doit être inférieure à la longueur de cohérence verticale. Le miroir placé sur un moteur piézoélectrique permet de faire varier le déphasage.

### *Propagation de parois magnétiques*

Les matériaux ferromagnétiques sont constitués de domaines sub-micrométriques au sein desquels l'aimantation est homogène, séparés par des parois magnétiques. Lorsqu'un champ magnétique est appliqué, les domaines dont l'aimantation est favorablement orientée par rapport au champ grandissent au détriment de leurs voisins défavorablement orientés, ce qui implique un déplacement des parois magnétiques. Les interactions entre parois magnétiques et défauts contrôlent les propriétés d'hystérésis, de dynamique de retournement d'aimantation, et la géométrie des domaines magnétiques. Aujourd'hui, le développement de dispositifs nanométriques permet de manipuler une paroi isolée. Cette possibilité a ouvert de vastes champs d'étude : il a ainsi été montré récemment qu'un effet de résistance électrique était associé à la présence d'une paroi, ou encore qu'il était possible de déplacer une paroi par simple application d'un courant électrique perpendiculaire à celle-ci. En effet, le courant se polarise dans le matériau ferromagnétique et exerce une force sur la paroi [Gro03].

Sur le plan des applications, la réduction des dimensions des dispositifs dans le domaine de la magnéto-électronique et de l'enregistrement magnétique a mis en lumière la nécessité de comprendre les mécanismes de renversement d'aimantation par propagation de paroi à l'échelle du nanomètre. A plus long terme, certains auteurs ont proposés de réaliser des dispositifs entièrement basés sur la propagation de parois dans des nanostructures [All02].

Les progrès survenus dans le domaine de la fabrication des nano-objets aussi bien que dans l'observation des parois conduisent de plus en plus à considérer ces dernières comme des nano-objets en elles-mêmes. Elles présentent des propriétés physiques comme une magnétorésistance [Dan02, Lev97], une masse [Eij04]. Elles possèdent un ou des degrés de liberté internes et sont une source de champ magnétostatique. Ces propriétés peuvent être modifiées en changeant les paramètres du matériau, comme l'anisotropie magnétique et l'interaction d'échange. Il est aussi possible de manipuler ces propriétés physiques par des conditions géométriques et topologiques particulières, par exemple en les piégeant sur un défaut naturel [Att01] ou artificiel comme une nanoconstriction. On peut même agir sur la vitesse de propagation des parois : par exemple dans des nanofils, celle-ci dépend de la géométrie des fils, et une plus grande rugosité des bords du fil peut conduire à l'augmentation de la vitesse de propagation [Nak03].

Nos connaissances dans ce domaine sont à ce jour limitées. En ce qui concerne le renversement d'aimantation, la compréhension des phénomènes mis en jeu se heurte généralement au manque de connaissance des défauts présents, et à l'ignorance qui en résulte sur des mécanismes d'interaction entre la paroi et ces défauts. D'autre part, les phénomènes liés au renversement de nano-objets ferromagnétiques couplés à des éléments antiferromagnétiques (couplage d'échange) sont encore mal compris, alors même qu'ils font déjà l'objet d'applications (têtes de lectures de disques durs). Enfin, notons que des interrogations importantes subsistent quand aux effets magnétoélectriques des parois, et aux possibilités d'utiliser l'injection de courant pour déplacer une paroi.

La stratégie de recherche envisagée serait de réaliser des systèmes nanométriques dans lesquelles le renversement d'aimantation sera détecté par des mesures de transport électronique. Les dispositifs de mesure seront constitués de croix de Hall de dimension submicrométriques, reliées par des pistes lithographiées directement dans la couche mince magnétique élaborée par épitaxie par jets moléculaires. Ce type de dispositif a l'avantage d'être versatile : il permet d'effectuer à la fois des mesures de magnétorésistance, des mesures d'effet Hall extraordinaire, et des expériences de déplacement de parois avec un courant. La faible dimension des dispositifs permet en outre d'isoler un petit nombre de défauts.

