



**HAL**  
open science

# Relation structure-magnétisme dans les matériaux pour l'électronique de spin

Nicolas Biziere

► **To cite this version:**

Nicolas Biziere. Relation structure-magnétisme dans les matériaux pour l'électronique de spin. Autre [cond-mat.other]. Université Paul Sabatier (Toulouse 3), 2020. tel-03250983

**HAL Id: tel-03250983**

**<https://hal.science/tel-03250983>**

Submitted on 5 Jun 2021

**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.



# Titres et travaux pour l'obtention de L'Habilitation à Diriger des Recherches

Délivrée par l'Université Paul Sabatier- Toulouse III

## **Relation structure-magnétisme dans les matériaux pour l'électronique de spin**

**Nicolas Biziere**

Soutenue le 10 Février 2020 devant le jury composé de :

**Mr André Thiaville** : Rapporteur  
Directeur de Recherches CNRS - LPS-Orsay

**Mme Ursula Ebels** : Rapporteuse  
Ingénieur CEA Grenoble – Spintec

**Mr Michel Hehn** : Rapporteur  
Professeur à l'université de Lorraine - Institut Jean Lamour

**Mr Olivier Fruchart** : Examineur  
Directeur de Recherches CNRS – Spintec

**Mr Michel Goiran** : Examineur  
Professeur à l'université Paul Sabatier – LNCMI Toulouse

**Mr Alain Claverie** : Examineur  
Directeur de Recherches CNRS – CEMES Toulouse



<b>CURRICULUM VITAE.....</b>	<b>3</b>
<b>INTRODUCTION ET CONTEXTE.....</b>	<b>6</b>
<b>I. Influence du désordre atomique sur les propriétés magnétiques de l’alliage d’Heusler</b>	
<b>Co<sub>2</sub>MnSi.....</b>	<b>10</b>
<b>I.1. Quelques généralités sur les alliages d’Heusler : le Co<sub>2</sub>MnSi comme système modèle..</b>	<b>10</b>
<b>I.2. Influence de l’irradiation ionique aux ions He<sup>+</sup> sur les propriétés structurales de l’alliage Co<sub>2</sub>MnSi. ....</b>	<b>15</b>
I.2.1. Fabrication de films minces de Co <sub>2</sub> MnSi et principe de l’irradiation ionique.....	15
I.2.2. Mise au point d’une méthodologie d’analyse structurale pour le Co <sub>2</sub> MnSi.....	18
I.2.3. Influence du désordre sur les propriétés magnétiques du Co <sub>2</sub> MnSi.....	23
I.2.4. Comparaison des résultats expérimentaux avec les calculs ab-initio.....	28
<b>I.3. Conclusion et perspectives sur l’alliage Co<sub>2</sub>MnSi. ....</b>	<b>31</b>
<b>II. Nanomagnétisme de nanocylindres.....</b>	<b>35</b>
<b>II.1. Méthodes de fabrication et d’observation.....</b>	<b>35</b>
II.1.1. Croissance de nanocylindres par électrodéposition dans des membranes.....	35
II.1.2. Observation magnétique d’un nanocylindre individuel : holographie électronique et reconstruction micromagnétique.....	37
<b>II.2. Transition de paroi dans un nanocylindre de Ni.....</b>	<b>43</b>
<b>II.3. Etats rémanents dans des nanocylindres de multicouches Co/Cu. ....</b>	<b>47</b>
II.3.1. Diagramme d’états dans un disque non planaire. ....	51
II.3.2. Influence du couplage dipolaire.....	53
II.3.3. Influence du rapport d’aspect. ....	55
II.3.4. Vers une reconstruction 3D.....	57
<b>II.4. Conclusion et perspectives sur les nanofils. ....</b>	<b>59</b>
<b>III. Projet de recherche.....</b>	<b>62</b>
<b>III.1. Croissance de matériaux pour les applications en spintronique.....</b>	<b>62</b>
<b>III.2. Développements autour de la magnonique.....</b>	<b>64</b>
III.2.1. Propagation et détection d’ondes de spins dans les cristaux magnoniques : application au filtrage fréquentiel. ....	65
III.2.2. Vers l’imagerie d’ondes de spins par holographie électronique.....	68
<b>IV. Enseignement et formation des étudiants.....</b>	<b>72</b>
<b>CONCLUSION .....</b>	<b>75</b>
<b>REFERENCES.....</b>	<b>76</b>
<b>LISTE DE PUBLICATIONS ET DE CONFERENCES .....</b>	<b>87</b>

# CURRICULUM VITAE

Nicolas Biziere, Français, né le 10/07/1980, marié - un enfant

Chargé de Recherche CNRS, classe normale

Membre du groupe MEM (Matériaux pour l'Electronique et le Magnétisme) au CEMES (UPR 8011)

e-mail : [nicolas.biziere@cemes.fr](mailto:nicolas.biziere@cemes.fr) Tel: +33 5 62 25 78 44

## DIPLÔMES

- **2004-2007 : Thèse de doctorat** de l'université Paris XI intitulée « Détection de radiofréquences par des composants magnétorésistifs ». Sous la direction de Claude Fermon.
- **2002-2003 : Master 3N** "Nano-Physique, Nano-Composant, Nano-Mesure", à l'Institut National des Sciences Appliquées (INSA), Toulouse, France.
- **1998-2003 : Diplôme d'ingénieur** INSA, Génie Physique.

## EXPERIENCE PROFESSIONNELLE

- **Depuis janvier 2011** : Chargé de recherche au CEMES Toulouse.
- **Mai 2009 – Jan 2011** : Post doctorant au Laboratoire des Solides Irradiés, Ecole Polytechnique – CEA Saclay, Palaiseau, France.
- **Mai 2007 – Mai 2009** : Post doctorant à l'Institut de Physique des Nanostructures (IPN), Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL), Suisse.

## ENCADREMENT ET PARTICIPATION A DES JURYS DE THESE

### Participation à des jurys de thèse :

- Xavier de Milly au CEA SPEC, le 29 Novembre 2017 : examinateur
- Iman Abdallah au CEMES, le 23 Mai 2016 : directeur de thèse
- David Reyes au CEMES, 13 Octobre 2016 : invité

### Encadrement de Thèses :

- **2019 – 2022** : Encadrement (100%) de **Sarah Manton**. Détection d'ondes de spins au travers un cristal magnonique.
- **2013-2016** : Co-encadrement (90%) avec E. Snoeck (10%) d'**Iman Abdallah**. Spin dynamics and structural modification of  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  Heusler alloys by He ions irradiation. (3 publications co-signées)

### Encadrement de Stages :

- **Mai 2018** : Co-encadrement avec Aurélien Masseboeuf de **Florianne Hoareau**, M1 université Paul Sabatier. Mise en place de procédé de gravure chimique ou ionique de membrane en nitrure.
- **Juin– Aout 2017** : Encadrement de **Jérémie Cotxet**, stage 4<sup>ème</sup> année INSA Toulouse. Mise en œuvre d'un bâti de gravure par faisceau d'ions  $\text{Ar}^+$ .
- **Sept 2012 – Juin 2013** : Encadrement de **Marie Belgodere et Ludivine Guillaume**, 4<sup>ème</sup> année Génie Physique INSA Toulouse. Projet multidisciplinaire. Instrumentation d'un analyseur de réseau pour mesures hyperfréquences.

## ENSEIGNEMENT depuis 2012

Chaque année, je réalise l'équivalent de 40 heures de TD (mécanique, optique, électromagnétisme) à l'Institut National des Sciences Appliquées (INSA) de Toulouse.

## **PUBLICATIONS ET PRESENTATIONS (liste complète à la fin du manuscrit)**

---

---

- 2 brevets
- 23 articles (revues internationales avec comité de lecture) dont 14 sur la période 2011-2020
- 5 articles de conférences (avec comité de lecture)
- $\approx 350$  citations, h factor = 9.
- 2 présentations orales « invitées » dans des workshops internationaux + 1 présentation orale « invitée » au GDR Ondes CNRS 2451, GT3-Capteurs
- 7 présentations orales dans des conférences internationales + 1 dans un symposium européen
- 1 présentation orale dans une conférence nationale + 1 dans un symposium national
- 3 présentations « poster » dans des conférences internationales + 3 dans des conférences nationales.

## **ACTIVITES SCIENTIFIQUES**

---

---

- **2019 – 2022** : Coordinateur du projet **SWIME** (Spin Waves Imaging by Electron microscopy) financé par le Labex NEXT/NANOX
- **2013- 2016** : ANR jeune chercheur 12-JS10-00801 **NASSICS** (NAno-Structuring for Spin DynamICS)
- **2014 – 2016** : Coordinateur du projet **HEUMAC** (HEUsler based MAgnetic Crystals) financé par le Labex NEXT + soutien de l'université Paul Sabatier pour ce projet.
- **2013** : obtention d'un contrat BQR de l'Université Paul Sabatier pour le développement d'une expérience d'électrodéposition.
- **2018 – 2021** : Partenaire dans l'ANR 18-CE42 -0002 MILF (Magnetic Imaging at Low dimensions & high Frequencies)
- **2013 – 2017** : Partenaire dans l'ANR 12-BS10 -013 EMMA (Electron Microscopy for MAgnetism)
- Rapporteur pour différentes revues (PRL, PRB, APL, JAP, JMMM, MRX) et pour l'ANR.

## **ORGANISATION DE CONFERENCES**

---

---

- Membre du comité d'organisation locale du colloque Louis Néel, Toulouse, Mai 2019.
- Membre du comité d'organisation de la 38ème conférence internationale « Micro and Nano Engineering », Toulouse, Septembre 2012. Responsable de l'organisation des sessions MEMS et NEMS en collaboration avec Jérémie Grisolia de l'INSA Toulouse. Dans le cadre de cette conférence, j'ai été éditeur associé pour la revue MicroElectronic Engineering entre Septembre 2012 et Juillet 2013.

## **ACTIVITES COLLECTIVES AU SEIN DU LABOATOIRE**

---

---

- 2016 - 2021 : Membre élu au conseil de laboratoire du CEMES
- Sept 2014 – Déc 2015 : Animateur de la thématique Nano Matériaux Magnétiques (NMATMAG). Elu par les 8 membres. Activité arrêtée suite à la réorganisation du laboratoire fin 2015 en 7 nouveaux groupes de recherches.



# INTRODUCTION ET CONTEXTE

L'écriture de l'habilitation à diriger des recherches est un engagement à former de futurs docteurs qui implique notamment de réaliser une synthèse de ses travaux, qu'ils soient actuels, antérieurs ou à venir. Dans ce manuscrit, je n'ai voulu aborder que ceux que j'ai pu réaliser depuis mon entrée au CNRS en 2011 et ceux que je souhaite poursuivre à l'avenir. Cependant, il m'est impossible de nier que ceux-ci ont été fortement influencés par le parcours qui m'a amené au CNRS et que je souhaite rappeler ici.

Après des études d'ingénieur à l'INSA de Toulouse, j'ai effectué en 2003 un stage au Trinity College de Dublin dans l'équipe de J.M.D. Coey durant lequel j'ai étudié le piégeage de parois magnétiques dans des réseaux d'antidots par des mesures de magnéto-résistance anisotrope (AMR). Puis, j'ai réalisé entre Janvier 2004 et Janvier 2007, une thèse au Service de Physique de l'Etat Condensé (SPEC) du CEA Saclay sous la direction de Claude Fermon. L'objectif était d'étudier, via l'effet de magnéto-résistance géante (GMR), la réponse d'une vanne de spins à un champ magnétique hyperfréquence. Ceci avait notamment pour but de sonder les capacités de détection à ces fréquences de systèmes similaires aux têtes de lecture pour répondre à l'augmentation des fréquences de travail dans les disques durs. Durant ma thèse, nous avons montré que pour des fréquences de quelques Gigahertz (GHz), typique du fonctionnement des têtes de lecture, la réponse électrique du système était modifiée par les effets de résonance ferromagnétique (RFM) de la couche dite magnétiquement libre mais aussi, et de manière plus surprenante, au couplage dynamique de cette dernière avec la couche dure. En particulier, l'évolution du déphasage relatif entre la précession des deux couches conduit à des variations importantes de l'amplitude du signal de sortie en fonction de la fréquence d'excitation.

Ces travaux m'ont permis de me familiariser avec les techniques de mesures hyperfréquences et de mesures magnéto-résistives en combinant des signaux électriques et magnétiques dans le domaine des Gigahertz (GHz) et en tirant parti du couplage non linéaire entre le courant électrique et la composante dynamique de la GMR. Cette thèse m'a aussi permis de comprendre le lien très étroit pouvant exister entre une problématique technologique (fonctionnement d'une tête de lecture) et une problématique fondamentale (dynamique de spins de systèmes multicouches). Cette façon d'aborder la recherche scientifique m'a particulièrement attiré et m'a guidé, autant que possible, dans mes choix de thématiques à mon entrée au CNRS.

Après ma thèse, j'ai réalisé un premier post-doctorat entre Mai 2007 et Mai 2009 à l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL) sous la direction de Jean Philippe Ansermet pendant lequel j'ai étudié l'effet de transfert de spins résonant associé à un courant électrique radiofréquence. Durant deux ans, j'ai été formé aux techniques d'électrodéposition afin de fabriquer des nano-objets de diamètres inférieurs à 100 nm dans des membranes nano-poreuses en polycarbonate. Avec Elena Murè, étudiante en thèse pendant cette période, nous avons étudié les modes dynamiques d'une structure cylindrique  $\text{Cu}_3 \mu\text{m}/\text{Co}_5 \text{nm}/\text{Cu}_5 \text{nm}/\text{Co}_{40} \text{nm}/\text{Cu}_3 \mu\text{m}$  excitée par un courant de quelques GHz. Nous avons ainsi démontré la complexité du spectre d'excitation autour de la rémanence des deux couches. Nous avons également utilisé cette méthode d'excitation résonante pour modifier et contrôler la valeur du champ de retournement des différentes couches en fonction de la fréquence du courant. Ces études m'ont permis de comprendre qu'un des points clés menant à la compréhension du spectre d'excitation d'ondes de spins d'un nano-objet, y compris au travers les simulations micromagnétiques, était la connaissance précise de sa structure réelle, géométrique ou chimique. Ce point particulier a nourri une partie de mes activités conduites au CEMES.

J'ai ensuite réalisé un second post doctorat entre Mai 2009 et Décembre 2010 sous la direction de Jean Eric Wegrowe, dans le groupe « Physique et Chimie des nano-objets » du Laboratoire des Solides Irradiés (LSI) de l'école Polytechnique à Palaiseau. J'y ai étudié l'effet d'une contrainte mécanique sur la position d'équilibre de l'aimantation d'un nanofil électrodéposé dans une membrane avec l'objectif de développer des capteurs tactiles. Dans nos mesures, la contrainte était obtenue par chauffage grâce à

la différence de dilatation thermique entre la membrane et le nanofil. Dans le cas particulier de matrices piézo-électriques PVDF qui présente une déformation anisotrope, nous avons montré qu'une élévation de température de l'ordre de 10 K est suffisante pour vaincre l'anisotropie de forme et ainsi obtenir une aimantation désalignée de l'axe du nanofil à champ magnétique nul. De plus, l'amplitude de l'effet observé est plus importante que celle pouvant être prédite par un modèle simple de magnétostriction. Le même type d'effet fut observé peu de temps après mon départ en appliquant un champ électrique permettant de déformer la matrice piézo-électrique.

Au-delà de ces travaux sur les couplages magnéto-mécaniques à l'échelle nanométrique, j'ai également travaillé au développement de nouvelles géométries de nano-objets pouvant être obtenues par électrodéposition. Ces travaux ont pu être réalisés grâce aux chimistes du groupe, Marie Claude Clochard et Travis Wade, qui ont fabriqué dans des membranes PVDF des traces ayant la forme de deux cônes se rejoignant en une nano-constriction cylindrique de diamètre pouvant être inférieur à 5 nm. En collaboration avec Michel Viret, chercheur au CEA (SPEC), nous avons observé dans ces systèmes le piégeage de parois vortex de part et d'autre de la constriction. Le dépiégeage et la propagation de ces parois ont pu être contrôlés en appliquant un courant électrique avec une efficacité dépendante de la polarité du courant. Cependant, une grande partie de ces travaux n'ont pas été publiés.

Sur la base de ces différentes expériences, je suis entré au CNRS en Janvier 2011 au Centre d'Elaboration des Matériaux et d'Etudes Structurales (CEMES) de Toulouse dans le groupe Nanomatériaux. L'idée directrice de mon projet de recherche consistait à m'appuyer sur les compétences du laboratoire en caractérisation des matériaux pour mettre en place une méthodologie permettant de comprendre à l'échelle nanométrique l'influence de la structure d'un nano-objet (géométrie locale, variations de compositions chimiques ou de contraintes mécaniques) sur les propriétés magnétiques statiques (états d'équilibres) et dynamiques (spectre d'excitation d'ondes de spins ou mécanismes de relaxation).

A mon arrivée, j'ai été associé aux études débutées par Jean François Bobo sur la réalisation de couches minces d'alliages d'Heusler. J'ai notamment participé activement aux travaux de thèse de Guillermo Ortiz (encadré par Jean François Bobo et Fabrice Boust de l'ONERA), pendant lesquels les méthodes de fabrication de films minces de  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  par pulvérisation cathodique ont été mises au point. A partir de 2013, j'ai développé mes propres activités dans ce domaine en étroite collaboration avec Gérard BenAssayag du CEMES, spécialiste des phénomènes et techniques d'implantation et irradiation ionique. Nous avons notamment cherché à modifier et contrôler le désordre atomique de l'alliage  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  par irradiation aux ions légers, afin d'en comprendre l'influence sur ses propriétés magnétiques. Dans le cadre de l'ANR jeune chercheur NASSICS, j'ai co-encadré avec Etienne Snoeck du CEMES la thèse d'Iman Abdallah sur ce sujet. Nous avons notamment développé ensemble, fin 2013, un banc de mesures par résonance ferromagnétique large bande (jusqu'à 30 GHz) au CEMES. Les résultats expérimentaux obtenus durant cette thèse ont ensuite été confrontés à des calculs ab-initio, en particulier du coefficient de relaxation dynamique. Ces calculs ont été réalisés dans le cadre de la thèse de Barthélémy Pradines (encadré par Lionel Calmels et Rémy Arras du CEMES). La première partie de ce manuscrit présente l'ensemble des résultats obtenus dans cette thématique.

La deuxième partie de ce manuscrit présente l'étude des configurations magnétiques de nano-objets cylindriques fabriqués par électrodéposition. J'ai commencé à développer cette thématique au laboratoire à partir de 2013 en étroite collaboration avec Christophe Gatel du CEMES, spécialiste en holographie électronique, et avec mes anciens collègues du laboratoire LSI de Palaiseau. En combinant holographie électronique et simulations micromagnétiques, nous avons pu cartographier, avec une résolution spatiale inférieure à 5 nm, l'évolution de la structure fine de parois dans des nanocylindres de



nickel ou de multiples configurations rémanentes différentes dans des multicouches Co/Cu. Je présenterai entre autre dans cette partie les méthodes utilisées pour observer et comprendre l'apparition de ces différentes structures magnétiques.

La troisième partie de ce manuscrit présente le projet de recherche que je souhaite poursuivre. Je discuterai d'abord des développements autour de la croissance de matériaux pour répondre à des problèmes technologiques. Ensuite, j'aborderai la problématique de l'excitation et de la détection d'ondes de spins dans des cristaux magnoniques, sujet sur lequel Sarah Manton a débuté une thèse sous ma direction en octobre 2019. Enfin, je présenterai un projet de développement expérimental basé sur l'holographie électronique pour imager des ondes de spins dans les nano-objets.

Comme je l'ai déjà mentionné au début de ce texte, l'HDR est avant tout un engagement à former de jeunes docteurs. Ainsi, je présente dans une dernière partie et en quelques lignes ce que je cherche à mettre en place lors de la formation de jeunes docteurs ou d'étudiants.

D'une manière générale, les deux premiers chapitres sont assez détaillés, notamment au niveau des développements méthodologiques, et pourront aider un éventuel lecteur insomniaque à trouver le sommeil. Pour celui plus pressé souhaitant avoir une idée globale de ce que j'ai pu faire au CEMES et de ce que je souhaite faire à l'avenir, je l'invite à consulter directement la conclusion du manuscrit. Je souhaite insister ici sur le fait que l'ensemble des résultats que j'ai pu obtenir durant ces années est le fruit de diverses collaborations, que ce soit avec des collègues spécialistes dans leurs domaines, ou bien avec des étudiants en thèse ou des stagiaires. Je tiens ici à les remercier tous. Aussi, j'ai décidé d'utiliser dans ce manuscrit le « nous » plutôt que le « je » pour décrire ces travaux.



Dans tout ce manuscrit, les références surlignées en rouge correspondent aux travaux auxquels j'ai participé.