En ce qui concerne les défauts naturellement présents dans les couches, nous avons déjà étudié l'ancrage des parois sur les micromacles dans des échantillons FePt/Pt, et montré



que l'utilisation de nanostructures permet d'étudier l'interaction entre une paroi et un défaut unique [Att03]. Ces études devraient être élargies et étendues vers des mesures à basse température, afin d'observer éventuellement des mécanismes de franchissement par effet tunnel. Si ce phénomène a déjà été proposé pour expliquer des résultats obtenus à basse température, nous disposons ici d'un objet idéal pour ce type d'étude.

Nous envisageons de poursuivre par l'étude de la dynamique de propagation de parois dans des échantillons simples avec des défauts artificiels. Différents types de défauts artificiels peuvent être envisagés.

Les premiers sont de nature purement géométrique : il s'agit de nanoconstrictions réalisées le long des pistes (Fig. p2a), qui permettent de piéger une paroi, et éventuellement d'en contrôler la structure micromagnétique [Bru99]. Ce type de défaut permet de réaliser, outre des études liées à la résistivité électrique de paroi [Tat99], des mesures de dépiégeage sur des défauts bien connus par application de courant [Tso03].

Un autre type de défaut artificiel envisagé est lié à la possibilité d'irradier localement la nanostructure. Nous avons en effet montré que l'irradiation par des ions légers permettaient de contrôler les propriétés magnétiques de couches minces [Cha98], soit en désordonnant les interfaces dans le cas de multicouches de type Pt/Co/Pt, soit en modifiant l'ordre chimique dans le cas d'alliages qui s'ordonnent de type FePt.

Nous avons également la possibilité au sein du laboratoire de déposer avec une faible densité des agrégats ferromagnétiques ou antiferromagnétiques (Fig. p2b). Il est envisageable d'étudier la propagation de paroi dans une piste ou dans une croix de Hall sur laquelle seraient déposés un ou plusieurs agrégats, qui auraient pour effet de piéger la paroi.

Enfin, nous pouvons lithographier dans un échantillon couplé à une couche antiferromagnétique (de type MnPt ou FeMn), afin d'observer à la fois la réduction des dimensions du système sur le couplage d'échange, et les effets du couplage d'échange sur la dynamique de propagation (Fig. p2c).

La dynamique de parois constitue un axe de recherche important pour le laboratoire, pour lequel un jeune maître de conférence, J.P. Attané a été récemment accueilli et sur lequel un sujet de thèse est proposé.

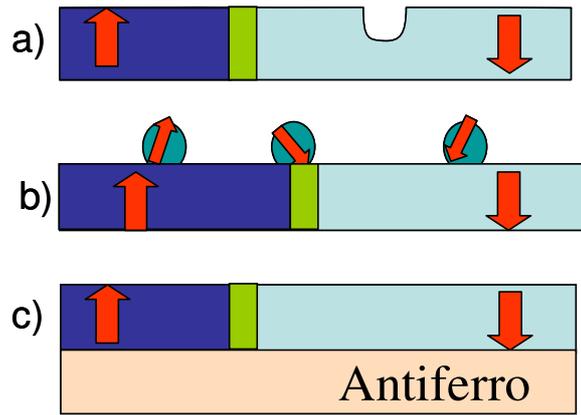


Fig. p2 : propagation dans une ligne gravée d'une paroi magnétique en interaction avec différents obstacles. a) une constriction, b) des agrégats déposés sur la couche ferromagnétique, c) une couche antiferromagnétique en contact avec la couche ferromagnétique.