## I. Influence du désordre atomique sur les propriétés magnétiques de l'alliage d'Heusler $\text{Co}_2\text{MnSi}$ .

### I.1. Quelques généralités sur les alliages d'Heusler : le $\text{Co}_2\text{MnSi}$ comme système modèle.

En 1903, Fritz Heusler découvrit que l'alliage  $\text{Cu}_2\text{MnAl}$  présentait une phase ferromagnétique bien qu'aucun de ses constituants individuels ne montrait d'ordre magnétique [1]. Depuis cette découverte, plus d'un millier d'alliages d'Heusler ont été rapportés dans la littérature. Dans cette famille de matériaux intermétalliques, de très nombreux composés présentent un ordre magnétique (ferro, ferri ou anti-ferro magnétique). Ceux-ci présentent généralement une structure cristallographique cubique du type  $L2_1$ ,  $B2$  ou  $C1_b$  et peuvent être binaires, ternaires ou quaternaires, de composition respectivement  $X_3Z$ ,  $XYZ$  ou  $X_2YZ$  et  $X_1X_2YZ$ . Ici, X et Y sont de la famille des métaux de transition et Z appartient aux éléments du groupe *sp* (voir Tableau 1). Aujourd'hui, ces matériaux ouvrent de nouvelles perspectives dans de nombreux domaines tels que la spintronique, les semi-conducteurs, les applications thermoélectriques, optiques et bien d'autres encore [2], [3].

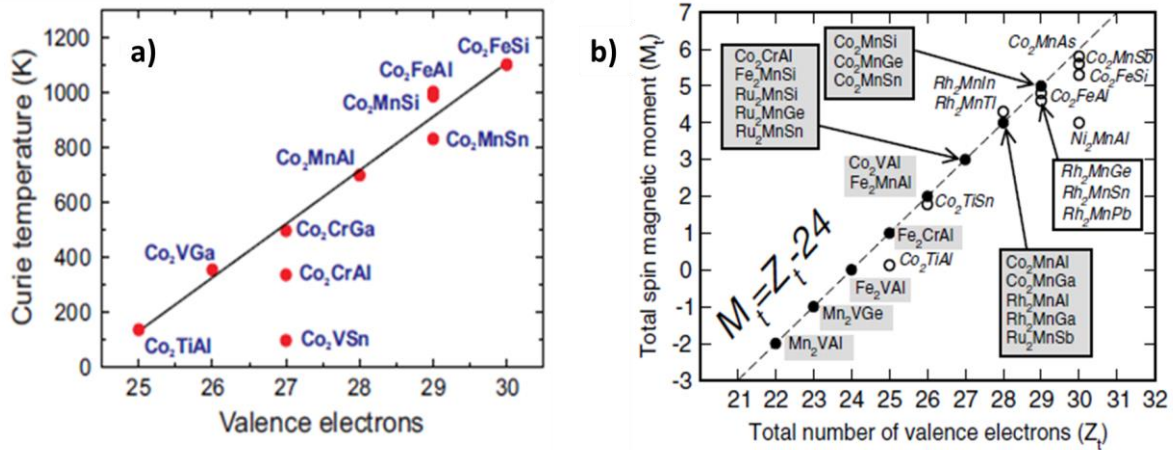
$X_2YZ$  Heusler compounds

H 2.20																	He	
Li 0.98	Be 1.57											B 2.04	C 2.55	N 3.04	O 3.44	F 3.98	Ne	
Na 0.93	Mg 1.31											Al 1.61	Si 1.90	P 2.19	S 2.58	Cl 3.16	Ar	
K 0.82	Ca 1.00	Sc 1.36	Ti 1.54	V 1.63	Cr 1.66	Mn 1.55	Fe 1.83	Co 1.88	Ni 1.91	Cu 1.90	Zn 1.65	Ga 1.81	Ge 2.01	As 2.18	Se 2.55	Br 2.96	Kr 3.00	
Rb 0.82	Sr 0.95	Y 1.22	Zr 1.33	Nb 1.60	Mo 2.16	Tc 1.90	Ru 2.20	Rh 2.26	Pd 2.20	Ag 1.93	Cd 1.69	In 1.78	Sn 1.96	Sb 2.05	Te 2.10	I 2.66	Xe 2.60	
Cs 0.79	Ba 0.89	Hf 1.30	Ta 1.50	W 1.70	Re 1.90	Os 2.20	Ir 2.20	Pt 2.20	Au 2.40	Hg 1.90	Tl 1.80	Pb 1.80	Bi 1.90	Po 2.00	At 2.20	Rn		
Fr 0.70	Ra 0.90																	
		La 1.10	Ce 1.12	Pr 1.13	Nd 1.14	Pm 1.13	Sm 1.17	Eu 1.20	Gd 1.20	Tb 1.10	Dy 1.22	Ho 1.23	Er 1.24	Tm 1.25	Yb 1.10	Lu 1.27		
		Ac 1.10	Th 1.30	Pa 1.50	U 1.70	Np 1.30	Pu 1.28	Am 1.13	Cm 1.28	Bk 1.30	Cf 1.30	Es 1.30	Fm 1.30	Md 1.30	No 1.30	Lr 1.30		

Tableau 1 : Tableau périodique présentant les éléments composants les alliages d'Heusler. Tiré de [4].

Les Heusler sont longtemps restés des « objets de laboratoire », notamment en raison de la difficulté à décrire et comprendre leurs nombreuses propriétés physiques (optiques, magnétiques, électriques ou mécaniques). Cependant, dans le domaine du magnétisme, ils ont connu un regain d'intérêt très important au début des années 2000 avec l'objectif d'améliorer les performances des composants à magnéto-résistance géante (GMR) et magnéto-résistance tunnel (TMR). En effet, suite aux travaux pionniers de De Groot au début des années 1980 sur la structure de bande électronique des alliages  $\text{NiMnSb}$  et  $\text{PtMnSb}$  obtenue par des méthodes ab-initio [5], un grand nombre de ces alliages étaient supposés montrer une polarisation en spin au niveau de Fermi de 100% (= demi-métallique). Parmi ceux-ci, les alliages du type  $\text{Co}_2YZ$ , ont particulièrement attiré l'attention du fait de leur forte température de Curie, un paramètre important pour la stabilité des composants de type capteurs embarqués (pour l'automobile par exemple). Comme le montre la Figure 1.a, ceux pour lesquels  $Y=\text{Mn}$  ou  $\text{Fe}$  présentent des températures de Curie au-dessus de 700 K (985 K pour le  $\text{Co}_2\text{MnSi}$ ), ce qui leur

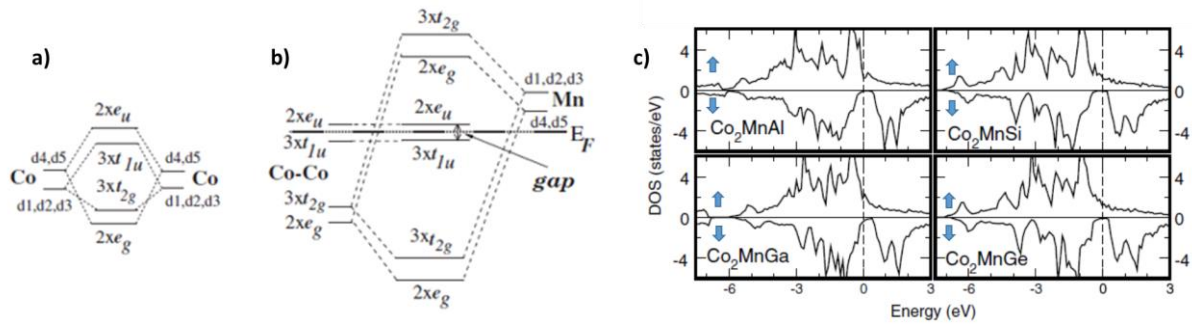
confère une bonne stabilité de leurs propriétés à la température de fonctionnement des composants (en général autour de 100° soit 400K).



**Figure 1** : Evolution de la température de Curie (a) et du moment magnétique (b) en fonction du nombre d'électrons de valence pour une série d'alliages du type Co<sub>2</sub>YZ. La température de Curie est estimée à partir de calculs ab-initio. Tiré de [6]. Le comportement de type Slater Pauling du moment magnétique est schématisé par la courbe pointillée dans la figure (b). Tiré de [7].

Un autre paramètre important pour certaines applications est la valeur du moment magnétique. Il a été démontré que le moment magnétique total  $M_t$  par cellule élémentaire des alliages  $X_2YZ$  suit globalement une loi de type Slater Pauling avec une dépendance de la forme  $M_t = Z_t - 24$ . Ici  $Z_t$  représente la somme des électrons sur les orbitales  $3d$  et  $4s$  pour les atomes  $X$  et  $Y$ , ajoutée aux électrons sur les orbitales  $s$  et  $p$  pour les atomes  $Z$ . Ainsi avec les structures du cobalt  $3d^7 4s^2$ , du Mn  $3d^5 4s^2$  et du Si  $3s^2 3p^2$ , nous obtenons  $Z_t = 29$  et  $M_t = 5 \mu_B$ / cellule élémentaire. Pendant longtemps, l'origine de cette loi ainsi que l'apparition d'un gap dans la densité d'états en spins minoritaires pour les alliages  $X_2YZ$  ont été débattues. Une première tentative d'explication a été donnée par Galanakis *et al.* en 2002 [8], en particulier dans le cas où  $X = Co$  et  $Y = Mn$ . Le mécanisme sous-jacent est schématisé dans la Figure 2 dans lequel seuls les états pour les spins minoritaires sont représentés. Le point de départ est l'hybridation des orbitales  $d$  entre les deux atomes de Co conduisant à la création de 5 orbitales liantes ( $e_g$  et  $t_{2g}$ ) et 5 anti-liantes ( $t_{1u}$  et  $e_u$ ). Les orbitales liantes  $e_g$  et  $t_{2g}$  ainsi formées vont ensuite s'hybrider avec les orbitales  $d$  du Mn pour former de nouvelles orbitales liantes alors que les orbitales anti-liantes  $t_{1u}$  et  $e_u$  ne peuvent se coupler avec les orbitales  $d$  du Mn pour des raisons de symétrie. Celles-ci vont ainsi garder le même niveau d'énergie. Au final nous obtenons une série d'orbitales liantes ou anti-liantes réparties autour du niveau de Fermi qui, lui, est juste entre les niveaux d'énergie  $t_{1u}$  et  $e_u$  nés de l'hybridation du cobalt.

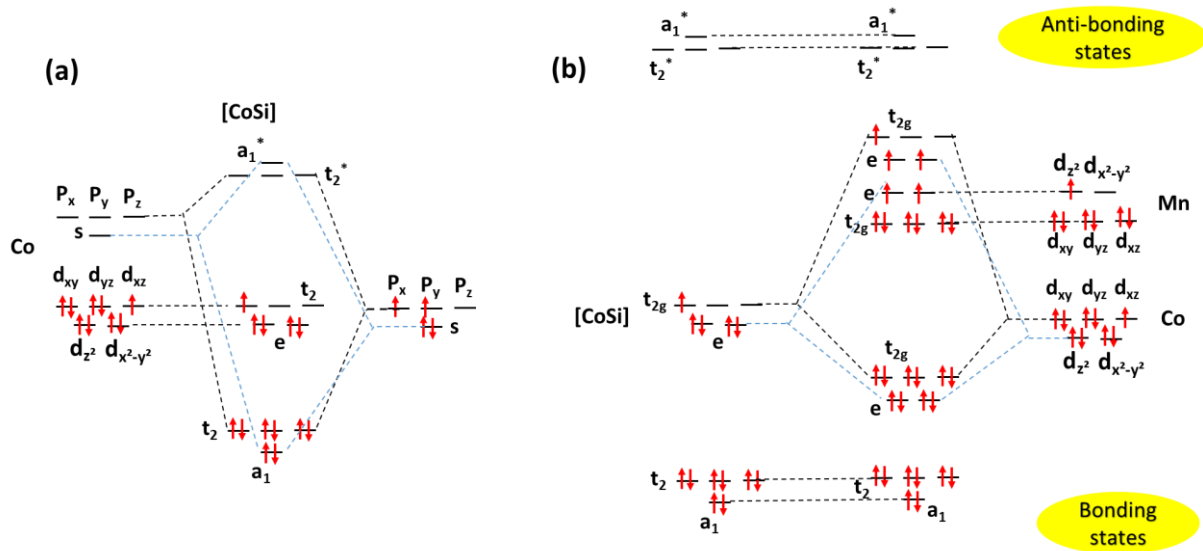
Dans ce modèle, l'apparition du gap en énergie pour les spins minoritaires provient uniquement de l'hybridation des orbitales  $d$  du Co et l'amplitude du gap ne dépend que de la distance entre atomes de Co qui définit l'écart en énergie entre  $t_{1u}$  et  $e_u$ . Il y a 8 états de type  $d$  disponibles pour les électrons minoritaires auxquels il faut rajouter 1 état de type  $s$  et 3 états de type  $p$ . Ainsi, il n'y a que 12 états de spins minoritaires disponibles. En écrivant que le nombre d'électrons périphériques total est  $Z_t = N_\uparrow + N_\downarrow$  et le moment  $M_t = N_\uparrow - N_\downarrow$ , avec  $N_\uparrow$  et  $N_\downarrow$  respectivement le nombre d'électrons de spins majoritaires et minoritaires total issus des orbitales  $s, p$  et  $d$  des atomes  $X, Y$  et  $Z$ , on obtient  $M_t = Z_t - 2 \times N_\downarrow = Z_t - 24$ . Cependant, bien qu'il explique de nombreux résultats, le modèle proposé par Galanakis *et al.* présente l'inconvénient que l'atome  $Z$  n'est pris en compte qu'au travers sa contribution à  $Z_t$ .



**Figure 2** : Mécanisme d'hybridation des orbitales  $d$  entre deux atomes de Co (a) et avec l'atome de Mn (b). Les nombres devant chaque orbitale correspondent au nombre d'états dégénérés. (c) Densité d'états résolue en spin pour plusieurs alliages du type  $Co_2MnZ$ . Tiré de [8].

D'autres modèles ont ensuite été développés pour expliquer la courbe de type Slater Pauling de nombreux alliages d'Heusler. Une revue détaillée des différents mécanismes mis en jeu est présentée par T. Graf *et al.* dans [4]. Dans le cas particulier du  $Co_2MnSi$ , cette fois le point de départ est l'hybridation initiale des orbitales  $s$  et  $p$  d'un atome de Co et d'un atome de Si. Le complexe  $CoSi$  va ensuite s'hybrider avec les orbitales  $d$  du second atome de Co et celles de l'atome de Mn. Dans cette approche, résumée schématiquement dans la Figure 3, nous retrouvons une série d'orbitales liantes et anti-liantes. La différence avec le modèle de Galanakis *et al.* est qu'ici les électrons remplissent d'abord intégralement des orbitales liantes (jusqu'à l'orbitale  $t_{2g}$  dans la Figure 3), puis un seul un électron est placé dans chaque orbitale anti-liante, ce qui est énergétiquement favorable. On retrouve ainsi la dépendance  $M_t = Z_t - 24$  puisque là encore seul 12 états de spins minoritaires sont disponibles.

Un exemple de tracé de la densité d'états électroniques résolue en spins est présenté dans la Figure 2.c pour différents alliages du type  $Co_2MnZ$ . Pour la plupart des composés, on observe clairement un gap au niveau de Fermi pour les électrons minoritaires. Notons que ces calculs sont réalisés pour des structures parfaites de type  $L2_1$ . Comme discuté ci-dessous, l'ordre structural ainsi que des effets d'interfaces peuvent induire des modifications dans ces densités d'états et l'apparition d'états de spins minoritaires au niveau de Fermi. L'apparition de ce gap a également un impact important sur  $\alpha$ , le coefficient de relaxation dynamique de type Gilbert, qui va déterminer les pertes hyperfréquences. De manière générale, dans les métaux ferromagnétiques,  $\alpha$  dépend de la densité d'états totale au niveau de Fermi. L'absence d'états de spin minoritaire diminue ainsi  $\alpha$  en empêchant notamment les transitions électroniques inter-bandes [9], [10]. Les premiers calculs théoriques de  $\alpha$  pour le  $Co_2MnSi$  prédisaient des valeurs en dessous de  $10^{-4}$  (sans prendre en compte les effets de la température). D'autres études plus récentes ont ensuite prédit des valeurs plus proches de la réalité de l'ordre de  $2 \cdot 10^{-4}$  [11], [12], avec notamment une forte augmentation avec la température, démontrant tout de même une plus-value indéniable vis-à-vis des métaux ferromagnétiques classiques habituellement utilisés dans l'industrie tel que le permalloy ( $\alpha \approx 7 \cdot 10^{-3}$ ), le fer ( $\alpha \approx 4 \cdot 10^{-3}$ ) ou le  $CoFeB$  ( $\alpha \approx 2 \cdot 10^{-2}$ ). Notons que la recherche de matériaux avec un faible  $\alpha$  est un enjeu technologique important pour les applications dans lesquelles le retournement de l'aimantation est assisté par effet de transfert de spin et avec une densité de courant électrique nécessaire au retournement de l'aimantation directement proportionnelle à  $\alpha$ .



**Figure 3 :** (a) Mécanisme d'hybridation des orbitales entre un atome de Co et de Si et (b) entre le complexe CoSi et les atomes de Mn et Co restants. D'après [4].

Lorsque j'ai commencé à étudier l'alliage  $Co_2MnSi$  en 2011, j'ai constaté que les propriétés remarquables décrites plus haut n'étaient que très rarement (pour ne pas dire jamais) observées. En effet, bien qu'étudié depuis de nombreuses années, ce n'est qu'à partir de 2014 qu'une polarisation de surface proche de 100% fut mesurée par M. Jourdan et al. [13]. De même, les premières mesures d'un  $\alpha$  sous les  $10^{-3}$  datent de 2016 ( $\approx 7 \cdot 10^{-4}$ , S. Andrieu et al. [14], C. Guillemard et al. [15]). Depuis quelques articles font état de valeurs similaires, mais sur des bases d'extrapolation de  $\alpha$  à partir de mesures brutes très largement au-dessus des  $10^{-3}$ . Jusque-là, les valeurs de  $\alpha$  mesurées étaient généralement un ordre de grandeur supérieur à ce qui peut être attendu et très peu d'études faisaient état en 2015 de valeurs en dessous de  $3 \cdot 10^{-3}$ .

Une des raisons souvent évoquées pour expliquer le désaccord entre les prédictions théoriques et les expériences (aimantation, polarisation en spins, coefficient de relaxation) est la présence de défauts de structure dans le matériau qui pourraient être à l'origine d'une perte de polarisation et d'une augmentation de  $\alpha$  [16], [17]. En effet, les propriétés magnétiques des Heusler dépendent fortement de l'ordre cristallin dans lequel se trouve l'alliage. La Figure 4 présente les quatre phases cristallographiques dans lesquelles peuvent croître les alliages d'Heusler à base de Cobalt ainsi que les informations sur les propriétés magnétiques associées issues de la littérature au début de notre étude.

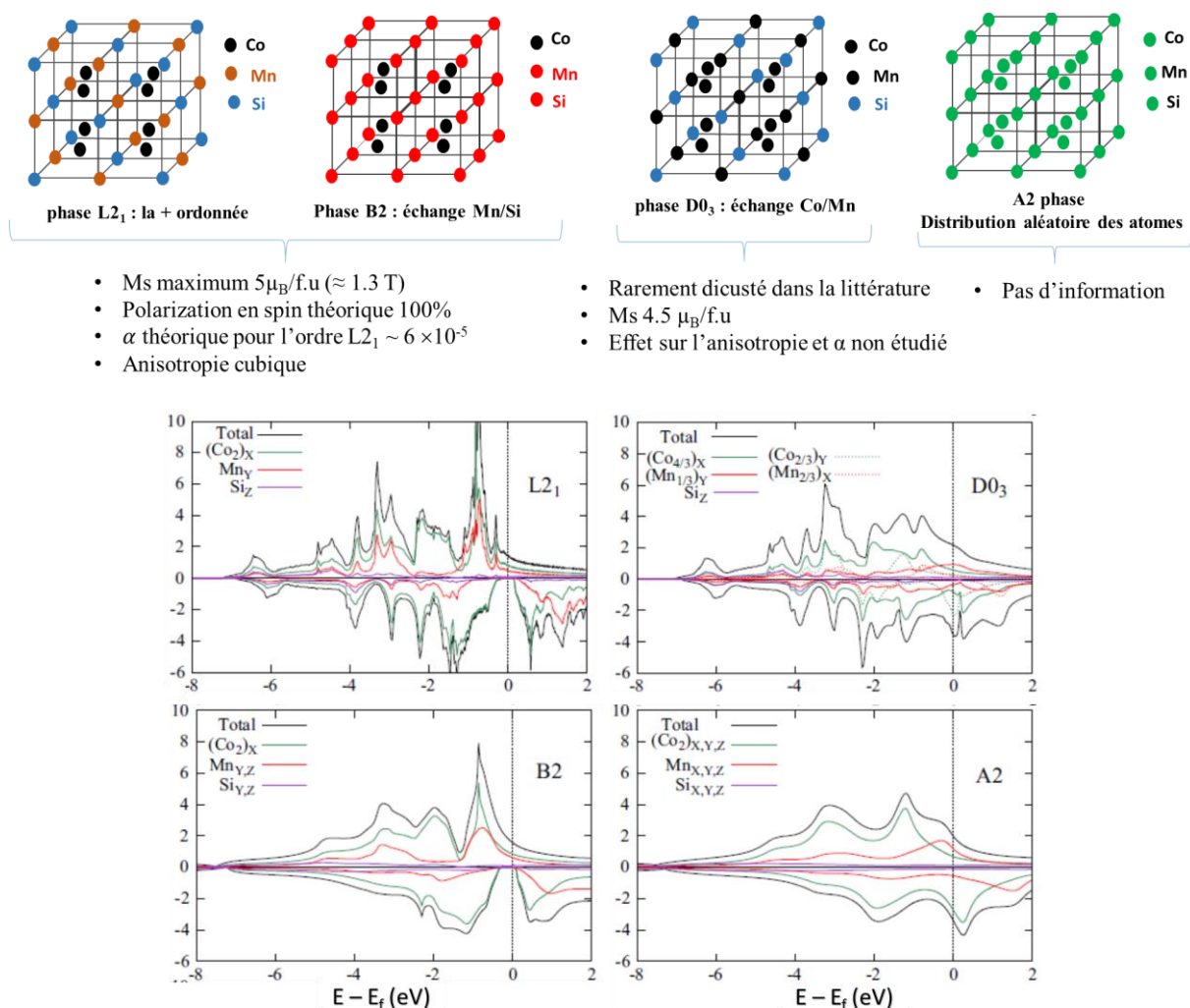
Préférentiellement, les alliages  $Co_2YZ$  cristallisent dans l'ordre le plus élevé  $L2_1$  (groupe d'espace  $Fm\bar{3}m$ ). Ceci correspond à l'enchevêtrement de 4 sous-réseaux de type cubique face centrée (FCC) dans lesquels les atomes de Co, Mn et Si occupent les positions de Wyckoff 8c ( $\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4}$ ), 4a (0,0,0) et 4b ( $\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2}$ ) respectivement. Le paramètre de maille théorique est de 5.65 Å. La phase B2 correspond quant à elle à un équi-répartition des atomes de Mn et Si sur leurs sites initiaux. Pour ces deux phases, les calculs de structure de bandes électroniques prédisent que le matériau est demi-métallique avec un gap au niveau de Fermi pour les spins minoritaires, et une valeur du moment magnétique de 5  $\mu_B$ / cellule élémentaire. Le coefficient de relaxation dynamique est faible ( $<10^{-3}$ ), bien qu'un peu plus élevé dans la phase B2 en raison d'une densité d'états des spins majoritaires légèrement plus importante au niveau de Fermi par rapport à la phase  $L2_1$ . Enfin, le matériau présente une anisotropie cubique pour ces deux phases. La constante d'anisotropie étant négative, les axes de difficile aimantation sont parallèles aux arrêtes du cube alors que les axes faciles sont le long des diagonales.

En revanche, très peu d'informations peuvent être obtenues dans la littérature concernant les deux autres phases possibles. La phase  $D0_3$  correspond au mélange des atomes de Co et de Mn avec une



probabilité de trouver un atome de Mn sur un site de Co de  $2/3$ . La phase A2 quant à elle correspond à la situation où l'ensemble des atomes se répartissent de manière aléatoire sur les différents sites atomiques disponibles. Pour la phase  $D0_3$ , Picozzi *et al.* [18] ont calculé la densité d'états électroniques en présence d'un échange entre deux atomes de Co et de Mn parmi 32 mailles élémentaires. Leurs résultats prédisaient l'apparition d'un pic en énergie pour les spins minoritaires proche du niveau de Fermi (à environ 0.2 eV), ce qui a pour conséquence d'abaisser le moment magnétique total de 10% ( $4.5 \mu_B$ /cellule élémentaire) tout en conservant le caractère demi-métallique. Plus récemment, nous avons utilisé le code de calcul SPR-KKR (voir partie I.2.4) avec lequel nous avons calculé le moment magnétique total en présence d'une phase  $D0_3$  complète. Nous avons alors obtenu des états de spin minoritaire au niveau de Fermi (Figure 4), brisant ainsi la demi-métallicité, et un moment magnétique de l'ordre de  $3.5 \mu_B$ /cellule élémentaire [19]. Ceci est en accord avec les travaux de Pandey *et al.* [20].

D'autres types de défauts peuvent modifier fortement la densité d'états dans ces alliages tels que la présence d'atomes de cobalt en remplacement d'atomes de manganèse par exemple (défauts d'anti-sites). Dans ce cas le matériau n'est plus stœchiométrique. Le plan de terminaison de surface joue également un rôle sur la polarisation des derniers plans atomiques, notamment dans le cas où le plan terminal est un plan de cobalt [21], [22].



**Figure 4 :** (haut) Les différentes phases cristallines du  $Co_2MnSi$  et les informations issues de la littérature en 2013. (Bas) Densités d'états résolues en spin pour chacune des phases cristallographiques. Les calculs sont réalisés avec le code SPR-KKR. Tiré de [19].

*Le potentiel de ces matériaux pour les applications en spintronique et pour le développement d'applications hyperfréquences sont les raisons principales qui m'ont motivé à m'y intéresser à mon arrivée au CNRS. Partant de l'hypothèse que les désaccords entre expérience et théorie provenaient des défauts de structure sans qu'il n'y ait pour autant de démonstration expérimentale évidente, nous avons cherché à suivre l'évolution des propriétés magnétiques statiques et dynamiques du  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  lorsqu'un désordre atomique est induit dans le matériau. Pour cela, nous avons modifié sa structure par irradiation ionique aux ions légers  $\text{He}^+$  à 150 KeV et nous avons mesuré les propriétés magnétiques par résonance ferromagnétique large bande. Ces travaux ont fait l'objet de la thèse d'Iman Abdallah, que j'ai co-encadrée avec Etienne Snoeck et qui a été financée dans le cadre de l'ANR Jeune chercheur NASSICS que je coordonnais. La fabrication des films minces au CEMES s'est basée sur les travaux préliminaires réalisés pendant la thèse de Guillermo Ortiz, encadré par J.F Bobo du CEMES et F. Boust de l'ONERA, et dans laquelle j'ai été très impliquée durant les deux dernières années. Les calculs présentés ci-dessous et qui se sont basés sur nos mesures expérimentales, ont été réalisés par Barthélémy Pradines qui était encadré par L. Calmels et R. Arras du CEMES.*

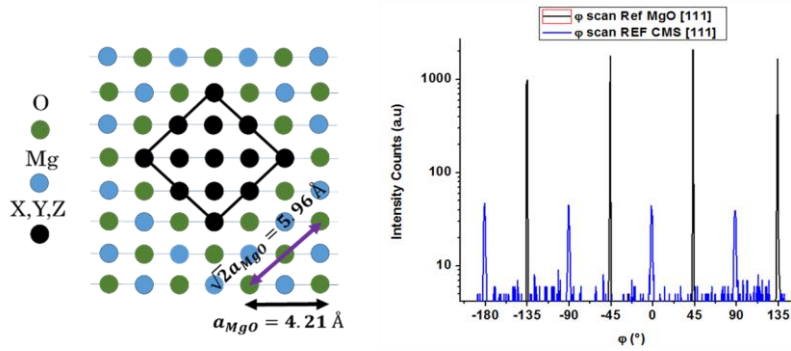
## **I.2. Influence de l'irradiation ionique aux ions $\text{He}^+$ sur les propriétés structurales de l'alliage $\text{Co}_2\text{MnSi}$ .**

*Dans la suite de cette partie l'alliage  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  sera appelé CMS (pour essayer d'être un peu plus concis). Durant la thèse d'Iman Abdallah, nous avons étudié de nombreux échantillons qui ont présentés des propriétés magnétiques et structurales globalement équivalentes. Les résultats détaillés dans cette section sur un seul échantillon modèle reflètent les différents résultats obtenus. Enfin, au-delà des résultats scientifiques en eux-mêmes, j'ai voulu mettre également en avant les développements méthodologiques que nous avons réalisés avec Iman Abdallah et Gérard BenAssayag et qui nous ont permis d'avoir une approche différente de celle proposée dans la littérature.*

### **I.2.1. Fabrication de films minces de $\text{Co}_2\text{MnSi}$ et principe de l'irradiation ionique.**

Afin d'étudier l'influence du désordre atomique sur les propriétés magnétiques du CMS, nous avons déposé au CEMES par pulvérisation cathodique (sputtering) des films minces d'environ 40 nm d'épaisseur sur des substrats de MgO orientés [001]. L'épaisseur des couches est définie de manière à être suffisamment faible pour permettre aux ions  $\text{He}^+$  utilisés dans les expériences d'irradiation ionique de traverser intégralement la couche. Mais elle est aussi suffisamment épaisse pour obtenir de bonnes propriétés magnétiques. En effet, durant la thèse de G. Ortiz, nous avons constaté que pour des films d'épaisseur inférieure à 10 nm, des effets de diffusion d'espèces chimiques aux interfaces apparaissent, modifiant fortement les propriétés intrinsèques du matériau. En particulier une couche d'environ 1 nm d'épaisseur enrichie en Co apparaît à l'interface avec le MgO [23], augmentant le moment magnétique total et le coefficient de relaxation dynamique  $\alpha$ . Ce phénomène n'a pas été observé pour des couches plus épaisses.





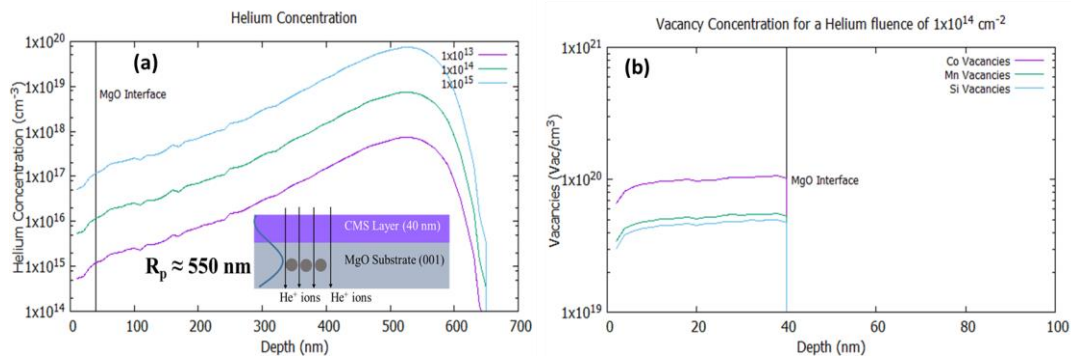
**Figure 5 :** (gauche) Schéma de principe de l'organisation du CMS sur MgO. (droite)  $\phi$  scan en diffraction X sur le pic (111) montrant la rotation à  $45^\circ$  des axes du CMS par rapport aux axes du MgO.

Le CMS croit à  $45^\circ$  des axes  $\langle 100 \rangle$  dans le plan de l'interface avec le MgO afin de réduire le désaccord de maille qui est théoriquement égal à 5.4% dans le cas où le paramètre de maille du CMS est de  $5.65 \text{ \AA}$  (Figure 5). La croissance du CMS s'effectue après avoir déposée une couche tampon d'environ 5 nm de MgO par homo-épitaxie sur le substrat afin de réduire la présence de défauts, et notamment la présence de carbone en surface. Après le dépôt de la couche tampon, le CMS est déposé à  $500^\circ$  par pulvérisation cathodique en mode RF. Le dépôt est réalisé en utilisant deux cibles stœchiométriques  $\text{Co}_{50\%}\text{Mn}_{25\%}\text{Si}_{25\%}$  en configuration face à face. Cette configuration permet de garder la stœchiométrie du dépôt et de réduire la vitesse d'arrivée des atomes sur le substrat, favorisant ainsi une croissance épitaxiale. Puis, un recuit de 2h à  $750^\circ$  est effectué afin d'améliorer l'ordre cristallin. Enfin, l'échantillon est recouvert d'une couche de 10 nm de MgO qui permettra d'isoler électriquement le film pour des mesures de résonance ferromagnétique. Nous avons également testé des dépôts avec une couche tampon de chrome, dans l'objectif de réduire le désaccord de maille (2.4% avec le MgO et 2.6% avec le CMS). Cependant ces échantillons présentaient une disparition de l'anisotropie cubique ainsi qu'une augmentation de  $\alpha$  [24], probablement en raison de phénomènes de diffusion du Cr aux interfaces pendant le recuit du CMS, phénomène assez fréquent.

Les échantillons fabriqués ont été découpés en plusieurs morceaux, l'un servant de référence et les autres étant irradiés avec des ions  $\text{He}^+$  à une énergie de 150 KeV pour différentes fluences (nb ions/cm<sup>2</sup>) afin de modifier la structure du matériau. L'irradiation de nos échantillons a été réalisée au CEMES. L'intérêt des ions de gaz inerte comme  $\text{He}^+$  est qu'ils n'interagissent pas chimiquement avec le CMS. Les principes généraux de l'interaction ion-matière lors des processus collisionnels peuvent être trouvés dans ces références [25], [26]. Sans entrer trop dans le détail, les ions énergétiques incidents vont transférer une partie plus ou moins importante de leur énergie cinétique en interagissant avec le matériau lors de collisions binaires. Le long du parcours ionique, l'échange d'énergie a lieu au travers deux types d'interactions, nucléaires et électroniques, qui co-existent avec un poids respectif qui dépend des conditions expérimentales.

La première interaction, dite nucléaire, est prédominante dans le cas d'ions lourds et peu énergétiques. La perte d'énergie de l'ion incident se fait par des chocs élastiques avec les atomes du matériau, ce qui peut engendrer des déplacements d'atomes sur de grandes distances créant des défauts ponctuels, types paires de Frenkel, constituées d'un atome en position interstitiel et d'une lacune située à l'endroit d'où l'atome initial est parti. S'il a assez d'énergie, l'atome primaire éjecté de sa position peut à son tour induire des collisions secondaires et créer une cascade tandis que l'ion incident ainsi que les différents atomes déplacés finiront par s'arrêter. La seconde interaction, dite électronique, est généralement prédominante pour les ions légers et/ou à haute énergie, ce qui est typiquement notre cas ici. Dans cette situation, l'ion incident interagit de manière inélastique avec le cortège électronique des atomes de la cible, la perte d'énergie s'apparente à ce qui se passe dans un liquide visqueux. L'énergie transférée est beaucoup plus faible que pour l'interaction nucléaire et les déplacements d'atomes sont

beaucoup plus rares et de beaucoup plus courte portée. L'énergie donnée aux électrons des atomes est relaxée vers le réseau cristallin en créant des phonons, augmentant ainsi la température du système qui peut aider à la recombinaison des éventuelles paires de Frenkel créées. Dans le domaine d'énergie et de fluence que nous avons pu explorer, l'interaction ion/matière est cumulative par nature. Ainsi, par des implantations successives, nous avons pu explorer sur un même échantillon la réponse du matériau à fluence croissante.



**Figure 6 :** (a) Concentration d'ions He<sup>+</sup> implantés pour différentes fluences d'irradiation en fonction de la position au travers l'interface CMS/MgO. (b) Nombre de lacunes créées pour chaque type d'atomes pour une fluence d'irradiation de 10<sup>14</sup> ions/cm<sup>2</sup>. Tous les calculs ont été réalisés avec le logiciel IPROS pour une énergie des ions incidents de 150 KeV.

Dans nos expériences, les ions He<sup>+</sup> qui sont des ions très légers ( $Z=2$ ) traversent presque intégralement le matériau pour s'implanter à environ 600 nanomètres dans le substrat, minimisant ainsi l'implantation d'atomes étrangers à la structure (Figure 6.a). L'interaction avec le CMS à cette énergie est quasi exclusivement de type électronique. Ainsi, deux types de comportement peuvent être attendus. De manière très simplifiée, à faible fluence ( $\leq 10^{15}$  ions/cm<sup>2</sup>), l'irradiation agit plutôt comme un faible recuit local permettant une réorganisation à courte distance du matériau. En revanche pour des fluences supérieures, l'irradiation va permettre des échanges de position sur de plus grandes distances jusqu'à induire des défauts ponctuels de type paires de Frenkel.

Afin de fixer les fluences de travail, Gérard BenAssayag (CEMES) a réalisé des simulations Monte Carlo de dommage et de trajectoire des ions en utilisant le logiciel IPROS, développé au CEMES. Ces résultats sont montrés dans la Figure 6. Pour une fluence de 10<sup>14</sup> ions/cm<sup>2</sup>, l'estimation du nombre d'ions d'He<sup>+</sup> implantés est de l'ordre de 1 pour 10<sup>8</sup> atomes de CMS (densité  $\approx 9 \cdot 10^{23}$  at.cm<sup>-3</sup>), ce qui est négligeable (Figure 6.a). Pour la même fluence, la simulation Figure 6.b montre que chaque type d'atome est impacté de la même manière, le dommage pour les atomes de cobalt étant le double du Mn et du Si en raison de la stœchiométrie du matériau. Le nombre de lacunes créées est toujours surestimé car, lors des simulations, le matériau est supposé amorphe et à température nulle. Ainsi les recombinaisons thermiques des paires de Frenkel sont ignorées, tout comme la structure cristalline du matériau et les énergies de liaisons chimiques. Ainsi, nous considérons que seulement 10% des paires de Frenkel survivent, ce qui est la valeur généralement admise dans la littérature pour les simulations de dommage induit par irradiation ionique aux ions légers dans les semi-conducteurs. Ceci conduit à environ 2% de lacunes simulées pour une fluence de 10<sup>16</sup> ions/cm<sup>2</sup> mais la valeur réelle est très certainement bien inférieure. Par exemple dans les travaux de Gaier *et al.* [27] un taux de survie des paires de Frenkel de 1% est considéré. Au final, nous avons donc choisi de travailler avec des fluences comprises entre 10<sup>14</sup> et 10<sup>16</sup> ions/cm<sup>2</sup> afin d'explorer les différents effets potentiels (effet de type recuit ou effet de type dommage).

Il est intéressant de noter que l'irradiation ionique est un procédé universellement utilisé dans l'industrie des semi-conducteurs pour lesquels les mécanismes de dommage sont bien connus (en

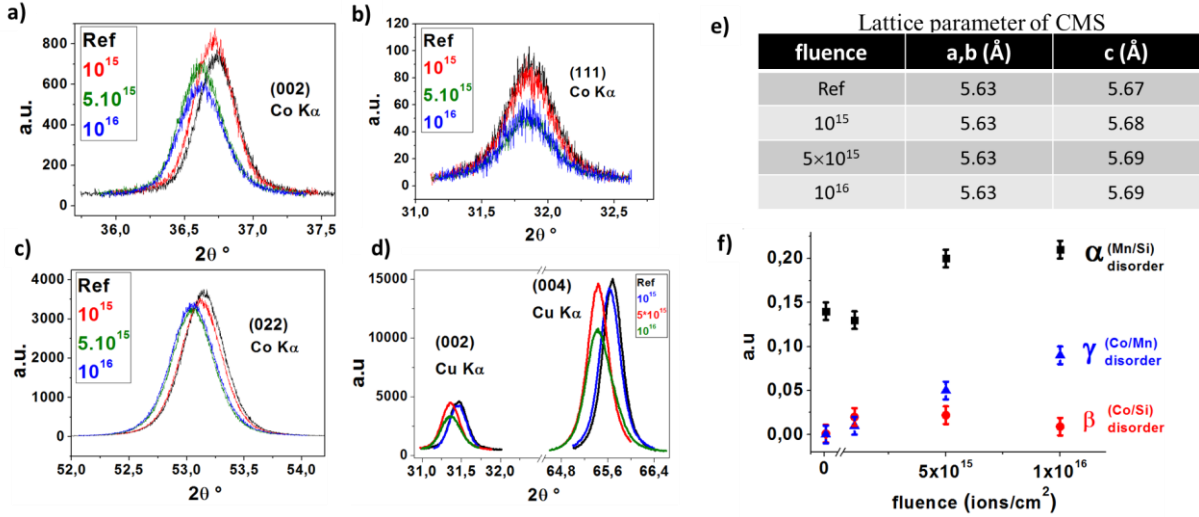
particulier dans le silicium). Dans l'industrie de la micro-électronique, on parle surtout d'implantation ionique car l'énergie des ions est calculée afin qu'ils s'arrêtent dans la couche dont on souhaite modifier les propriétés (par exemple pour le dopage mais aussi pour induire des contraintes mécaniques etc.). En revanche, peu d'études concernent les métaux et les mécanismes d'interactions ion/matière dans ceux-ci sont relativement mal compris. Cependant, cette technique a été appliquée avec succès à différents matériaux magnétiques pour en modifier les propriétés. En particulier, il a été montré que l'irradiation aux ions He<sup>+</sup> permet d'améliorer la qualité cristalline et les propriétés magnétiques d'alliages du type FePt mais elle peut aussi induire des phénomènes d'inter-mixing à forte fluence [28]–[30].

Au début de notre travail, seul une étude (Gaier *et al.* [27], [31]), faisait état de l'influence de l'irradiation ionique sur les propriétés d'un alliage de CMS. En partant d'un échantillon présentant une phase B2 puis irradié aux ions He<sup>+</sup> à une énergie de 30 keV ils ont observé une amélioration de l'ordre à longue portée pour des fluences jusqu'à 5.10<sup>14</sup> ions/cm<sup>2</sup> puis une dégradation des propriétés du matériau au-dessus de 10<sup>15</sup> ions/cm<sup>2</sup>, sans changement de phase. Leur interprétation de l'amélioration de l'ordre B2 serait une possible réduction de défauts de type A2 sous l'effet de l'irradiation. En 2019, Hammerath *et al.* [32] ont observé une transition directe de la phase L2<sub>1</sub> vers la phase A2 dans un échantillon de CMS irradié aux ions He<sup>+</sup> à 30 KeV. Leur interprétation de cette transition se base sur la recombinaison stochastique des lacunes créées par l'irradiation avec les atomes déplacés.