### *Microscopie électronique d'objets magnétiques*

Les progrès réalisés dans la compréhension de la physique du nanomagnétisme reposent très largement sur une capacité croissante à imager domaines et parois magnétiques, et à dévoiler l'interaction entre microstructure et propriétés magnétiques. Ces progrès dans les techniques d'imagerie permettent aujourd'hui d'aborder de nouveaux problèmes physiques, auparavant hors d'atteinte, et de répondre aux besoins nés de la conception de dispositifs appliqués de dimensions fortement submicroniques. La capacité d'imager en trois dimensions, de relier localement structure et configuration magnétique, de suivre l'effet d'un champ magnétique externe sont quelques unes des nécessités actuelles.

## Conclusion et perspectives

Nous avons montré l'intérêt des neutrons et des photons X pour l'observation des structures magnétiques par le biais de la diffraction. Mais les électrons en tant que particules chargées sont sensibles à l'induction magnétique via la force de Lorentz. Ils se prêtent facilement à l'imagerie (microscopie de Lorentz). Au cours de nos recherches sur les structures en domaines magnétiques, Aitchison (U. de Glasgow, RU) avait observé quelques unes des couches de FePd [Ait01]. Mais à part cet exemple, nous avons peu fait appel à la microscopie électronique pour l'observation magnétique. Avec les nouveaux développements en microscopie électronique, et compte tenu du contexte local, le moment semble maintenant venu d'aller plus loin avec cette technique pour l'observation magnétique.

Parmi les structures étudiées actuellement, une large part est faite aux nano-objets magnétiques du fait de leurs nombreuses applications (stockage de l'information, capteurs, mémoires, aimants, etc...). De nombreux laboratoires grenoblois sont impliqués dans cette thématique allant des études fondamentales aux réalisations technologiques. Or, la compréhension de leurs propriétés magnétiques passe par une connaissance des domaines magnétiques avec une bonne résolution spatiale (1 à 10 nm), et de leurs évolutions en fonction de divers paramètres tels que champ magnétique et température. Deux techniques existent pour l'observation d'objets magnétiques :

i) La microscopie de Lorentz (en mode Fresnel pour visualiser les parois ou en mode Foucault pour visualiser les domaines) est une méthode d'imagerie qui s'appuie sur la variation d'amplitude de l'onde associée à l'électron lors de la traversée de l'échantillon. Le renversement de l'aimantation en fonction du champ dans des multi-couches magnéto-résistives de type vannes de spin a ainsi été observé avec cette technique.

ii) L'holographie [Voe99] est quant à elle basée sur l'analyse du déphasage de cette onde (par rapport à l'onde de référence avant l'échantillon) dû par exemple à la traversée d'un champ de fuite créé par un échantillon ferromagnétique. Elle permet d'obtenir une information quantitative sur l'induction magnétique avec une résolution de l'ordre de quelques nm. Elle nécessite cependant d'introduire un bi-prisme dans la colonne du microscope, et surtout d'avoir un faisceau très cohérent. L'avantage de l'holographie est que cette technique peut être utilisée pour la mesure du potentiel interne électrostatique et du potentiel vecteur.

En microscopie de Lorentz comme en holographie, la lentille objectif doit être coupée pour que son champ magnétique ne perturbe pas l'échantillon. Ceci entraîne une diminution notable du grandissement et de la résolution (~ 10 nm). Afin de pallier cet inconvénient, des lentilles dites de « Lorentz » ont été développées afin d'augmenter la gamme de grandissement et la résolution (~2nm) sans « trop » détériorer les performances du microscope au niveau analyse chimique ou résolution. Ces lentilles ont parfois été installées sur des microscopes déjà existants, mais les meilleures performances sont obtenues sur des microscopes dédiés.