### **I.2.2. Mise au point d'une méthodologie d'analyse structurale pour le Co<sub>2</sub>MnSi.**

Nous avons d'abord étudié par diffraction X les paramètres structuraux des films que nous avons élaborés (Figure 7). Les paramètres de maille obtenus pour l'échantillon de référence montrent une légère déformation tétragonale puisque les paramètres a et b dans le plan valent 5.63 Å et le paramètre hors plan c vaut 5.67 Å. En augmentant la fluence, on observe une augmentation du paramètre de maille hors plan dont nous ne comprenons pas bien l'origine. Nous voyons aussi différents pics de diffraction, correspondant à différentes familles de plans. Ceux comme (022) pour lesquels les indices h+k+l=4n, avec n entier, sont dits fondamentaux car ils sont présents quelle que soit la phase cristallographique sous condition que l'Heusler ait une structure cubique (ou tétragonale). Les pics pour lesquels h, k et l sont impairs comme (111) ou pour lesquels h+k+l=4n+2 sont les pics dits de sur-structure et renseignent sur l'ordre cristallin.

*Dans la plupart des articles que nous avons consultés au début de notre étude, la présence du pic (111) était considérée comme la preuve d'une croissance dans la phase la plus ordonnée L2<sub>1</sub>. Cependant, ceci n'est pas tout à fait juste car, comme nous le montrons plus bas, le pic (111) apparait aussi dans l'ordre D0<sub>3</sub>. Ainsi, nous avons développé une méthodologie qui combine différentes techniques afin de déterminer complètement l'ordre cristallin du système.*



**Figure 7 :** (a-d) Scans  $2\theta$  en diffraction X pour différents plans atomiques réalisés sur un film mince de CMS d'épaisseur 40 nm. (e) Valeurs des paramètres de maille extraites des mesures en (a-d) en fonction de la fluence. (f) Evolution des trois paramètres d'ordre en fonction de la fluence. Tiré de [33].

Pour déterminer l'ordre (ou plutôt le désordre dans ce cas) dans le matériau, nous nous sommes inspirés des travaux de Takamura *et al.* [34]–[36] sur le  $\text{Co}_2\text{FeSi}$ . La première étape consiste à définir trois paramètres d'ordre  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$  qui correspondent respectivement au nombre d'atomes de Mn sur les sites de Si (désordre de type B2), au nombre d'atomes de Co sur les sites de Si et enfin au nombre d'atomes de Co sur les sites de Mn (désordre de type  $\text{D0}_3$ ). Ces paramètres sont définis par cellule unité. Les facteurs de structure des différents pics peuvent alors être réécrits sous la forme :

$$F_{111} \propto (1 - 2\alpha - \beta)(f_{\text{Mn}} - f_{\text{Si}}) + (\gamma - \beta)(f_{\text{Co}} - f_{\text{Mn}}) \quad (1)$$

$$F_{002} \propto (1 - 2\beta)(f_{\text{Co}} - f_{\text{Si}}) + (1 - 2\gamma)(f_{\text{Co}} - f_{\text{Mn}}) \quad (2)$$

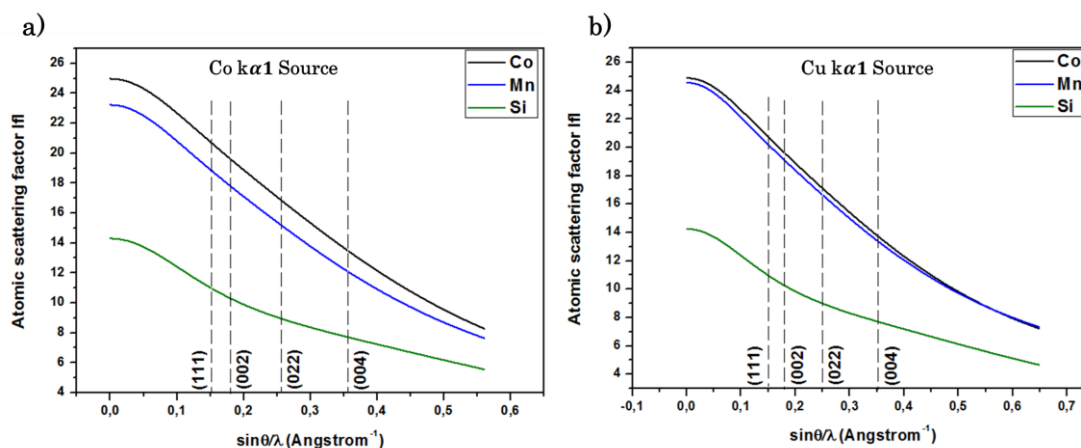
$$F_{022} = F_{004} \propto 2f_{\text{Co}} + f_{\text{Mn}} + f_{\text{Si}} \quad (3)$$

où  $f_{\text{Co}}$ ,  $f_{\text{Mn}}$  et  $f_{\text{Si}}$  sont les facteurs de diffusion des différents atomes. Ces coefficients s'écrivent de manière générale  $f = (f^0 + f' + if'') * DW_{hkl}$  avec  $f^0\left(\frac{\sin\theta}{\lambda}\right) = \sum_{i=1}^4 a_i e^{-b_i\left(\frac{\sin\theta}{\lambda}\right)^2} + c$  et  $DW_{hkl} = e^{-\beta\left(\frac{\sin\theta}{\lambda} hkl\right)^2}$ .  $h$ ,  $k$  et  $l$  sont les indices du plan. L'ensemble des paramètres nécessaires à ces calculs peut être trouvé dans la base de données internationales du NIST et dans la référence [37].

Pour les phases  $\text{L2}_1$ ,  $\text{B2}$ ,  $\text{D0}_3$  et  $\text{A2}$ , les paramètres  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$  valent respectivement  $(0,0,0)$ ,  $(1/2, 0,0)$ ,  $(0, 0, 2/3)$  et  $(1/4, 1/2, 1/2)$ . En injectant ces paramètres dans (1), on peut voir que le pic (111) est bien présent dans l'ordre  $\text{D0}_3$ . Maintenant, le problème restant est la détermination de ces trois paramètres d'ordre. Pour cela, nous avons simulé les ratios entre les pics de sur-structure et le pic fondamental. L'intensité du pic d'une famille de plan  $hkl$  s'écrit  $I_{hkl} \approx L_{hkl(\theta)} P_{hkl(\theta)} |F_{hkl}|^2 \frac{1}{\sin\theta_{hkl}}$  avec  $L_{hkl(\theta)} = \frac{1}{\sin 2\theta_{hkl}}$  le facteur de Lorentz,  $P_{hkl(\theta)} = \frac{1+A*\cos 2\theta_{hkl}}{1+A}$  le facteur de polarisation et  $A$  le facteur d'atténuation qui dépend du diffractomètre et de la longueur d'onde  $X$  utilisée. Le problème est que seul les ratios  $I_{111}/I_{022}$  et  $I_{002}/I_{022}$  sont accessibles. Notons que le pic (004) peut aussi être utilisé comme pic fondamental.

Pour répondre à ce problème Takamura *et al.* ont proposé de faire ces mesures à plusieurs longueurs d'ondes différentes. En particulier, l'astuce ici est d'utiliser une source de cobalt (raie  $\text{K}\alpha_1$ ,  $\lambda = 0.179$  nm) et une source de cuivre (raie  $\text{K}\alpha_1$ ,  $\lambda = 0.154$  nm). On peut voir sur la Figure 8 que les facteurs de diffusion du Co et du Mn à la raie  $\text{K}\alpha_1$  du cuivre sont très proches pour tous les pics qui nous intéressent. Ainsi, dans les équations (1) et (2), les termes qui dépendent de la différence des facteurs de diffusion entre le Co et le Mn sont quasi nuls, permettant ainsi de déterminer facilement  $\alpha$  et  $\beta$ . Il est intéressant

de noter que les mesures de diffraction X réalisées avec une source de cuivre ne permettent donc pas de discriminer correctement l'ordre  $L2_1$  de l'ordre  $D0_3$ . Ceci n'est plus vrai à la longueur d'onde  $K_{\alpha 1}$  du cobalt.



**Figure 8 :** Simulation des coefficients de diffusion atomique pour le Co, Mn et Si à la longueur d'onde  $K_{\alpha 1}$  du cobalt (a) ou du cuivre (b).

Nous avons réalisé des mesures sur les mêmes échantillons avec un diffractomètre équipé d'une source de cuivre au LAAS de Toulouse et avec un diffractomètre équipé d'une source de cobalt à l'INSA de Toulouse. A partir de ces mesures (Figure 7.a-d), nous avons mis au point les méthodes numériques permettant d'extraire  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$ . Le résultat est montré sur la Figure 7.f. Nous avons obtenu pour l'échantillon de référence des valeurs  $\alpha = 0.14 \pm 0.01$ ,  $\beta = 0.03 \pm 0.02$  et  $\gamma = 0.01 \pm 0.01$ . A l'incertitude de mesure près, ceci montre que nous avons un film mince présentant l'ordre  $L2_1$  (pic de diffraction (111) et  $\gamma \approx 0$ ) dans lequel du désordre de type B2 est présent. En comparant la valeur expérimentale de  $\alpha$  à celle de la phase B2 « pure », nous pouvons estimer environ 25% ( $\approx 0.14/1.5$ ) d'ordre B2 présent dans le matériau. Il est également possible de calculer la probabilité de présence des différents atomes sur leur site originel en considérant comme point de départ la structure  $L2_1$ . Nous avons ainsi calculé des valeurs de 98%, 86% et 83% pour les atomes de Co, Mn et Si respectivement.

En augmentant la fluence, nous observons que la valeur de  $\beta$  (désordre Co/Si) reste à peu près constante autour de  $0.04 \pm 0.02$ . Cependant  $\alpha$  augmente de  $0.14 \pm 0.01$  à  $0.22 \pm 0.01$  pour une fluence de  $10^{16}$  ions/cm<sup>2</sup>, avec une augmentation très nette à  $5 \cdot 10^{15}$  ions/cm<sup>2</sup>. De même,  $\gamma$  qui correspond au substitutions Co/Mn, augmente pour des fluences supérieures à  $5 \cdot 10^{15}$  ion/cm<sup>2</sup>. En dessous de cette fluence, ce type de substitution est inférieur à notre incertitude expérimentale, ce qui signifie que  $\gamma$  est inférieur à 0.02. A  $10^{16}$  ions/cm<sup>2</sup>, la probabilité de présence du Co, Mn et Si sur leur site propre est de 93%, 71% et 75% respectivement à la fluence maximale.

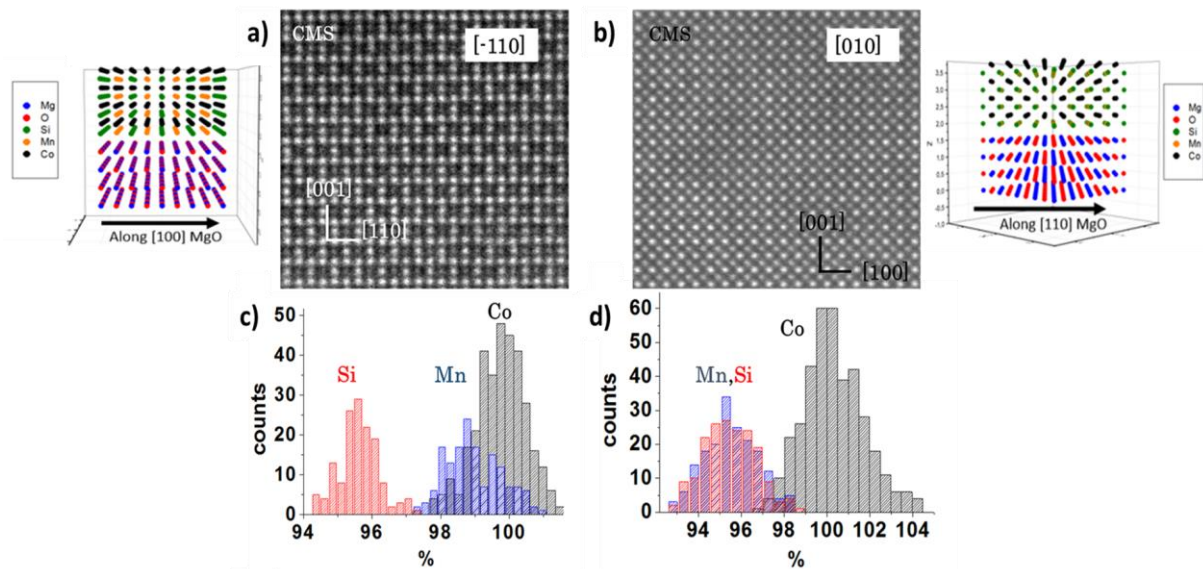
Bien que ces mesures démontrent que l'irradiation ionique permet d'induire des échanges atomiques et fournissent le taux de désordre sur les différents sites, elles ne renseignent pas directement sur l'organisation, aléatoire ou non, de ces différents désordres à l'échelle atomique. La question restante est donc de savoir si, dans l'échantillon de référence et ceux irradiés, les échanges entre Mn et Si sont diffus dans une matrice  $L2_1$  ou bien si nous avons des zones purement B2 et d'autres purement  $L2_1$ . Même chose pour le désordre de type  $D0_3$  à forte fluence.

Pour répondre à cette question, nous avons entrepris des études de microscopie électronique en transmission (TEM) en particulier en mode STEM-HAADF (Scanning Transmission Electron Microscopy – High Angle Annular Dark Field). Ces expériences ont été réalisées par C. Magen du laboratoire LMA-INA à Saragosse en Espagne. Cette méthode permet une analyse chimique des espèces en présence à l'échelle atomique. Brièvement, le principe consiste à sonder le matériau avec un faisceau



électronique et à récupérer les électrons diffusés élastiquement à de grands angles en raison de l'interaction électrostatique avec les noyaux atomiques. Plus le noyau est lourd ( $Z$  grand), plus l'angle de diffusion est grand. L'intensité de chaque pixel de l'image obtenue, égale au nombre d'électrons récupérés par un détecteur annulaire, est ainsi directement proportionnelle au numéro atomique des atomes ayant interagis avec les électrons. L'image correspond plus précisément aux colonnes atomiques vues par les électrons. En première approximation, l'intensité de chaque colonne est proportionnelle à  $Z^\eta$ , où  $Z$  est le numéro atomique et  $\eta$  est une constante qui vaut entre  $\sqrt{2/3}$  et 2.

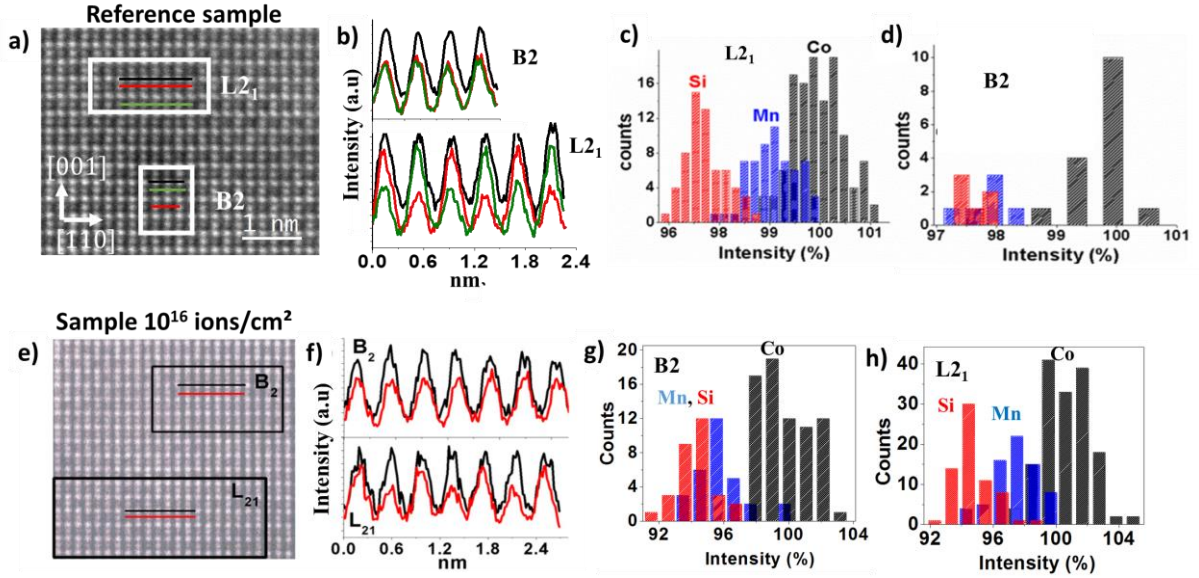
Deux exemples d'images en mode STEM-HAADF sur un film mince de CMS non irradié sont présentés dans la Figure 9. Les deux figures correspondent à l'observation dans les axes de zones  $[-110]$  et  $[010]$  orientés à  $45^\circ$  l'un par rapport à l'autre. Ceci permet par exemple d'observer l'alternance entre atomes de Si et de Mn (Figure 9.a) ou bien, dans le cas où l'on regarde la structure cubique par l'une de ses arrêtes, d'avoir un signal moyenné par l'alternance entre atomes de Mn et Si dans l'épaisseur de la couche (Figure 9.b). Un point important à mentionner ici est que l'intensité des pixels peut varier d'une position à une autre en raison notamment des variations d'épaisseur de la lame mince, l'intensité étant également proportionnelle à l'épaisseur totale. Ces variations s'observent par exemple dans les histogrammes d'intensité réalisés sur l'ensemble de l'image où l'on obtient une certaine dispersion pour chaque type de colonne atomique (Figure 9.c et d). Néanmoins la variation d'épaisseur sur un champ de vue réduit est faible et entraîne une dispersion peu importante pour chaque espèce atomique, laissant leur pic respectif bien distinct. Une analyse quantitative directe sur de grandes zones d'observation où l'épaisseur varie plus fortement est ainsi assez délicate et peut amener des erreurs d'interprétation rapidement.



**Figure 9 :** Exemples d'images en mode STEM-HAADF d'un film mince de CMS observé dans deux axes de zones tournés de  $45^\circ$  l'un par rapport à l'autre (a,b) et les histogrammes d'intensité des colonnes atomiques correspondantes (c,d). Les valeurs sont normalisées par rapport au signal du Co.

En étudiant de manière plus fine l'échantillon de référence mesuré en diffraction X, nous avons pu observer des zones présentant des ordres cristallins différents (Figure 10). En effet, de petites zones B2 apparaissent clairement à l'intérieur d'une matrice  $L2_1$ , ce qui explique les mesures de diffraction X. Pour l'échantillon irradié en revanche, nous observons clairement une augmentation de la taille des zones de structure B2, alors que le profil d'intensité des zones de type  $L2_1$  ne semble pas modifié par rapport à l'échantillon de référence. Ces études démontrent que sous l'effet de l'irradiation, la phase B2 croît à partir de petits clusters initiaux, cette croissance étant assurée par la transformation de la matrice

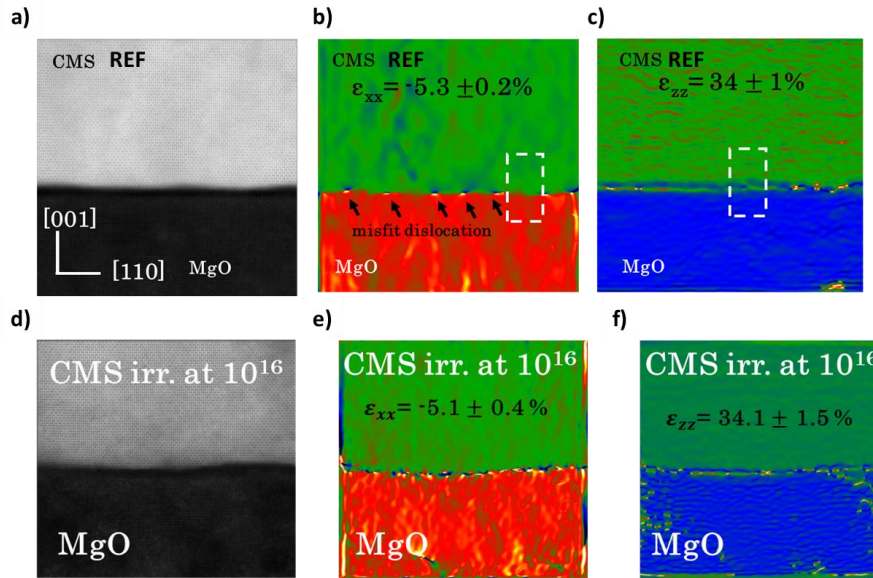
L2<sub>1</sub> les entourant. Ce résultat est plutôt conforme aux résultats obtenus par Gaier *et al.* démontrant une amélioration de l'ordre B2 sous irradiation, à la différence que jusqu'à des fluences de l'ordre de 10<sup>16</sup> ions/cm<sup>2</sup>, nous n'avons pas vu de dégradation de l'ordre B2. Cette différence de comportement à forte fluence est liée à la plus grande énergie des ions incidents dans notre cas. Alors que la différence d'intensité entre le Mn (ou le Co) et le Si est clair, il est assez difficile de séparer le Mn du Co car leurs numéros atomiques sont proches. Par conséquent, il est difficile de conclure avec cette technique sur l'organisation du désordre de type D0<sub>3</sub> observé par diffraction X.