Avec l'holographie, lorsqu'une onde électronique cohérente traverse une zone magnétique, le gradient de phase est donné par :

$$\frac{d\phi(x, y)}{dx} = -\frac{2\pi e}{h} \int B_y(x, y, z) dz$$

où  $B_y$  est la composante de l'induction orthogonale à la direction de faisceau, (z) et à la direction d'intégration, (x). Les premières tentatives d'holographie électronique se sont soldées par un échec dû à la faible cohérence procurée par les canons à électrons thermoélectroniques de l'époque. Mais l'invention du canon à émission de champ (FEG), alliant très bonne cohérence et forte luminosité du faisceau, permet maintenant de réaliser des hologrammes avec des microscopes commerciaux. Un avantage de l'holographie électronique pour l'analyse des champs magnétiques et électrostatiques provient de la flexibilité apportée par le traitement permettant de séparer facilement les dépendances non désirées (comme l'épaisseur) de celles utiles (comme l'induction magnétique) de la phase reconstruite. Cette

facilité procure à l'holographie un avantage de poids comparé à ses « concurrentes » directes pour la mesure des inductions magnétiques, comme la microscopie de Lorentz. Cette technique ayant la même résolution spatiale que la haute résolution, elle est la candidate idéale pour l'étude des nanostructures magnétiques.

Cette réflexion s'inscrit dans un programme scientifique de plus grande envergure au CEA Grenoble. Ainsi, 2005 verra la mise en place de la technique d'imagerie magnétique avec l'arrivée d'un nouveau microscope innovant. Ce nouvel équipement, de tout premier plan mondial, permettra de faire de l'imagerie de Lorentz et de l'holographie électronique avec une plus grande sensibilité et résolution spatiale. Il devrait être alors possible d'imager les lignes de champ à la fois dans le volume et à proximité des nanostructures [Mat04]. Ceci permettra alors l'étude de nanostructures gravées ou d'agrégats pour analyser les phénomènes de couplage avec une couche magnétique sous-jacente, de retournement d'aimantation, et, phénomène récemment mis en évidence, l'effet sur la configuration magnétique de l'injection d'un courant polarisé en spin. Ce projet est porté par les microscopistes du SP2M (P. Bayle-Guillemaud). Notre contribution consistera à proposer des échantillons modèles bien caractérisés (magnétométrie, MFM, etc.) et participer à la modélisation des configurations magnétiques afin d'interpréter les résultats d'observation. Pour ce sujet une thèse co-encadrée a été proposée.

### ***Modélisation et simulation numérique***

Les propriétés magnétiques des nano-objets dépendent non seulement des propriétés atomiques, mais aussi de leur structure, de leur forme et de l'environnement physique. Leur comportement magnétique est donc souvent complexe et nécessite une approche de simulation numérique pour le comprendre qualitativement et quantitativement. En collaboration avec J.C. Toussaint du laboratoire Louis Néel nous avons pu réaliser des simulations micromagnétiques de couches ferromagnétiques.

Mais les logiciels de simulation employés, basés sur des modèles continus ne permettent pas de prédire certains comportements magnétiques comme par exemple le rôle de la rugosité à l'interface entre une couche ferromagnétique et une couche antiferromagnétique. Dans certains cas, la discrétisation sur un réseau parallélépipédique pose le problème de la représentation d'interfaces obliques. C'est le cas que nous avons rencontré avec la simulation d'une paroi magnétique dans une micromacle (Fig. p3). Une solution est de simuler au niveau atomique les ingrédients élémentaires (interaction d'échange, interface, rugosité). Cette approche a été adoptée dans le laboratoire L\_Sim pour l'étude d'interfaces ferro/antiferro [Ern03]. Mais les objets magnétiques peuvent être parfois de grande taille (domaines magnétiques, dispositifs, etc...) ; il faut donc intégrer plusieurs échelles dans le problème. La voie la plus prometteuse semble résider dans les méthodes multi-échelle fondées sur le couplage de méthodes précises à l'échelle atomique et de méthodes continues (différence finies, éléments finis, etc...). Actuellement, les approches de type multi-échelle, couplant des phénomènes à plusieurs échelles de longueur, correspondent à une démarche en plein développement en physique. Par exemple, les méthodes « QuasiContinuum » pour la dynamique moléculaire [Shi04] se proposent de traiter les zones