**Figure 10 :** Analyse de l'échantillon de référence (a) et celui irradié à 10<sup>16</sup> ions/cm<sup>2</sup> (e), montrant des zones cristallisées dans l'ordre L2<sub>1</sub> ou B2. (b,f) Profils d'intensité tracés pour les zones délimitées par les carrés en (a) et (e). Exemples d'histogrammes d'intensité des pixel dans des zones L2<sub>1</sub> ou B2 dans l'échantillon de référence (c,d) ou irradié (g,h). Tiré de [33].

Enfin, dans l'objectif d'avoir une caractérisation structurale du matériau la plus complète possible, nous avons également étudié par microscopie électronique la possibilité d'avoir des déformations locales. En particulier la méthode GPA (Geometrical Phase Analysis) offre la possibilité de mesurer localement les champs de contrainte et de déformation entre deux matériaux. L'explication de cette technique assez complexe peut être trouvée dans [38], [39]. L'idée générale est de comparer les déplacements entre des plans atomiques particuliers d'un matériau de référence (pour nous le MgO) et le matériau que l'on souhaite étudier (le CMS). L'application de cette méthode pour le plan de (220) à partir d'une image prise en mode STEM-HAADF est présentée sur la Figure 11. On observe une déformation moyenne du CMS par rapport au MgO de l'ordre de 5.3 % dans le plan et de 34 % hors plan, sans différence majeure entre l'échantillon de référence et celui irradié à 10<sup>16</sup> ions/cm<sup>2</sup>. Ceci est en bon accord avec les valeurs théoriques du désaccord de maille dans le plan  $f = \frac{a_{CMS} - \sqrt{2} \cdot a_{MgO}}{\sqrt{2} \cdot a_{MgO}} = -5.4\%$  et hors plan  $\frac{c_{CMS} - a_{MgO}}{a_{MgO}} = 34.6\%$  et 35% pour la référence et l'échantillon irradié. Bien que n'étant pas extrêmement précise dans le cas de nos échantillons, cette méthode d'imagerie permet d'avoir deux informations importantes. La première est que les déformations sont homogènes (du moins à l'échelle de quelques images) et donc que l'irradiation n'induit pas de gradient de contrainte dans l'épaisseur du film. La seconde information est la présence de dislocations à l'interface entre le MgO et le CMS, indiquées par les flèches sur la Figure 11.b, avec une périodicité comprise entre 3 et 4 nm. Cette valeur est proche de la valeur théorique définie par  $\frac{d_{[220]-CMS}}{|f|} = \frac{5.63}{\sqrt{8} \cdot 5.4} = 3.68 \text{ nm}$ , qui correspond à une couche parfaitement relaxée. Ainsi nos films semblent totalement relaxés et nous permettent de ne pas

prendre en compte les effets de contraintes dans les calculs de structure de bandes électroniques pour expliquer les propriétés magnétiques mesurées.



**Figure 11** : Images STEM-HAADF pour les échantillons de référence (a) et irradié à  $10^{16}$  ions/cm<sup>2</sup> (d). Cartographies de la déformation dans le plan (b,e) et hors plan (c,f) obtenues à partir de (a) et (d). Les flèches dans (b) montrent la position des points de dislocation.

*Ainsi, l'analyse croisée de la diffraction X et de l'imagerie atomique a permis de décrire partiellement l'organisation locale du désordre induit par l'irradiation, en particulier la croissance de zones B2. Cependant, la description complète, notamment entre atomes de Co et de Mn, implique de comparer l'analyse structurale aux mesures magnétiques.*

### I.2.3. Influence du désordre sur les propriétés magnétiques du Co<sub>2</sub>MnSi.

Plusieurs méthodes permettent d'étudier les propriétés magnétiques d'un matériau. Parmi elles, nous avons besoin d'une méthode non invasive permettant de déterminer un maximum de paramètres magnétiques intrinsèques pour caractériser intégralement l'influence du désordre. La résonance ferromagnétique (RFM) répond à ces besoins. Le principe fondamental de cette technique repose sur l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert qui décrit le comportement temporel de l'aimantation :

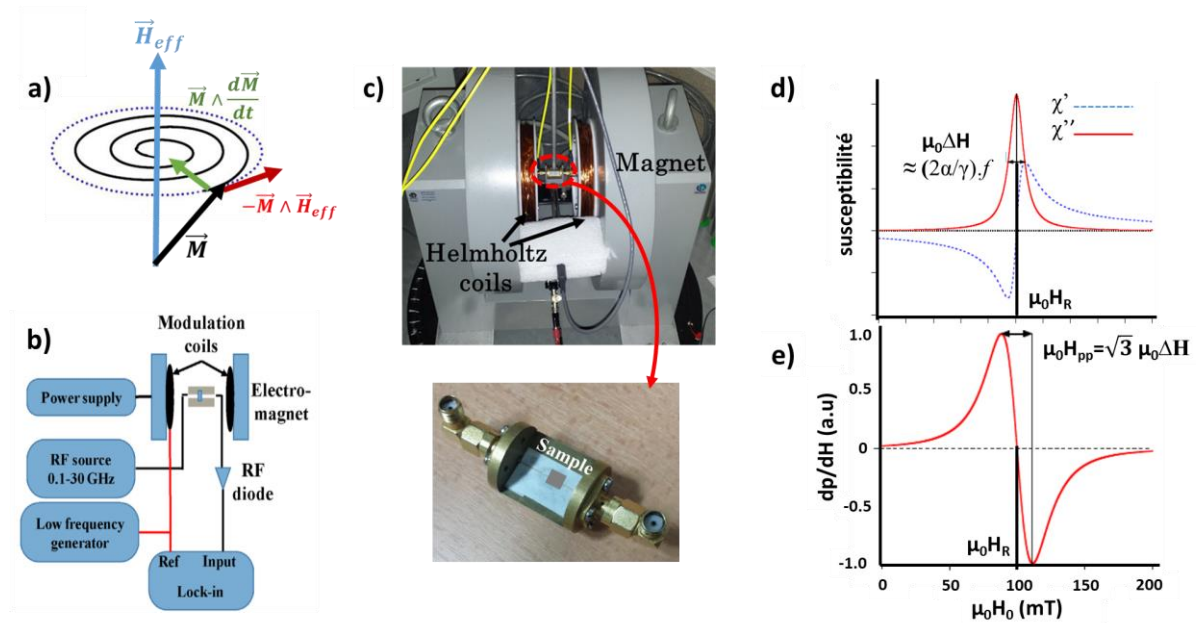
$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma\mu_0\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff} + \frac{\alpha}{M_S} \left( \mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \right) \quad (4)$$

où  $\mathbf{M}$  est le vecteur aimantation,  $\gamma$  le facteur gyromagnétique,  $\mu_0$  la permittivité du vide et  $\alpha$  le coefficient de relaxation de Gilbert (sans dimension).  $\mathbf{H}_{eff}$  le vecteur champ effectif et correspond à la somme du champ magnétique extérieur, du champ d'anisotropie cristalline, du champ d'échange et du champ d'anisotropie de forme (ou champ démagnétisant). Le premier terme à droite de cette équation décrit le mouvement de précession de l'aimantation autour du champ effectif lorsque celle-ci est tirée hors de sa position d'équilibre. Le second terme décrit l'amortissement de cette précession pour assurer le retour à l'équilibre (voir Figure 12.a).

En présence d'un faible champ magnétique dynamique oscillant à la pulsation  $\omega$  fixe, il est possible de linéariser l'équation (4) pour obtenir la susceptibilité linéaire complexe  $\chi$  reliant les composantes



dynamiques de l'aimantation au champ d'excitation sous la forme  $\mathbf{m} = \chi \mathbf{h}$ . Comme on peut le voir sur la Figure 12.d, lorsque le champ statique appliqué correspond au champ de résonance ( $H_r$ ), la partie réelle de la susceptibilité s'annule alors que la partie imaginaire atteint un maximum. La partie imaginaire détermine la puissance micro-onde absorbée par le matériau qui va ensuite être dissipée (via l'interaction avec les phonons, les électrons de conduction etc..). Cette puissance peut s'écrire  $P_{abs} = \omega \chi'' h^2$ .

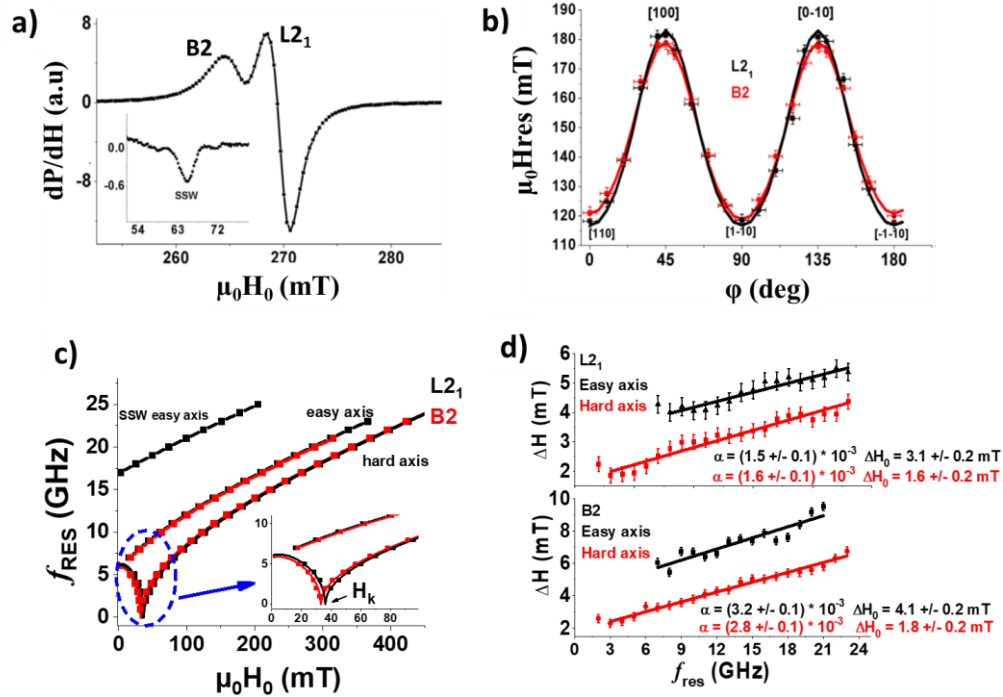


**Figure 12 :** (a) Schématisation du mouvement de précession amortie de l'aimantation autour du champ effectif. (b) Schéma de principe de la mesure RFM par détection synchrone, en mode modulation de champ. (c) Photographie de l'électroaimant monté au CEMES et de la ligne micro-ruban utilisée pour les mesures. (d) Calcul des parties réelles et imaginaires de la susceptibilité dynamique  $\chi$  et (e) dérivée de la puissance micro-ondes absorbée pouvant être mesurée par détection synchrone. Ici la fréquence d'excitation est fixe et l'on fait varier le champ extérieur.

Grâce à la relation entre la fréquence de résonance du matériau et la valeur du champ appliqué, la résonance ferromagnétique permet d'obtenir un grand nombre de paramètres tels que l'aimantation à saturation, la direction et l'amplitude des anisotropies, la valeur du facteur gyromagnétique et du coefficient de relaxation dynamique, la valeur de la constante d'échange etc... Grâce à l'ANR NASSICS que j'ai obtenue en 2013, nous avons pu acheter l'ensemble du matériel nécessaire pour monter un banc de mesure radiofréquence au CEMES. Cette partie de la thèse d'Iman a été particulièrement formatrice pour elle et notre banc a été mis en service en janvier 2014. Il fait partie désormais du service PS2I du laboratoire sous ma responsabilité. Cette technique de mesure n'étant pas développée dans les autres laboratoires toulousains, elle permet à d'autres chercheurs du site de venir faire des mesures de caractérisation matériau en cas de besoin.

Dans notre cas, nous avons opté pour une mesure large bande (0.1 – 30 GHz) à l'aide d'une ligne micro-ruban d'environ 400  $\mu\text{m}$  de largeur fabriquée sur un substrat d'alumine. Notre banc permet d'appliquer un champ magnétique dans le plan de l'échantillon jusqu'à 0.5 T, avec la possibilité de tourner autour de l'échantillon. Un autre jeu de pôles magnétiques permet de réduire l'entrefer pour obtenir un champ de 1.4 T que nous utilisons pour faire des mesures RFM hors plan. La variation de la puissance micro-onde absorbée par l'échantillon magnétique est mesurée par détection synchrone via une modulation basse fréquence ( $\approx 100$  Hz) du champ appliqué. Cette méthode est plus simple et rapide à mettre en œuvre par rapport à des mesures à l'analyseur de réseau vectorielle qui nécessite des étapes

de calibration. De plus, elle offre un bon rapport signal/bruit. Cependant, il faut faire attention car le signal mesuré par le lock-in ne donne pas accès directement à la puissance micro-onde absorbée (et donc à  $\chi''$ ) mais à sa dérivée. Ceci est illustré sur la Figure 12.e où l'on voit que la « vraie » largeur de raie  $\Delta H$  peut être reliée à la largeur pic à pic mesurée.



**Figure 13 :** (a) Exemple de spectre d'absorption mesuré à 16 GHz pour l'échantillon de référence montrant deux pics distincts. En insert, un mode en épaisseur noté SSW. (b) Mesure du champ de résonance à la fréquence de 12 GHz en fonction de l'angle entre un axe facile et le champ appliqué. (c) Courbes de dispersion  $f_{res}$  Vs.  $H_0$  pour les deux phases détectées L2<sub>1</sub> et B2, pour un champ parallèle à l'axe facile (easy axis) ou à l'axe difficile (hard axis). Les points sont les mesures expérimentales et les lignes sont les ajustements réalisés avec l'équation (5). Le point d'inflexion dans la mesure suivant l'axe difficile permet une détection directe de la valeur du champ d'anisotropie cubique. (d) Evolution des largeurs de raies en fonction de la fréquence pour les deux phases L2<sub>1</sub> et B2. Les lignes correspondent aux ajustements linéaires permettant de déterminer le coefficient de relaxation dynamique  $\alpha$ . Tiré de [40].

La Figure 13.a présente un exemple type de spectre d'absorption RFM acquis sur l'échantillon de référence à 16 GHz pour un champ appliqué dans une direction de difficile aimantation. Les deux pics RFM sont en accord avec l'hypothèse de la présence à la fois d'une phase L2<sub>1</sub> et d'une phase B2, le pic le plus intense étant relié à la phase prédominante L2<sub>1</sub>. Notons que le signal du premier mode d'excitation en épaisseur, appelé SSW (Standing Spin Waves) est trop faible pour la phase B2 ce qui ne nous permet pas de déterminer la valeur de la constante d'échange de cette phase.

A partir des courbes de dispersion  $f_{res}(H_0)$  dans différentes directions du champ appliqué par rapport aux axes cristallins (Figure 13.c), ainsi que l'ajustement des valeurs du champ de résonance en fonction de l'angle d'application du champ (Figure 13.b), il est possible de déterminer les paramètres magnétiques de chacune des deux phases cristallographiques. Pour cela, nous résolvons numériquement l'équation de Smit-Beljers [41] reliant la fréquence de résonance à la valeur et à la direction du champ appliqué :

$$\omega_{res} = \frac{\gamma}{M_s \sin \theta_{eq}} \left[ (E_{\theta\theta} E_{\varphi\varphi} - E_{\theta\varphi}^2) \right]^{\frac{1}{2}} \quad (5)$$

où  $E_{\theta\theta}$ ,  $E_{\varphi\varphi}$  et  $E_{\theta\varphi}$  correspondent aux dérivées secondes de l'énergie libre par rapport aux angles polaire et azimutal, calculées pour les valeurs à l'équilibre  $\theta_{eq}$  et  $\varphi_{eq}$  obtenues par minimisation de l'énergie libre du système. Pour la simulation des modes en épaisseurs SSW, nous remplaçons dans ces calculs le champ appliqué  $H_0$  par  $H_0 + \frac{2A}{\mu_0 M_s} k^2$ , avec  $k = \pi/d$ . Notons que dans cette expression nous avons opté pour un modèle simple avec des conditions de piégeage complet des spins en surface. Ce modèle est celui généralement appliqué dans la littérature pour la détermination de la constante d'échange dans les films minces d'Heusler [42]. Pour vérifier cette hypothèse et remonter aux conditions de piégeage réelles, il aurait fallu à minima mesurer deux modes en épaisseur mais les fréquences des modes d'indices supérieurs sont trop élevées pour notre banc de mesure et/ou leurs amplitudes sont trop faibles pour être détectées.

Les paramètres magnétiques obtenus à partir du meilleur ajustement avec les données expérimentales sont récapitulés dans le Tableau 2 pour l'ensemble des fluences. Pour l'échantillon de référence, les paramètres sont assez équivalents pour les deux phases. De la valeur de l'aimantation à saturation, nous déduisons un moment magnétique de 4.88 et 4.85  $\mu_B/f.u.$  pour les phases  $L2_1$  et B2 respectivement, en bon accord avec les calculs ab-initio que nous avons réalisés (voir partie I.2.4), qui donnent un moment de 4.94  $\mu_B/f.u.$  pour chacune des phases cristallographiques. Notons que ces calculs prennent en compte les valeurs des paramètres de maille déterminées par diffraction X. Nous avons également observé une valeur d'anisotropie cubique environ 2 à 3 fois supérieure à ce qui est généralement rapportée dans la littérature.

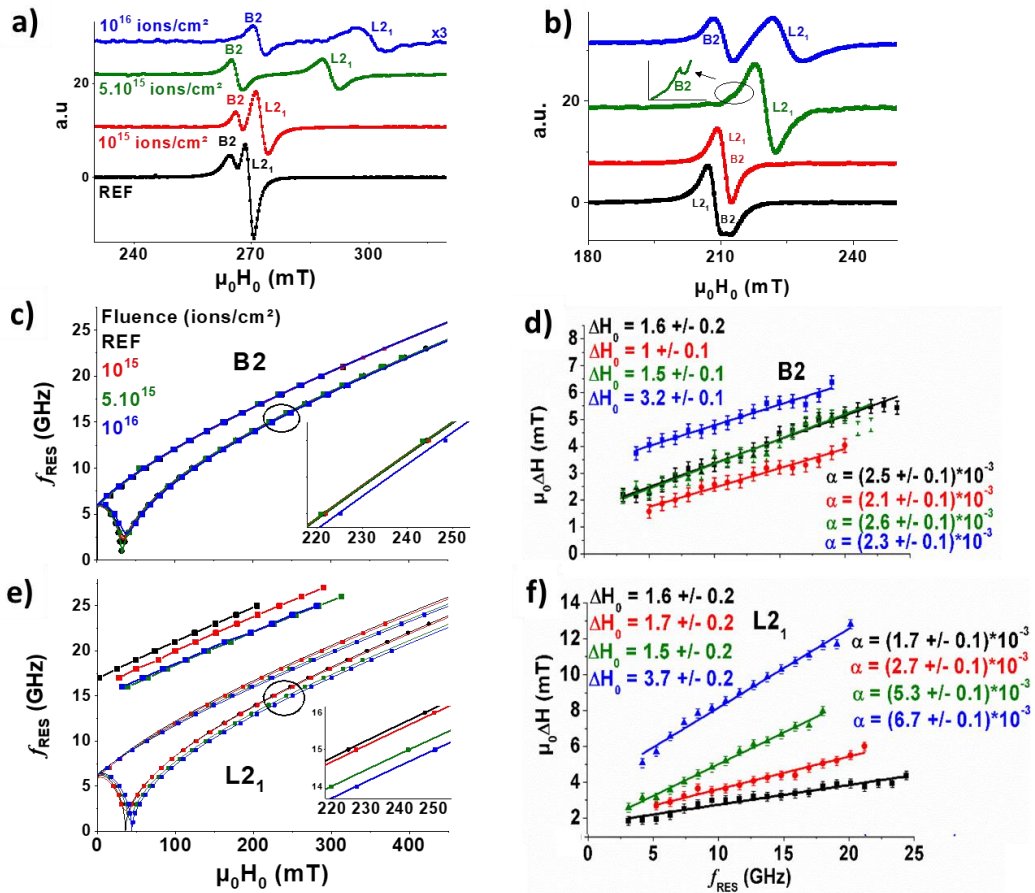
Le paramètre de relaxation dynamique de type Gilbert  $\alpha$  peut être obtenu en ajustant la variation de la largeur de raie en fonction de la fréquence de résonance  $f_{res}$  avec la fonction linéaire  $\Delta H = (2\alpha/\gamma) f_{res} + \Delta H_0$ , où  $\gamma$  est le facteur gyromagnétique et  $\Delta H_0$  est la contribution dite extrinsèque. Comme le montre la Figure 13.d,  $\alpha$  est quasiment isotrope pour l'échantillon de référence avec une valeur très proche pour toutes les directions du champ appliqué. La valeur la plus faible est observée pour la phase  $L2_1$ , avec une valeur autour de  $1.5 \cdot 10^{-3}$  parmi les plus faibles relevées (en 2016) pour des mesures dans le plan de la couche. Enfin, nous pouvons également observer que les contributions extrinsèques sont dépendantes de la direction d'application du champ extérieur. En particulier, la largeur de raie est plus grande dans les directions de facile aimantation, ce qui correspond aux directions parallèles aux côtés du substrat de MgO. Bien que nous n'ayons pas réussi à corrélérer cette tendance à d'éventuels effets de structure, nous pensons que cette contribution extrinsèque est peut-être due à l'orientation des terrasses du substrat, et ce en dépit de la présence d'une couche tampon. Notons que ces contributions extrinsèques sont sensibles aux inhomogénéités, qu'elles soient magnétiques ou structurales. Elles donnent ainsi une idée sur l'ordre à longue portée dans notre matériau. Dans notre cas nous savons que nous avons beaucoup de grains, qui plus est pouvant présenter des phases différentes. Il n'est donc pas surprenant d'avoir des valeurs de  $\Delta H_0$  assez élevées.