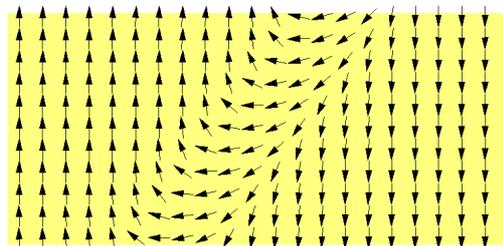


Fig. p3 : Simulation micromagnétique d'une paroi piégée dans une micromacle. La micromacle a été décrite en affectant les nœuds du maillage correspondant d'une anisotropie oblique [Att04].

de forte déformation par une description atomique et les zones à déformations plus faibles (élasticité linéaire) par des éléments finis. La difficulté réside dans le couplage entre les différentes régions pour éviter des artefacts numériques tels que les forces fantômes. Pour le magnétisme, les approches de type « coarse graining » [Dob03] sont une autre voie possible. Elles consistent à regrouper les moments dans les zones où ceux-ci varient peu, permettant ainsi de diminuer le nombre de variables du problème. Ce projet de recherche fait l'objet d'une collaboration entre plusieurs laboratoires associant des expérimentateurs et des numériciens. Un co-encadrement de thèse est envisagé en ce qui concerne la modélisation atomistique et la problématique multi-échelle.

### ***Elaboration***

Bien souvent, les nouvelles propriétés physiques résultent de l'association de différents matériaux. Par exemple, dans le domaine des couches minces l'association de couches ferromagnétiques et de couches antiferromagnétiques a donné lieu à toute une série de découvertes et d'applications. Une couche antiferromagnétique peut décaler le cycle d'hystérésis de la couche ferromagnétique adjacente [Ber99] ou modifier son spectre de résonance [Via04].

Nous avons donc entrepris d'étudier les couches minces d'alliages ordonnés antiferromagnétiques MnPt et FeMn, afin de les combiner à des couches d'alliages ferromagnétiques. Etrangement, le codépôt de MnPt sur Pt donne une croissance où les variants avec l'axe quadratique dans le plan dominant largement. Seule la croissance couche par couche nous a permis d'obtenir une croissance, quoique imparfaite, avec l'axe quadratique perpendiculaire à la couche. Afin d'améliorer la qualité cristalline de ces couches de nouvelles procédures de croissance et de traitements thermiques peuvent être tentés. Par exemple, un recuit prolongé de MnPt élaboré couche par couche permettra-t-il d'atteindre cet objectif ?

D'autre part, la thématique propagation de parois magnétiques demande des couches ferromagnétiques de la meilleure qualité possible afin de réduire les sources non intentionnelles de la coercitivité. En particulier il serait bon de pouvoir obtenir des couches d'alliage sans macles. C'est ce que l'on obtient lors de la croissance de FePd ou FePt directement sur MgO, mais alors la mosaïcité de la couche est plus grande et les défauts associés contribuent à la coercitivité. Une voie possible consiste à chercher une couche tampon présentant un très faible désaccord de maille avec la couche magnétique.

Il apparaît donc que poussé par la recherche de propriétés magnétiques plus fines, il est nécessaire de poursuivre notre compréhension et la maîtrise de l'élaboration.

### ***Convergence des perspectives***

Les perspectives présentées ici sont conçues comme une approche cohérente. Il faut en effet disposer de la meilleure croissance possible et maîtriser les empilements de couches pour étudier le plus finement possible la propagation des parois. Il faut aussi progresser dans le domaine de la mesure, de l'observation et de la modélisation pour comprendre les propriétés des objets que nous fabriquons. Ce vaste champ de recherche ne peut être mené par un seul individu. Il nécessite l'implication de plusieurs équipes, chacune apportant ses outils et ses compétences. Le co-encadrement de thèses de doctorat me paraît un bon moyen pour mettre en marche cette dynamique.