L'effet de l'irradiation ionique sur les propriétés magnétiques peut être observé sur les Figure 14.a et b. qui montrent l'évolution des deux pics de résonance en fonction de la fluence pour deux directions du champ externe. Alors que le pic associé à l'ordre B2 reste à une position à peu près constante, celui de la phase  $L2_1$  est fortement impacté par l'irradiation. Dans le Tableau 2, nous voyons que les paramètres magnétiques de la phase B2 sont constants sous l'effet de l'irradiation à l'exception de l'augmentation de l'anisotropie cubique dont l'origine est mal comprise. Pour la phase  $L2_1$  en revanche, nous observons pour les fluences supérieures à  $5 \cdot 10^{15}$  ions/cm<sup>2</sup> à la fois une diminution de l'aimantation et de la constante d'échange, et une augmentation prononcée de l'anisotropie cubique et du facteur gyromagnétique.

Sur les Figure 14.d et f. nous présentons l'évolution de la largeur de raie pour les deux phases cristallines en fonction de la fluence. Seule une direction magnétique est présentée mais les mêmes observations sont faites dans les autres directions. Pour l'ordre B2,  $\alpha$  est à peu près constant comme cela pouvait être espéré. De plus, nous observons une diminution nette des contributions extrinsèques pour une fluence de  $10^{15}$  ions/cm<sup>2</sup>. Ceci peut être relié à une amélioration de l'ordre local à longue portée (effet de recuit local), comme montré par Hamrle *et al.* [43], [44]. A plus haute fluence, l'augmentation de  $\Delta H_0$  peut être reliée à la présence de défauts ponctuels induits par l'irradiation. En revanche, pour la phase L2<sub>1</sub>, nous observons une augmentation de  $\alpha$  avec la fluence. Comme mentionné dans I.1, ceci est significatif d'une modification profonde des densités d'états au niveau de Fermi.

En se basant sur ces résultats et sur notre étude structurale, nous pouvons en conclure que :

- i) L'irradiation ionique favorise la phase B2 au détriment de la phase L2<sub>1</sub>
- ii) Le désordre Co/Mn (type D0<sub>3</sub>) n'apparaît que dans les zones initialement L2<sub>1</sub>, sinon les paramètres de la phase B2, et en particulier l'aimantation, auraient diminués.
- iii) De plus, si une phase D0<sub>3</sub> « pure » était apparue, un troisième pic de résonance serait observé. Ainsi le désordre de type D0<sub>3</sub> semble être dilué dans la matrice initial L2<sub>1</sub>.



**Figure 14 :** Evolution du spectre d'absorption à 16 GHz pour un champ magnétique parallèle à une direction de difficile (a) ou facile (b) aimantation. Evolution en fonction de la fluence des courbes de dispersion (c,e) et de la largeur de raie (d,f) pour les phases L2<sub>1</sub> (e,f) et B2 (c,d). Tiré de [40].

Ions/cm <sup>2</sup>	REF	10 <sup>15</sup>	5 x 10 <sup>15</sup>	10 <sup>16</sup>
<b>L2<sub>1</sub></b>				
$\mu_0 M_s$ (T)	1.26 ± 0.02	1.22 ± 0.02	1.14 ± 0.02	1.1 ± 0.02
$M_s$ ( $\mu_B/f.u.$ )	4.86 ± 0.05	4.71 ± 0.05	4.41 ± 0.05	4.25 ± 0.05
$A$ (pJ/m)	19 ± 0.1	18 ± 0.1	12 ± 0.1	13 ± 0.1
$\mu_0 H_k$ (mT)	36 ± 0.5	34 ± 0.5	42 ± 0.5	45 ± 0.5
$Kc$ (kJ/m <sup>3</sup> )	18 ± 0.5	17 ± 0.5	19 ± 0.5	19.8 ± 0.5
$\gamma$ (GHz/T)	28.7 ± 0.1	28.7 ± 0.1	28.8 ± 0.1	28.9 ± 0.1
$\alpha$ (* 10 <sup>-3</sup> )	1.7 ± 0.1	2.7 ± 0.1	5.3 ± 0.1	6.7 ± 0.1
$\Delta H_0$ (mT)	1.6 ± 0.2	1.7 ± 0.2	1.5 ± 0.2	3.7 ± 0.2
<b>B2</b>				
$\mu_0 M_s$ (T)	1.25 ± 0.02	1.25 ± 0.02	1.25 ± 0.02	1.25 ± 0.02
$M_s$ ( $\mu_B/f.u.$ )	4.85 ± 0.01	4.85 ± 0.01	4.85 ± 0.01	4.85 ± 0.01
$A$ (pJ/m)				
$\mu_0 H_k$ (mT)	33 ± 0.5	33 ± 0.5	35 ± 0.5	36 ± 0.5
$Kc$ (kJ/m <sup>3</sup> )	16.4 ± 0.5	16.4 ± 0.5	17.4 ± 0.5	17.9 ± 0.5
$\gamma$ (GHz/T)	28.7 ± 0.1	28.7 ± 0.1	28.7 ± 0.1	28.7 ± 0.1
$\alpha$ (* 10 <sup>-3</sup> )	2.5 ± 0.1	2.1 ± 0.1	2.6 ± 0.1	2.3 ± 0.1
$\Delta H_0$ (mT)	1.6 ± 0.2	1 ± 0.2	1.5 ± 0.2	3.2 ± 0.2

*Tableau 2: paramètres magnétiques déduits des mesures RFM pour les deux phases cristallines en fonction de la fluence. Les paramètres surlignés en bleu sont ceux qui augmentent avec la fluence alors que ceux surlignés en jaune diminuent.*

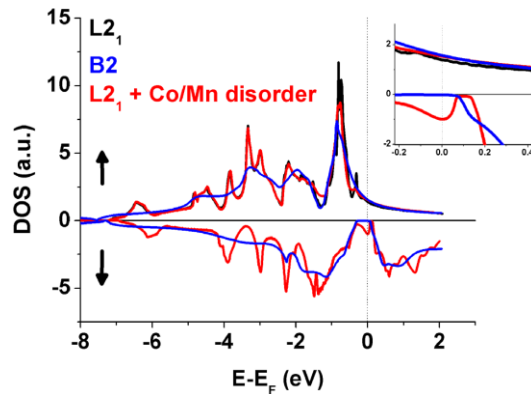
#### I.2.4. Comparaison des résultats expérimentaux avec les calculs ab-initio.

Afin de mieux comprendre et décrire nos résultats expérimentaux, nous avons utilisé le code de calcul SPR-KKR (Spin Polarized Relativistic Korringa-Kohn-Rostoker). La description des principes physiques sur lesquels repose ce code de calcul est très complexe. Ainsi, je renvoie le lecteur aux références [45], [46]. Pour paraphraser l'introduction faite par Ebert *et al.* dans [45], « *SPR-KKR permet le calcul de la structure électronique en terme de fonction de Green à une seule particule* ». Les principaux intérêts de ce code pour nos études sont i) qu'il a été développé pour étudier les propriétés électroniques des alliages, ii) qu'il permet d'introduire de manière arbitraire du désordre entre site atomique et iii) qu'il permet le calcul du coefficient de relaxation dynamique en prenant en compte à la fois les transitions inter et intra bandes comme dans le modèle de Kamberski. Enfin, l'effet de la température peut également être pris en compte.

Puisque les paramètres de la phase B2 évoluent peu, nous nous sommes concentrés sur l'évolution des différents paramètres magnétiques sous l'influence du désordre entre atomes Co/Mn. Pour cela, nous avons d'abord calculé la densité d'états électroniques de l'alliage de formule générale [Co<sub>2-x</sub>Mn<sub>x</sub>][Mn<sub>x</sub>Co<sub>1-x</sub>]Si, x étant la valeur du taux d'échange obtenu par diffraction X sur l'échantillon irradié à 10<sup>16</sup> ions/cm<sup>2</sup>. Tous les calculs ont été réalisés en prenant en compte les paramètres de maille expérimentaux. Le résultat est présenté sur la Figure 15. En présence de désordre Co/Mn, nous observons l'apparition d'états au niveau de Fermi pour les électrons de spins minoritaires, ce qui diminue

le moment magnétique total. Le moment calculé pour cette valeur du désordre est de  $4.65 \mu_B/\text{f.u.}$ , soit environ 6% de diminution par rapport à la phase  $L2_1$  initiale. Ceci est qualitativement en accord avec les 12 % de variation que nous observons expérimentalement ( $4.26 \mu_B/\text{f.u.}$ ). L'aimantation et la constante d'échange étant reliées dans les métaux ferromagnétiques, il n'est pas surprenant que cette dernière diminue avec l'aimantation. Bien que cela n'apparaisse pas directement dans nos calculs, Picozzi *et al.* [18] ont démontré que les échanges Co/Mn induisent un décalage des bandes de spins majoritaires et minoritaires, ce qui peut être vu comme une diminution de la constante d'échange. Par ailleurs, Pandey *et al.* [20] ont démontré que la constante d'échange décroît lorsque les paramètres de maille augmentent, comme dans notre cas. Ces deux effets, sont probablement la cause de la diminution de la constante d'échange dans notre matériau.

Pour expliquer l'augmentation de l'anisotropie et du facteur gyromagnétique avec le désordre Co/Mn, nous avons calculé les valeurs du moment orbital et du moment de spin pour la phase  $L2_1$  et pour l'échantillon avec désordre Co/Mn. Le moment de spin décroît de  $4.87$  à  $4.57 \mu_B$  (-22%) entre la phase  $L2_1$  et la phase désordonnée alors que le moment orbital augmente de  $0.07$  à  $0.08 \mu_B$  (+15%). Ainsi, il n'est pas si évident de déterminer précisément l'origine de l'augmentation de l'anisotropie puisque les contributions de spin et orbitale varient sensiblement de manière opposée. Pour pouvoir statuer sur cet effet, il faudrait pouvoir calculer l'évolution du facteur de couplage spin orbite avec le désordre. En revanche, l'augmentation du moment orbital et la diminution du moment de spin expliquent l'augmentation du facteur gyromagnétique  $\gamma$  puisque celui-ci est relié au facteur de Landé  $g$  à travers la relation  $\gamma = \frac{g \cdot |e|}{2m_e}$ , avec  $(g - 2) = 2 \frac{\mu_L}{\mu_S}$ .



**Figure 15 :** Calcul de la densité d'états électroniques pour les phases  $L2_1$ , B2 et pour la phase  $L2_1$  dans lequel des échanges entre atomes de Co et Mn sont répartis aléatoirement avec  $x = 0.09$ . Tiré de [40].

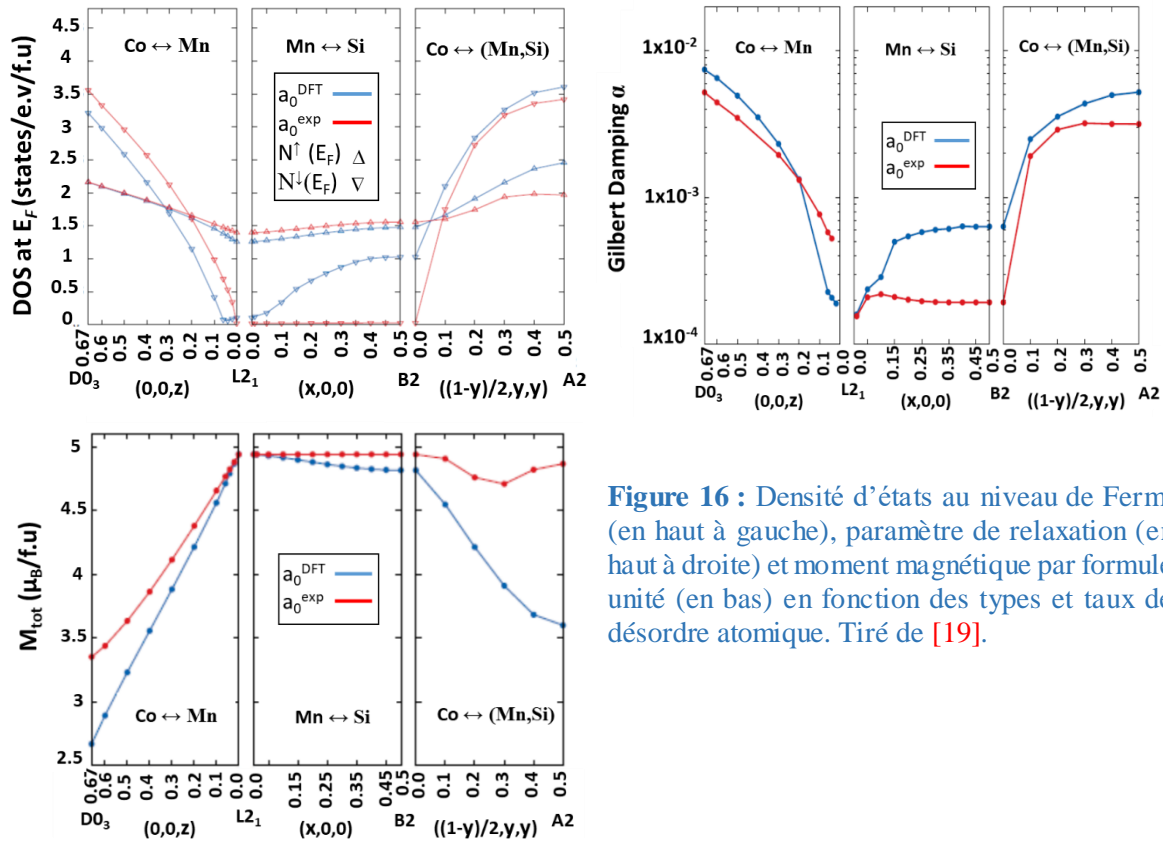
Les valeurs de  $\alpha$  que nous avons calculées avec SPR-KKR sont de  $1.5 \cdot 10^{-4}$  et  $1.9 \cdot 10^{-4}$  pour les phases  $L2_1$  (ou quasi  $L2_1^1$ ) et B2 respectivement. La valeur un peu plus élevée de la phase B2 provient d'une légère augmentation du nombre d'états de spins majoritaires au niveau de Fermi. Ceci est en accord avec des calculs préliminaires basés sur le « torque correlation model » pour la phase B2 [12]. Ces valeurs sont un ordre de grandeur inférieur à nos valeurs expérimentales mais les calculs sont réalisés ici à température nulle. Or, il a été montré que celle-ci augmente  $\alpha$  jusqu'à des valeurs de l'ordre de  $6 \cdot 10^{-4}$  pour la phase quasi  $L2_1$  [47], [48]. De plus, dans nos mesures, la contribution à deux magnons n'est pas soustraite. Cette contribution pourrait être estimée en faisant des mesures à fréquence fixe tout en changeant la direction du champ appliqué du plan de l'échantillon jusqu'à sa perpendiculaire, mais cette configuration de mesure n'est pas accessible avec notre banc de mesure. Une autre façon de s'en

<sup>1</sup> SPR-KKR ne permettant pas le calcul du damping pour des alliages parfaitement ordonnés, un minimum de désordre devant être inclus. Ici, nous considérons 1% de désordre Mn/Si pour simuler l'ordre quasi  $L2_1$ .



affranchir est de réaliser des mesures en fréquence en saturant l'échantillon hors plan. Malheureusement, le champ que nous pouvons appliquer étant de 1.4 T et la saturation étant autour de 1.2T, nous n'avons pas eu suffisamment de points en fréquence pour voir une évolution des largeurs de raie. Etant donnée la sensibilité de notre mesure ( $< 2$  Oe), cela signifie que le coefficient de relaxation est en dessous de  $10^{-3}$ , ce qui semble être dans l'ordre de grandeur des valeurs calculées numériquement à température non nulle.

Sous l'effet du désordre Co/Mn, la valeur de  $\alpha$  calculée passe de  $1.5 \cdot 10^{-4}$  à  $7.7 \cdot 10^{-4}$ . Là aussi les paramètres de maille expérimentaux ont été utilisés. Il aurait été intéressant de pouvoir réaliser ces calculs en prenant en compte les effets de la température. Cependant, qualitativement, cette variation reflète celle observée expérimentalement. Elle est liée à l'apparition d'états de spins minoritaires au niveau de Fermi et donc la possibilité de transition inter-bandes. Il est ainsi intéressant de noter que la valeur de  $\alpha$  est potentiellement une sonde assez sensible de la polarisation en spin de ces matériaux. Enfin, nous avons étudié également l'influence d'environ 1% de lacunes sur les propriétés magnétiques des phases B2 et  $L2_1$ +désordre Co/Mn pour observer l'influence du dommage créé par l'irradiation. Pour ce taux de lacunes, aucune variation significative n'a été observée dans les calculs, ce qui montre que ce type de dommage ne peut être responsable des variations de paramètres que nous avons observées.



**Figure 16 :** Densité d'états au niveau de Fermi (en haut à gauche), paramètre de relaxation (en haut à droite) et moment magnétique par formule unité (en bas) en fonction des types et taux de désordre atomique. Tiré de [19].

En se basant sur ces résultats, mes collègues du CEMES et moi-même avons cherché à aller un peu plus loin. Nous avons calculé des diagrammes d'évolutions des propriétés magnétiques (densités d'états, aimantation, moments orbitaux et de spins, coefficient de relaxation etc..) en partant de la formule générale  $[Co_{2-y-z}Mn_zSi_y]_X[Mn_{1-x-z}Co_zSi_x]_Y[Si_{1-x-y}Co_yMn_x]_Z$ , ou X, Y et Z correspondent aux sites atomiques et x, y et z correspondent aux échanges Mn-Si, Co-Si et Co-Mn respectivement. Nous avons balayé les valeurs x, y et z jusqu'aux valeurs correspondantes aux quatre phases cristallographiques présentés sur la Figure 4. Ces calculs ont été réalisés en prenant en compte soit le paramètre de maille théorique de 5.65 Å (courbes rouges), soit en prenant le paramètre de maille obtenu après minimisation

de l'énergie totale du système (5.48 Å, courbes bleues). Le résultat de ces calculs pour la densité d'état, la valeur de  $\alpha$  et le moment magnétique par formule unité est présenté sur la Figure 16. Bien que les valeurs obtenues ne correspondent pas quantitativement avec la majeure partie des résultats expérimentaux publiés, notamment pour les valeurs de  $\alpha$ , l'intérêt de cette étude est de montrer qualitativement l'influence des différents désordres sur les paramètres magnétiques de l'alliage de  $\text{Co}_2\text{MnSi}$ .

Comme on peut le constater, l'influence du paramètre de maille est importante puisqu'il change de manière importante le comportement des différents paramètres. Ceci montre qu'il est primordial de prendre en compte la structure du matériau lorsque l'on cherche à comparer des calculs ab-initio à des valeurs expérimentales. La tendance générale est que l'influence des désordres de type  $\text{D0}_3$  et A2 est particulièrement préjudiciable aux propriétés magnétiques du CMS. En particulier, on peut noter que le moment magnétique est le plus faible dans la phase  $\text{D0}_3$ , alors que l'on aurait pu imaginer qu'un désordre « total » de type A2 aurait détruit l'aimantation du matériau. Ainsi, les mesures expérimentales montrant des valeurs faibles du moment magnétique sont probablement à relier à la présence de ce type de désordre, alors qu'il est assez peu discuté dans la littérature.

### I.3. Conclusion et perspectives sur l'alliage $\text{Co}_2\text{MnSi}$ .

Nos travaux ont permis de montrer pour la première fois de manière directe l'effet des différents types de désordre sur les propriétés magnétiques de l'alliage  $\text{Co}_2\text{MnSi}$ . Nous pensons que ces résultats peuvent être extrapolés aux autres types d'alliages d'Heusler de la même famille  $\text{X}_2\text{YZ}$ , ouvrant ainsi des perspectives pour mieux comprendre leurs propriétés. Nous avons conduit d'autres types de mesures sur ces matériaux (magnétométrie, mesure par effet Kerr de l'influence du désordre sur les champs coercitifs, microscopie de Lorentz des parois de domaine dans les matériaux irradiés) mais je ne les présenterai pas dans ce manuscrit. Ceux-ci peuvent être consultés dans la thèse d'Iman Abdallah.