## Références

- [Aba98] G. Abadias et al., *Acta Metall. Mater.* 46 (1998) 6403
- [Ait01] P.R. Aitchison et al., *J. Magn. Magn. Mater.* 223 (2001) 138
- [All02] D.A. Allwood et al., *Science* 296 (2002), 2003
- [Att01] J.P. Attané et al., *Appl., Phys. Lett.* 79 (2001) 794
- [Att03] J.P. Attané, Thèse de l'Université Josef Fourier, Grenoble (2003)
- [Att04] J.P. Attané et al., *Phys. Rev. Lett.*, 93 (2004) 257203
- [Bai88] M.N. Baibich et al., *Phys. Rev. Lett.* 61 (1988) 2472
- [Bar94] L. Barbier et al., *Phys. Rev. B* 50 (1994) 4929
- [Ben99] J. BenYoussef et al., *J. Magn. Magn. Mater.* 202 (1999) 277
- [Ber03] H. Bernas et al., *Phys. Rev. Lett.* 91 (2003) 077203
- [Ber72] F. de Bergevin et al., *Phys. Lett. A* 39 (1972) 141
- [Ber78] L. Berger, *J. Appl. Phys.* 49 (1978) 2156.
- [Ber93] J.C. Bertolini et al., *Surf. Sci.* 281 (1993) 102
- [Ber99] A.E. Berkowitz et al., *J. Magn. Magn. Mater.* 200 (1999) 552
- [Beu04] G. Beutier et al., *Physica B* 345 (2004) 143
- [Blu85] M. Blume, *J. Appl., Phys.* 57 (1985) 3615
- [Bou00] C. Bourgonon et al., *App. Phys. Lett.* 76 (2000) 1455
- [Bou01] C. Bourgonon, Thèse de l'Université Joseph Fourier, Grenoble (2001)
- [Bru99] P. Bruno, *Phys. Rev. Lett.* 83 (1999) 2425
- [Bun91] A. Bunde et al. "Fractal and disordered systems" éd. Springer-Verlag, Berlin (1991)
- [Cab74] G.G. Cabrera et al., *Physica Stat. Sol. B* 61 (1974) 539 et aussi 62 (1974) 217
- [Cai94] Z. Cai et al., *Phys. Rev. Lett.* 73 (1994) 82
- [Cha88] C. Chappert et al., *Appl. Phys.* 64 (1988) 5736
- [Cha98] C. Chappert et al., *Science* 280 (1998), 1998
- [Che02] K. Chesnel et al., *Phys. Rev. B*, 66 (2002) 172404
- [Che02bis] K. Chesnel, thèse de l'Université Joseph Fourier (2002)
- [Che04] K. Chesnel et al., *J. Synchrotron Rad.*, 11 (2004) 469
- [Cow98] R.P. Cowburn et al., *Phys. Rev. B* 58 (1998) 11507
- [Dan02] R. Danneau et al., *Phys. Rev. Lett.*, 88 (2002) 157201
- [Dob03] V.V. Dobrovitski, *Phys. Rev. Lett.* 90 (2003) 67201
- [Don03] D.H. Kim et al., *Phys. Rev. Lett.* 90 (2003) 087203
- [Dur99] H.A. Dürr et al., *Science* 284 (1999) 2166
- [Dyn94] M. Dynna et al., *Acta Metall. Mater.* 42 (1994) 1661
- [Dyn96] M. Dynna et al., *Acta Metall. Mater.* 44 (1996) 4417
- [Dyn97] M. Dynna et al., *Acta Metall. Mater.* 45 (1997) 257
- [Dyn98] M. Dynna et al., *Acta-Materialia* 46 (1998) 1087
- [Eij04] S. Eiji et al., *Nature* 432 (2004) 203
- [Eis04] S. Eisebitt et al., *Nature* 432 (2004) 885
- [Ern03] F. Ernult et al., *J. Appl. Phys.* 94 (2003) 6678
- [Fie78] J. R. Fienup, *Opt. Lett.* 3 (1978) 27
- [Fre90] L.B. Freund, *J. Appl. Phys.* 68 (1990) 2073
- [Gar88] P.F. Gargi, *J. Appl. Phys.* 63 (1988) 5066
- [Geh97] V. Gehanno et al., *J. Magn. Magn. Mater.* 172 (1997) 26
- [Geh98] V. Gehanno et al., *J. Appl. Phys.* 84(1998) 2316
- [Geh99] V. Gehanno et al., *European-Physical-Journal B*, 10 (1999) 457
- [Ger01] O. Gérardin et al., *J. Appl. Phys.* 89 (2001) 7012
- [Gil01] B. Gilles et al., *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* 614 (2001) F3.7.1-12/G1.7.1-12

## Références

- [Goa98] S. Goapper et al., Surf. Sci. 409 (1998) 81
- [Gre96] J.F. Gregg et al., Phys. Rev. Lett. 77 (1996) 1580.
- [Gro03] J. Grollier et al., Phys. Lett. 83 (2003) 509
- [Hal01] D. Halley, Thèse de l'université Joseph Fourier (2001)
- [Hal02] D. Halley et al., Phys. Rev. B 65 (2002): 205408
- [Hal04] D. Halley et al., Phys. Rev. B 70, (2004) 174437
- [Han89] J.P. Hannon et al., Phys. Rev. Lett. 62 (1989) 2644
- [Hea53] A. K. Head, Proc. Phys. Soc. London 66B, (1953) 793.
- [Her96] M.A. Hermann et al., Molecular Beam Epitaxy, in: M.B. Panish (Ed.), Springer Series in Materials Science 7, Springer, Berlin, Heidelberg, 2nd Edition, 1996, p. 290
- [Hir82] J.P. Hirth et al., Theory of Dislocations, McGraw-Hill, New York, 1982.
- [Hull 92] R. Hull et al., Critical Reviews in Solid State and Materials Sciences, vol 17 (1992)
- [Jai92] S.C. Jain et al. Philos. Mag. A65 (1992) 1151.
- [Joh95] M.T. Johnson et al., J. Magn. Magn. Mater. 148 (1995) 118
- [Kao90] C. Kao et al., Phys. Rev. Lett. 65 (1990) 373
- [Kap93] B. Kaplan et al., J. Magn. Magn. Mater. 128 (1993) 111
- [Ken99] A.D. Kent et al. J. Appl. Phys. 85 (1999) 5243
- [Kev98] B. Kevorkian, Thèse de l'Université Joseph Fourier, Grenoble (1998)
- [Kir96] A. Kirilyuk et al., 171 (1997) 45
- [Kit46] C. Kittel, Phys. Rev 70 (1946) 965
- [Kle29] O. Klein et al., Zeits. für Phys. 52 (1929) 853
- [Koo60] C. Kooy et al., Philips Res. Repts. 15 (1960) 7
- [Lab99] S. Labbé et al., J. Magn. Magn. Mater. 206 (1999) 93
- [Lev97] P.M. Levy et al., Phys. Rev. Lett. 79 (1997) 5110
- [Liv01] F. Livet et al., Phys. Rev. Lett, 63 (2001) 036108
- [Lor03] M. Lörger et al., Bessy-highlights 2003  
[www.bessy.de/lab\\_profile/03.i\\_research/resonant\\_scattering/pdf\\_files/Highlights03.pdf](http://www.bessy.de/lab_profile/03.i_research/resonant_scattering/pdf_files/Highlights03.pdf)
- [Mal98] A. Malik et al., Phys. Rev. Lett. 81 (1998) 5832
- [Man99] S. Mangin et al., Phys. Rev. B 60 (1999) 1204
- [Mar00] S. Marchesini et al., Appl. Opt. 39 (2000) 1633
- [Mar87] P.M.J. Marée et al., J. Appl. Phys. 62 (1987) 4413
- [Mar94] A. Marty et al., Phys. Rev. B 49 (1994) 15626
- [Mat04] G. Matteucci et al., Ultramicroscopy 99 (2004) 95
- [Mat75] J.W. Matthews, J. Vac. Sci. Technol. 12 (1975) 126.
- [Mul04] M. Mulazzi, J Magn. Magn. Mater. 895 (2004) 272
- [Nak03] Y. Nakatani et al., Nature Materials 2 (2003) 521
- [Nak99] Y. Nakamura, J. Magn. Magn. Mater. 200 (1999) 634
- [Nea83] J.H. Neave et al., Appl. Phys. A31 (1983) 1
- [Nov02] K.S. Novoselok et al., IEEE Trans. Magn. 38 (2002) 2583
- [Oka02] S. Okamoto et al., Phys. Rev. B 66 (2002) 24413
- [Ova73] O.A. Ovanov et al., Phys. Met. Metallogr. 35 (1973) 81
- [Pau62] J. Paulevé et al., C.R. Acad. Sci (Paris) 254 (1962) 965
- [Pet00] J. Peters et al., ESRF Newsletter 34 (2000) 15
- [Pie05] M.S. Pierce et al. Phys. Rev. Lett. 94 (2005) 017202
- [Pla70] M. Plartzman et al., Phys. Rev. B 2 (1970) 3556
- [Pra99] C. Prado et al., Appl. Phys. Lett. 74 (1999) 430
- [Rah01] A. Rahmim, Thesis, The University of British Columbia, [www.pet.ubc.ca/arman/](http://www.pet.ubc.ca/arman/)
- [Rav99] D. Ravelosona et al., Phys. Rev. B 59 (1999) 4322
- [Ris99] R.A. Ristau et al., J. Appl. Phys. 86 (1999) 4527
- [Sak85] T. Sakamoto et al., Superlattices and microstructures 1 (1985) 347