Notre approche consistant à maîtriser chaque étape clé du projet, de la croissance du matériau aux mesures magnétiques en passant par l'analyse structurale, était risquée. Cependant, c'est ce qui nous a permis d'obtenir des résultats intéressants vis à vis de l'état de l'art. De plus, ceci a été formateur pour mon étudiante puisqu'elle a pu aborder différents thèmes durant sa thèse et surtout de nombreuses techniques expérimentales. Les principaux résultats que nous avons obtenus peuvent être résumés ainsi de manière synthétique :

- Le développement d'une méthodologie d'analyse permettant une compréhension complète du désordre dans ces alliages. En particulier, nous avons montré qu'il faut corréler les mesures structurales à différentes échelles (atomique jusqu'à macroscopique) aux mesures magnétiques afin de déterminer l'organisation atomique des différents désordres.
- La mise en évidence directe de la détérioration des propriétés magnétiques dans le cas d'échanges atomiques Co/Mn. Comparés aux méthodes de calcul numérique, nos résultats expérimentaux montrent une détérioration un peu plus importante que supposée. Une faible présence de désordre de type  $\text{D0}_3$  peut notamment expliquer de nombreuses analyses présentées dans la littérature avec des paramètres magnétiques moins bons que ce qui peut être attendu, alors que les analyses par diffraction X peuvent laisser penser à une phase  $\text{L2}_1$  « pure ».
- La croissance sous irradiation aux ions légers de l'ordre B2 à partir de petits clusters initiaux par transformation d'une phase  $\text{L2}_1$ , ainsi que la création d'échange Co/Mn dans la phase  $\text{L2}_1$  résiduelle. Ceci est en contradiction avec les résultats de Hammerath *et al.* qui ont observé une transition de la phase  $\text{L2}_1$  vers la phase totalement désordonnée A2 mais à des énergies d'irradiation beaucoup plus



basses. Ceci peut favoriser la création de lacunes et des déplacements d'atomes sur de plus grandes distances que dans notre cas.

- L'intérêt de l'irradiation ionique aux ions légers pour mieux cerner le lien étroit entre structure atomique et propriétés magnétiques dans les alliages. Ceci avait déjà été fait sur les alliages à base de Fe tel que FePt, notamment pour le contrôle de l'anisotropie cristalline. Dans notre étude, nous avons montré que cette technique permet de moduler de nombreux paramètres magnétiques (aimantation, anisotropie, coefficient de relaxation etc..) en jouant sur les conditions d'irradiation (énergie, fluence des ions incidents etc.). Ceci ouvre la voie pour de nouvelles applications telles que la réalisation de cristaux magnoniques comme démontré par Obry *et al.* [49].

Nos résultats ainsi que ceux de Gaier *et al.* peuvent avoir des répercussions technologiques intéressantes pour l'utilisation des Heusler dans le cadre d'applications en électronique, en particulier sur les méthodes de fabrication. En effet, l'obtention de la phase parfaite  $L2_1$  est complexe à obtenir et difficile à transférer au niveau technologique, principalement en raison des températures de dépôt et de recuit. Or la phase B2, qui présente à la fois une forte polarisation en spin et un faible  $\alpha$ , peut être obtenue à des températures plus basses (entre 350° et 450°), voire même à partir d'un dépôt à l'ambiante suivie d'un recuit à une température inférieure à 400°. De plus, nous avons montré que l'irradiation aux ions  $He^+$  favorise cet ordre. Ainsi, ce procédé déjà largement utilisé dans l'industrie micro-électronique peut être un très bon complément, voire une alternative crédible, au recuit à haute température pour le transfert de ces matériaux au domaine de la micro-électronique pour lesquels les températures de recuit doivent rester faibles. Evidemment, de plus amples études doivent être menées pour confirmer cela. Dans nos travaux et jusqu'à présent, nous n'avons utilisé l'irradiation que comme un « outil ». Des études beaucoup plus fondamentales seraient nécessaires pour comprendre les mécanismes de dommage induits dans cet alliage.

L'ensemble des travaux auxquels j'ai participé depuis 2011 dans cette thématique sont répertoriés ci-dessous du plus récent au plus ancien.

- ***First-principles calculation of the effects of partial alloy disorder on the static and dynamic magnetic properties of  $Co_2MnSi$ .*** B. Pradines, R. Arras, I. Abdallah, N. Biziere, and L. Calmels, Physical Review B. 95, 094425, 2017.
- ***Evolution of magnetic properties and damping coefficient of  $Co_2MnSi$  Heusler alloy with Mn/Si and Co/Mn atomic disorder.*** I. Abdallah, B. Pradines, N. Ratel-Ramond, G. BenAssayag, R. Arras, L. Calmels, J.F. Bobo, E. Snoeck and N. Biziere, Journal of physics D, 50, 035003, 2017.
- ***Structural and magnetic properties of  $He^+$  irradiated  $Co_2MnSi$  Heusler alloys.*** I. Abdallah, N. Ratel-Ramond, CMagen, B. Pecassou, R. Cours, A. Arnoult, M. Respaud, J.F Bobo, G. BenAssayag, E. Snoeck and N. Biziere, Material Research Express 3, 046101, 2016.
- ***Broadband Ferromagnetic Resonance Study of  $Co_2MnSi$  Thin Films: Effect of the Film Thickness,*** G. Ortiz , A.Garcia , J.BenYoussef , N. Biziere , F. Boust , J.-F.Bobo , E. Snoeck , and N. Vukadinovic, IEEE TRANSACTIONS ON MAGNETICS, 49, 3, 2013.
- ***Growth, structural, and magnetic characterization of epitaxial  $Co_2MnSi$  films deposited on MgO and Cr seed layers,*** G. Ortiz, A. Garcia, N. Biziere, F. Boust, J. F. Bobo, E. Snoeck, Journal of Applied Physics, 113, 043921, 2013.

Les récents progrès réalisés dans la croissance des Heusler, notamment les travaux menés par l'équipe de l'Institut Jean Lamour de Nancy [14], [50], ont montré que l'épitaxie par jet moléculaire permettait d'obtenir des alliages de  $Co_2MnSi$  sur substrat de MgO en phase  $L2_1$  et présentant des propriétés proches de celles calculées par des méthodes ab-initio, que ce soit en terme de moment

magnétique, de polarisation en spin ou de facteur de relaxation. D'autres études [51], [52] ont démontré la possibilité de réaliser des jonctions tunnels à base de  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  avec jusqu'à 200% de TMR à température ambiante. Ainsi, ces matériaux sont désormais « mûrs » en laboratoire. Cependant, leur transfert au domaine de la micro-électronique implique de résoudre encore certains problèmes. J'ai déjà évoqué l'incompatibilité des températures de dépôt et de recuit pour l'obtention de la phase  $L2_1$ . Un autre inconvénient est de pouvoir faire croître ces matériaux sur des substrats compatibles avec la technologie CMOS. Une première étape importante a récemment été franchie par l'équipe de Nancy qui a réussi à faire croître un film polycristallin de  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  sur un substrat de verre. Leurs échantillons (déposés à  $450^\circ$  et recuits à  $750^\circ$ ) démontrent des zones à la fois  $L2_1$  et B2 et les propriétés magnétiques moyennes sont très bonnes ( $\alpha \approx 1.5 \cdot 10^{-3}$ , polarisation en spin proche de 100%) [53]. Ce résultat prouve la possibilité de faire croître ces matériaux sur des substrats autres que ceux généralement admis. J'aborderai ce thème dans la partie III.1 et présenterai une autre approche que je souhaite approfondir.

Développer cette thématique au CEMES m'a notamment permis de commencer à collaborer avec des personnes du laboratoire travaillant dans d'autres thématiques que le magnétisme, notamment Gérard BenAssayag spécialiste de l'irradiation ionique mais aussi les microscopistes (électronique). Ainsi, j'ai pu découvrir de nouvelles techniques expérimentales et des problématiques plus axées « matériaux » que ce que je n'avais l'habitude d'étudier. Cela m'a également permis de monter le banc de mesures radiofréquences et de mesures de magnéto transport du CEMES.



## II. Nanomagnétisme de nanocylindres.

Les nanofils magnétiques à symétrie cylindrique ont été étudiés dès le milieu des années 90, afin de réaliser des empilements de multicouches ferromagnétiques et non magnétiques pour obtenir de fortes variations d'effet GMR [54]–[61]. Puis ils ont été utilisés par la suite comme structures pour le transfert de spins dans des dispositifs ayant des dimensions nanométriques, afin de réduire le courant critique de retournement [62]–[68]. Dans les années 2000, la démonstration par simulations micromagnétiques de la possibilité de manipuler des parois avec de faibles valeurs de courant électrique dans les nanocylindres a suscité un regain d'intérêt de ce domaine [69]. Ces travaux ont motivé de nombreuses études, à la fois de simulations et expérimentales, que ce soit pour comprendre la structure des parois dans la symétrie cylindrique, ou bien pour fabriquer de nouvelles géométries telles que les nanotubes. Dans mes travaux je me suis concentré sur les nanocylindres « pleins », ainsi je ne discuterai pas le cas des nanotubes. J'invite le lecteur curieux à consulter ces revues pour de plus amples détails sur ces systèmes [70], [71].

*Une grande partie de mes activités depuis 2013 a consisté à étudier les états magnétiques rémanents dans des nano-objets à symétrie cylindrique. Nous avons commencé par étudier la formation de parois dans des nanocylindres de nickel avant de nous intéresser aux configurations de systèmes multicouches composés d'empilement Co/Cu. Avant de présenter les résultats obtenus sur ces différents systèmes, je commencerai par détailler les différentes techniques expérimentales (croissance, observation) qui ont permis ces études. L'ensemble de ces travaux a été réalisé en collaboration avec Christophe Gatel (CEMES), notamment pour les expériences d'holographie électronique, et Travis Wade (LSI) pour la fabrication des échantillons. J'ai, entre autre, participé très activement aux travaux de thèse de David Reyes encadré par C. Gatel et B. Warot-Fonrose sur l'étude des configurations dans les nanofils de Co/Cu.*

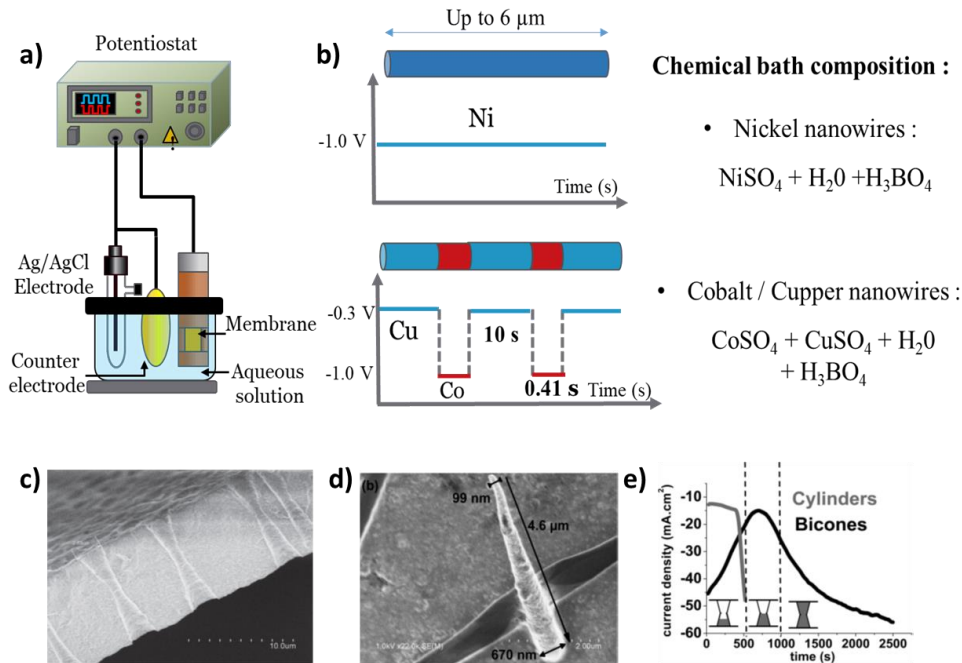
### II.1. Méthodes de fabrication et d'observation.

#### II.1.1. Croissance de nanocylindres par électrodéposition dans des membranes.

Différentes techniques ont été développées afin de réaliser des nanocylindres ou des nanotubes. Une revue très complète de ces méthodes peut être trouvée dans [71]. Parmi celles-ci, l'électrodéposition est particulièrement intéressante grâce à sa simplicité de mise en œuvre et son faible coût. C'est cette méthode que j'ai utilisée durant mes post doctorats à l'EPFL ou au LSI, puis celle que nous avons utilisée avec Travis Wade et David Reyes pour réaliser les structures présentées dans les parties II.2 et II.3.

Bien que l'électrochimie soit une science complexe, elle peut être présentée de manière synthétique comme une réaction d'oxydo-réduction dans un bain électrochimique contenant les ions à déposer sur une surface conductrice. En plus du bain électrochimique, quatre éléments sont nécessaires à la réalisation d'un dépôt tel que schématisé sur la Figure 17. Une électrode de travail chargée négativement (cathode), sur laquelle s'opère la réduction des ions métalliques, une contre électrode chargée positivement (anode) permettant la réaction d'oxydation et la circulation du courant électrique, une électrode de référence de potentiel chimique connu, et enfin un potentiostat qui agit comme une source de courant et maintient une différence de potentiel électrique constante entre l'électrode de travail et l'électrode de référence. Dans nos études, nous avons utilisé une électrode de référence Ag/AgCl de potentiel 0.197 V. Lorsqu'il n'y a qu'une seule espèce d'ion métallique dans l'électrolyte, la relation entre le nombre de charges  $q$  fournie par le potentiostat pendant un temps  $t$  et la masse  $m$  de métal déposé

sur l'électrode de travail s'écrit  $q = \int_0^t Idt = neN_A \frac{m}{M}$ , où  $n$  est la charge électrique de l'ion,  $e$  la charge de l'électron,  $N_A$  le nombre d'Avogadro et  $M$  la masse molaire du métal. Dans le cas où plusieurs éléments sont déposés, comme pour les multicouches Co/Cu, l'équation ci-dessus doit être modifiée pour prendre en compte la réduction de chaque espèce chimique.



**Figure 17 :** (a,b) Principe de l'électrodéposition de nanofils de nickel ou des multicouches de cobalt/cuivre dans des membranes polycarbonate. (c) Image FESEM de traces en forme de bi-cônes dans des membranes PET. (d) Demi cône issu de l'électrodéposition dans les traces montrées en (c). Seul la moitié du cône est visible, l'autre moitié s'étant brisée lors de la dissolution de la membrane pour réaliser l'image. (e) Evolution dans le temps du courant électrique circulant dans le bain électrochimique en fonction de la géométrie de pores. Le courant diminue dans le cas de cônes en raison de la diminution progressive de la surface de dépôt lorsqu'on arrive au niveau de la constriction. Dans le cas de cylindres, le courant est à peu près constant puis augmente lorsque le dépôt arrive à la surface de la membrane. Les images en (c,d) et (e) sont tirées de [72], [73].

Afin de réaliser des nanostructures cylindriques, la méthode du « template » a été largement utilisée. Celle-ci consiste à déposer le matériau que l'on souhaite à l'intérieur d'une matrice, généralement une membrane nanoporeuse en polycarbonate ou en alumine. Pour réaliser un dépôt électrochimique, la membrane doit être préalablement métallisée sur une de ses surfaces pour combler les trous et agir comme électrode de travail. Un potentiel électrique correspondant au potentiel d'oxydoréduction de l'élément à déposer est ensuite appliqué à cette couche métallique afin de remplir les pores de la matrice. Plus précisément, on applique une différence de potentiel par rapport à l'électrode de référence. Plusieurs paramètres influent sur les conditions de dépôt et les propriétés du matériau déposé (taille de grain, morphologie) comme le pH de la solution électrolytique, la température du bain, la concentration en ions réducteurs et oxydants etc.. Cette méthode permet d'obtenir de fortes densités de nano objets et d'étudier par exemple les effets de couplage dipolaire entre nanofils magnétiques [74]–[77]. L'épaisseur des couches est contrôlée par le temps pendant lequel est appliquée la différence de potentiel électrique, comme schématisé sur la Figure 17.b. Dans le cas des systèmes multicouches, chaque élément chimique présentant son propre potentiel d'oxydoréduction, il est possible de déposer différents éléments à partir du même bain. Cependant, cela induit des phénomènes de co-dépôt avec l'introduction d'impuretés de

l'une des deux espèces dans l'autre. Pour les systèmes Co/Cu, des impuretés de Cu sont déposées dans les dépôts de Co du fait que le potentiel de dépôt du Cu est supérieur. Cependant, en gardant la concentration du Cu faible dans la solution, cet effet peut être plus ou moins limité. Nous reviendrons sur les conséquences de ceci dans la partie II.3. Pour éviter le co-dépôt d'espèces, la méthode du double bain est préférable mais plus complexe à mettre en œuvre [78]–[80].

Bien que la géométrie cylindrique soit généralement celle la plus recherchée pour l'étude de la propagation de paroi, d'autres géométries ont été explorées. Pour cela, la matrice de départ et le traitement chimique à appliquer pour révéler les traces à l'intérieur de celle-ci doivent être choisis avec précaution. Par exemple, des nanofils avec des diamètres modulés le long de leur axe ont pu être réalisés dans des membranes en alumine, configuration particulièrement intéressante pour piéger des parois. Durant mon post-doctorat au LSI, j'ai étudié, en collaboration avec les chimistes du groupe, des constriction cylindriques dans des géométries coniques. A titre d'exemple, les Figure 17.c,d montrent la trace en forme de cône à l'intérieur d'une matrice en PET (poly(ethylene terephthalate)) et le dépôt de nickel résultant de l'électrodéposition (seule la moitié du cône est visible ici) [72], [73]. Pour toutes les études menées au CEMES, nous avons opté pour les membranes commerciales de polycarbonate dont l'épaisseur est de l'ordre de 6  $\mu\text{m}$  et dont le diamètre des pores est compris entre 30 et 100 nm. Comparativement à celles en alumine, elles présentent l'inconvénient d'une plus grande dispersion du diamètre des pores et d'une plus grande rugosité de surface. En revanche elles sont peu couteuses et facilement manipulables.

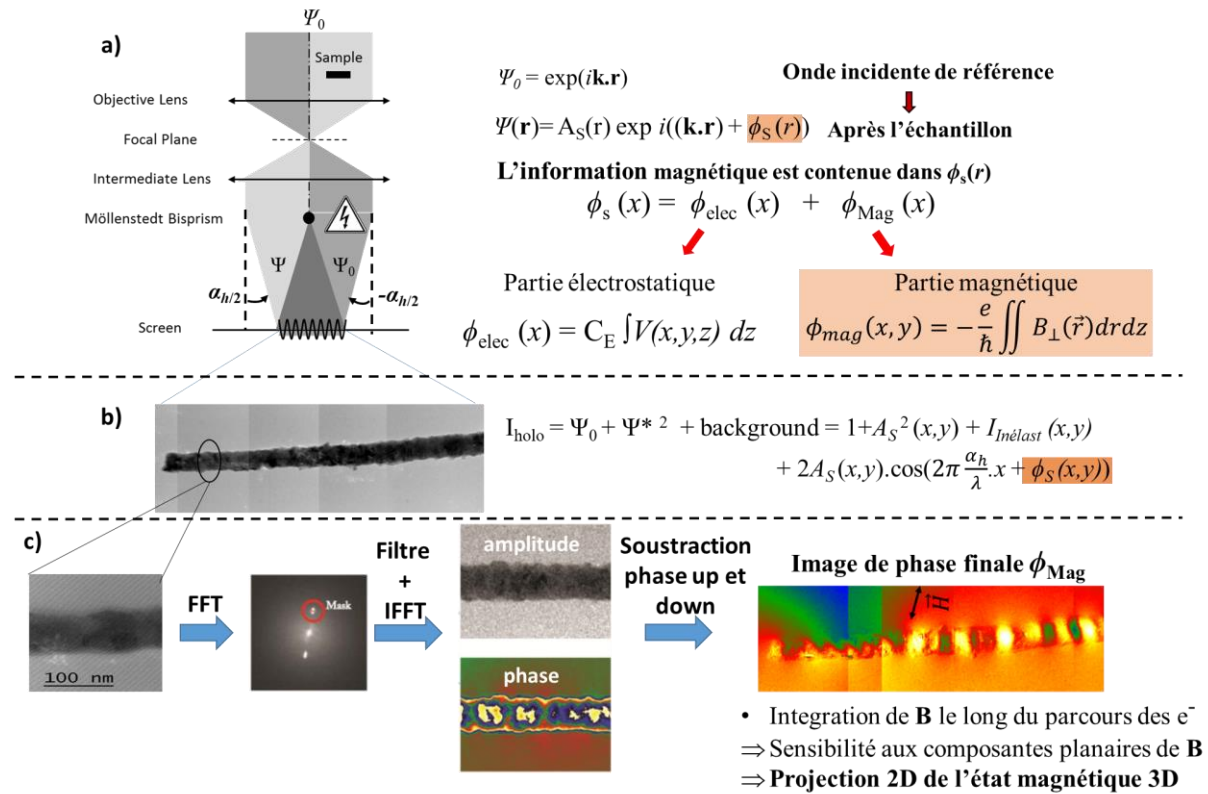
### **II.1.2. Observation magnétique d'un nanocylindre individuel : holographie électronique et reconstruction micromagnétique.**

Deux des difficultés majeures lorsqu'on étudie des nanofils électrodéposés sont la dispersion des propriétés magnétiques d'un nanofil à un autre ainsi que l'effet de l'interaction dipolaire entre fils. Ces effets peuvent moyenniser les propriétés magnétiques mesurées et rendre l'interprétation des mesures expérimentales très complexe. Afin d'observer les mécanismes de retournement de l'aimantation d'un seul nano objet, il est nécessaire d'utiliser des méthodes avec une résolution spatiale adaptée à celle du nanofil individuel. Il en existe plusieurs comme la magnéto-optique [81], [82] pour des nanofils de diamètre supérieur à 200 nm, la microscopie à force magnétique (MFM) [83]–[85], la microscopie électronique avec en particulier l'holographie électronique [86]–[88], ou enfin la microscopie par rayons X [89]–[91]. Seules les deux dernières méthodes permettent d'obtenir une information sur la structure magnétique interne du matériau, contrairement à l'information obtenue par MFM par exemple qui relève du couplage dipolaire entre les champs de fuite de la pointe et de l'échantillon.