## Références

- [Shi04] T. Shimokawa et al., Phys. Rev. B 67 (2004) 214104  
[Smi55] J. Smit et al., Philips Res. Rep. 10 (1955) 113  
[Suk97] A.L. Sukstanskii et al., J. Magn. Mater. 169 (1997) 31  
[Tat99] Tatara et al., Phys. Rev. Lett. 83 (1999) 2030  
[To198] C. Tölkes et al., Phys. Rev. Lett. 80 (1998) 2877  
[Ton93] J.M. Tonnerre et al., J. Magn. Magn. Mater. 121 (1993) 230  
[Tou96] J.C. Toussaint et al., Proc of the 9th Intern. Symp. Magn. Anisotropy and Coercivity in Rare-Earth Transition Metal Alloys, 2 (1996) 59.  
[Tso03] Tsoi et al., Appl. Phys. Lett. 88 (2617), 2003  
[Vas96] J.L. Vassent et al, J. Appl. Phys. 80(1996) 5727  
[Via04] B. Viala et al., IEEE Trans. on Mag., 40 (2004) 1996  
[Vir00] M. Viret et al., Phys. Rev. Letters., 85 (2000) 3962  
[Voe99] E. Voelkl et al., Introduction to electron Holography, Kluwer Academic/Plenum Publishers, New York, 1999  
[Vuk00] N. Vukadinovic et al., Eur. Phys. J. B, 13 (2000) 445  
[Vuk00bis] N. Vukadinovic et al., Phys. Rev. Lett. 85 (2000) 2817[Vuk02] N. Vukadinovic et al., Phys. Rev. B, 65 (2002) 054403  
[Vuk03] N. Vukadinovic, Habilitation à Diriger de Recherches, Orsay, 2003, <http://telint.ccsd.cnrs.fr>  
[Wil90] J.R. Willis et al., Philos. Mag. A62 (1990) 115.  
[Wun01] J. Wunderlich et al., IEEE Trans; Magn. 37 (2001) 2104