*Lorsque j'ai commencé à étudier les parois magnétiques dans les nanocylindres, mon objectif était de pouvoir observer leur structure interne. J'ai donc été naturellement amené à discuter puis à collaborer avec mon collègue Christophe Gatel, qui développe de nouvelles approches expérimentales et numériques pour le traitement des images d'holographie électronique. Cette méthode me paraissait être très pertinente pour observer avec une grande résolution spatiale les états magnétiques des nanocylindres. La première étude faite par Beeli *et al.* d'un nanofil électrodéposé par cette méthode date de 1996 [86]. Cependant, la résolution spatiale accessible à cette époque ne permettait pas de « voir » précisément la structure interne des parois, mais seulement les champs de fuite autour du fil. Depuis, les progrès techniques immenses et en particulier l'apparition des correcteurs d'aberrations sphériques ont permis de gagner un ordre de grandeur sur la résolution spatiale.*

De nombreux développements ont été nécessaires afin de pouvoir observer et décrire l'état magnétique dans nos nanostructures. Pendant que les outils sur le traitement d'image et les expériences d'holographie ont été développés par Christophe, j'ai réalisé les simulations micromagnétiques. Nous

avons ainsi toujours étroitement travaillé ensemble, chacun de nous deux amenant ses propres compétences à ces études. Pour les premiers travaux sur les nanocylindres de Ni, Rémy Lassalle Ballier (alors au Trinity College de Dublin) nous a apporté son expertise dans le domaine des simulations micromagnétiques. Je tiens ici à le remercier chaleureusement pour son aide de la première heure. Je vais donc détailler ces deux aspects nécessaires à la compréhension des résultats présentés dans les parties II.2 et II.3.



**Figure 18 :** (a) Principe de l'holographie électronique en configuration off-axis. L'onde de référence est notée  $\psi_0$ . Cette onde électronique provient d'une source très cohérente et très brillante. La partie de l'onde de référence qui traverse l'échantillon est notée  $\psi$ . (b) Image holographique d'un nanocylindre composé de multicouches Co/Cu. L'image a été reconstituée à partir de plusieurs hologrammes enregistrés indépendamment. (c) Description des étapes numériques permettant d'obtenir la contribution magnétique dans l'image de phase.

### L'holographie électronique.

L'holographie électronique est une méthode interférométrique en microscopie électronique à transmission. Elle permet d'obtenir les variations de phase du faisceau électronique induites par la présence des potentiels électrostatique et magnétique d'un échantillon. Un schéma du principe de l'expérience est présenté sur la Figure 18. Ici la configuration est dite off-axis car l'échantillon n'est pas placé dans l'axe optique du microscope. La figure d'interférence est obtenue par superposition d'une onde de référence  $\psi_0$  qui passe dans le vide et d'une onde  $\psi$ , appelée aussi onde objet, qui a traversé le matériau. Plus précisément,  $\psi$  correspond à la partie de l'onde incidente  $\psi_0$  qui a traversé l'échantillon. Ainsi, l'holographie électronique requière une source d'électrons cohérents. La superposition des deux ondes est réalisée en appliquant une tension à un bi-prisme de Möllensted qui correspond à un fil avec un diamètre de quelques centaines de nanomètres sur lequel un potentiel électrique est appliqué.

En raison des interactions électrostatiques et magnétiques avec l'échantillon, l'onde objet présente une modification de son amplitude et de sa phase par rapport à l'onde de référence. En considérant que  $\psi_0$  s'écrit  $\psi_0(\vec{r}) = e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}$  (nous considérons que celle-ci a une amplitude unité), l'onde objet peut s'écrire  $\psi(\vec{r}) = A_s(\vec{r}) e^{i(\vec{k}\cdot\vec{r} + \phi(\vec{r}))}$ , où  $\vec{r} = (x, y, z)$  est le vecteur position et  $\vec{k}$  est le vecteur d'onde électronique. Lorsque le bi-prisme est polarisé,  $\psi_0$  et  $\psi$  sont déviées d'un angle  $\alpha/2$  et  $-\alpha/2$  respectivement. Cet angle dépend notamment de la valeur du potentiel appliqué au bi-prisme. L'intensité de l'image dans le plan (x,y) résultant de la figure d'interférence s'écrit (dans le cas où z est la direction de l'axe optique et en considérant que l'image se forme en  $z = 0$ ) :

$$I_{holo}(x, y) = |\psi_0 + \psi|^2 = 1 + A_s^2(x, y) + 2A_s(x, y) \cdot \cos(2\pi \frac{\alpha \hbar}{\lambda} \cdot x + \phi(x, y)) \quad (6)$$

Les deux premiers termes à droite de l'équation (6) correspondent à l'intensité classique obtenue en microscopie en transmission conventionnelle (image dite en champ clair). Le troisième terme correspond à la contribution de la figure d'interférence qui induit une variation d'intensité en cosinus et qui dépend de la variation de phase induite par le matériau. Si cette variation de phase est d'origine électromagnétique elle s'écrit :

$$\phi(x, y) = \phi_{elec}(x, y) + \phi_{Mag}(x, y) = \frac{\pi\gamma}{\lambda U^*} \int V(\vec{r}) dz - \frac{e}{\hbar} \iint B_{\perp}(\vec{r}) dr \cdot dz \quad (7)$$

avec  $\lambda$  la longueur d'onde des électrons,  $\gamma$  le facteur de Lorentz relativiste,  $U^*$  le potentiel relativiste d'accélération des électrons,  $e$  la charge de l'électron et  $\hbar$  la constante de Planck réduite. L'équation (7) est appelé l'équation d'Aharonov-Bohm. Le premier terme  $\phi_{elec}(x, y) = C_E \int V(\vec{r}) dz$  provient du potentiel électrostatique du matériau, c'est-à-dire le potentiel atomique et le potentiel dû à un éventuel excès de charges. Le second terme  $\phi_{Mag}(x, y) = -\frac{e}{\hbar} \iint B_{\perp}(\vec{r}) dr \cdot dz$  provient de la contribution des composantes de l'induction magnétique perpendiculaire à la direction z des électrons. On peut également relier les dérivées de  $\phi_{Mag}$  aux composantes planaires de l'induction :

$$\frac{\hbar}{e} \frac{\partial \phi_{Mag}(x, y)}{\partial y} = \int B_x(x, y, z) \cdot dz \quad \text{et} \quad \frac{\hbar}{e} \frac{\partial \phi_{Mag}(x, y)}{\partial x} = \int B_y(x, y, z) \cdot dz \quad (8)$$

La valeur de la variation de phase dans la direction x (respectivement y) est donc proportionnelle à la composante  $B_y$  (respectivement  $B_x$ ) de l'induction intégrée le long du parcours des électrons (ici z). Notons que la composante  $B_z$  ne contribue pas à la variation de la phase. Nous avons donc une image projetée en 2 dimensions qui contient l'information magnétique « vue » par les électrons dans les 3 dimensions. Les difficultés liées à cet effet de projection seront discutées dans la partie II.3.

La procédure pour obtenir  $\phi$  est la suivante. Un premier hologramme (hologramme « up ») est d'abord enregistré. Une transformée de Fourier de celui-ci est réalisée (Figure 18) où l'on peut voir apparaître une zone centrale correspondant à l'image en champ clair et deux autres espacées de la même distance du centre et correspondant à la fréquence porteuse des franges d'interférences. En sélectionnant une de ces zones à l'aide d'un filtre numérique et en calculant la transformée de Fourier inverse, il est possible de retrouver l'information sur l'amplitude  $A_s(x, y)$  et la phase  $\phi(x, y)$  de l'onde objet. Ainsi, nous obtenons deux images, l'une appelée image d'amplitude et correspondant à  $A_s(x, y)$  et l'autre appelée image de phase et correspondant à  $\phi(x, y)$ .

L'image de phase est la plus importante pour nos études mais elle contient à la fois l'information magnétique et l'information électrostatique. Afin de séparer les deux contributions, un second hologramme (hologramme « down ») est enregistré mais cette fois en retournant de  $180^\circ$  l'échantillon. Dans ce cas  $\phi_{Mag}$  change de signe au contraire de  $\phi_{elec}$  [92]. Le même traitement numérique est ensuite appliqué à cet hologramme. Après un réalignement numérique des images de phases « up » et « down » la demi somme ou la demi soustraction de ces deux phases permettent d'obtenir  $\phi_{elec}$  ou  $\phi_{Mag}$  respectivement. En toute rigueur il est important de noter qu'en réalité quatre hologrammes sont enregistrés pour réaliser la procédure complète. En effet, pour chaque configuration « up » ou « down »,

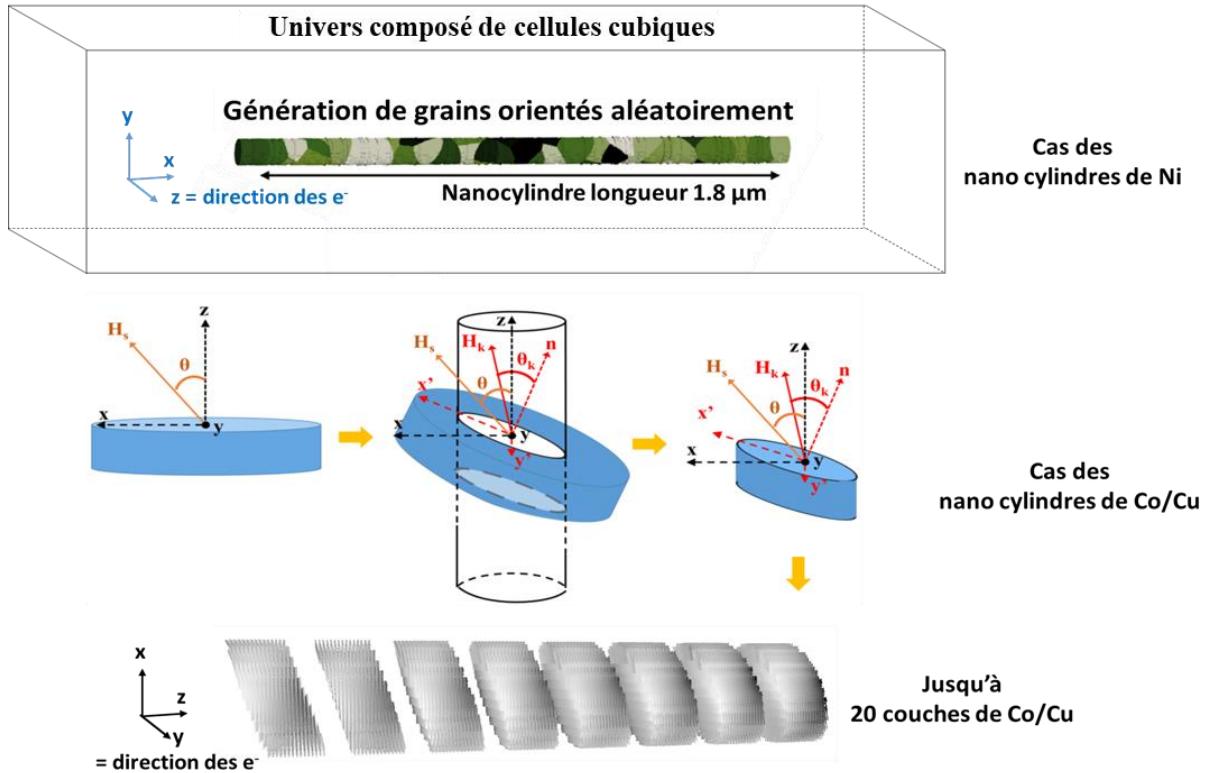


un hologramme de référence est enregistré dans une zone de vide. Ceci permet de soustraire aux images de phase « up » et « down » les contributions parasites liées aux différents éléments du microscope (franges de Fresnel du bi-prisme, distorsions liées aux lentilles du microscope et du détecteur etc..). Ceci rajoute donc une étape numérique supplémentaire pour obtenir  $\phi_{Mag}$ . Dans la suite de ce manuscrit, j'appellerai « image de phase » l'image correspondant uniquement à la contribution magnétique  $\phi_{Mag}$  extraite du traitement numérique des images.

### **Les simulations micromagnétiques.**

Alors que l'un des intérêts majeurs de l'holographie électronique réside dans sa capacité à sonder l'état magnétique à l'intérieur d'un nano objet avec des résolutions de l'ordre du nm, l'une des difficultés principales réside dans l'interprétation de l'image de phase finale qui, comme expliqué ci-dessus, correspond à la projection 2D de l'induction 3D dans le matériau. Pour ce faire, nous avons opté pour une comparaison quantitative entre les images de phases expérimentales et celles reconstruites à partir du calcul micromagnétique des états. Ayant une longue expérience avec le solveur OOMMF [93], que j'utilise depuis plus de 15 ans, mon choix s'est naturellement porté vers celui-ci. Mais d'autres solvers, comme Mumax3, sont également tout à fait adaptés. L'un des prérequis pour réaliser la reconstruction magnétique est d'avoir des cellules cubiques ou rectangulaires, ce qui facilite grandement l'intégration des composantes de l'induction pour obtenir l'image de phase. Les solvers utilisant des cellules trapézoïdales permettent de reproduire plus fidèlement les structures circulaires à très petites échelles mais posent des problèmes pour la reconstruction de l'image de phase.

Afin de comparer à l'expérience d'holographie, l'état rémanent du système est d'abord calculé avec OOMMF en reproduisant l'histoire magnétique de l'échantillon, notamment la direction et l'amplitude du champ de saturation puis le retour à la rémanence. En effet, les observations par holographie électronique sont réalisées à champ nul dans le microscope électronique après qu'un champ de saturation de 1T ait été appliqué ex-situ aux nanofils dans notre électro-aimant. Un code que j'ai développé (initialement en Delphi, aujourd'hui en python) permet de calculer l'induction magnétique en additionnant le fichier aimantation au fichier de champ démagnétisant tel que  $\vec{B} = \mu_0(\vec{M} + \vec{H}_D)$ . Ensuite, les composantes de l'induction sont intégrées dans la direction d'observation en holographie. Si celle-ci correspond par exemple à la direction z, nous obtenons un fichier final donnant pour chaque cellule du plan (x,y) un triplet  $B_x(x,y)$ ,  $B_y(x,y)$ ,  $B_z(x,y)$  avec par exemple  $B_x(x,y) = \sum_z B_x(x,y,z)$ . La somme est effectuée sur toute la longueur z de « l'univers », qui correspond au volume total de la simulation.



**Figure 19 :** (En haut) Exemple de géométrie utilisée pour calculer l'état rémanent dans un nanocylindre de Ni. (En bas) Procédure schématisée pour l'obtention de la géométrie finale des couches de Co/Cu.  $H_s$  représente le champ magnétique appliqué,  $H_k$  est la direction de l'anisotropie cristalline,  $\mathbf{n}$  est le vecteur normal au plan de la couche.

A partir de ce fichier de composantes dans le plan intégrées, un programme calcul l'image de phase résultante  $\phi_{Mag}(x,y)$  à partir de la relation :

$$\phi_{Mag}(x,y) = \frac{\mu_0 M_s t e}{2h} \text{Im}[(b_x(x,y) + i \cdot b_y(x,y)) \times \frac{-1}{x+i \cdot y}] \quad (9)$$

où  $\mu_0$  est la permittivité du vide,  $M_s$  est l'aimantation à saturation du matériau,  $t$  est la longueur de l'univers dans la direction de propagation des électrons,  $b_x(x,y)$  et  $b_y(x,y)$  les composantes normalisées de l'induction. Le signe  $\times$  représente l'opérateur convolution. Ce traitement numérique permet ainsi de calculer à partir d'une simulation micromagnétique une image de phase en 2D, calibrée à partir des paramètres magnétiques de la nanostructure que l'on étudie, qui peut être directement comparée qualitativement et quantitativement à l'image de phase expérimentale.

Concernant les simulations micromagnétiques, certaines précautions doivent être prises afin d'obtenir un état rémanent « réaliste ».

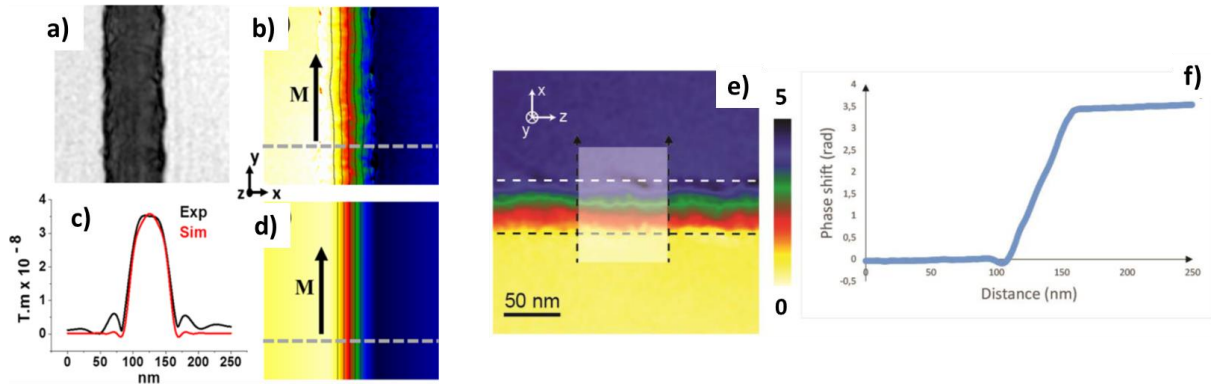
- La taille de l'univers et des cellules : il est bien connu que la taille des cellules cubiques doit être inférieure à la longueur d'échange du matériau  $L_{EX} = \sqrt{2A/\mu_0 M_S^2}$  ou  $A$  est la constante d'échange (typiquement de l'ordre de 5 nm dans la plupart des matériaux ferromagnétiques). Dans nos simulations, la taille de cellule est de  $2.5 \times 2.5 \times 2.5 \text{ nm}^3$ . Ceci permet notamment de remplir le critère sur la longueur d'échange mais également de réduire les effets de bords dans le cas de symétrie cylindriques. Un autre point très important concerne la taille de l'univers (taille totale du système simulé en incluant le vide autour de la nanostructure, voir Figure 19). Pour reproduire le plus fidèlement possible l'image de phase expérimentale, il est important que l'univers soit suffisamment

grand pour englober un maximum du champ dipolaire rayonné par la nanostructure. En effet, celui-ci induit une variation de phase électronique lors de l'intégration sur le chemin des électrons. Pour déterminer la taille de l'univers, des tests de convergence de la valeur de la phase en fonction des dimensions de l'univers doivent être réalisés. Ceci est important pour déterminer un « optimum » de taille car plus l'univers est grand, plus le temps de calcul et les besoins en mémoire RAM augmentent (le nombre total de cellules augmentant). A titre d'exemple, dans le cas d'une simulation d'un nanocylindre de Ni de diamètre d'environ 50 nm et de longueur 3.6  $\mu\text{m}$ , la taille de l'univers simulé est de l'ordre de  $4.8 \times 0.6 \times 0.6 \mu\text{m}^3$ . Ceci représente environ 110 millions de cellules et le temps de calcul de l'état rémanent peut atteindre plusieurs jours (en fonction du nombre de pas en champ pour revenir à champ nul). Ceci est généralement inaccessible aux ordinateurs de bureaux qui ne sont pas dédiés aux calculs ou aux ordinateurs portables. Pour réaliser ces simulations, j'ai pu bénéficier d'heures de calcul sur le supercalculateur de la plateforme Toulousaine Calmip via des appels à projets semestriels. Les calculs ont été réalisés sur les calculateurs MESCA, EOS et maintenant OLYMPE permettant d'avoir sur un nœud spécifique jusqu'à 100 Go de RAM.

- L'application du champ de saturation et le retour à champ nul : il est important que le passage entre l'état saturé et l'état rémanent soit effectué en plusieurs étapes, avec notamment un faible pas en champ au fur et à mesure que l'on se rapproche du champ nul. Ceci permet d'éviter que le système ne se fige dans des états métastables. Cet effet est particulièrement visible dans le cas de systèmes multicouches pour lesquels les couplages dipolaires induisent des configurations complexes. Afin de reproduire dans les calculs la précision avec laquelle nous pouvons aligner le champ magnétique dans notre électro-aimant avec la grille de microscopie, chaque simulation est réalisée avec un champ de saturation désaligné de  $10^\circ$  par rapport aux axes de symétrie du système.
- La géométrie de la nanostructure et ses paramètres magnétiques : ceci est le point le plus critique dans les simulations et sera rediscuté en particulier dans la partie II.3. Il est évident que les paramètres magnétiques du matériau influent directement sur l'état rémanent et par conséquent sur l'image de phase simulée. Cependant, la géométrie de l'échantillon joue également un rôle prépondérant, que ce soit en modifiant l'état rémanent du fait de l'anisotropie de forme, ou bien en raison de l'angle sous lequel les électrons traversent la structure. Dans le cas des nanocylindres de Ni, nous avons simulé un système polycristallin afin de reproduire la structure du matériau. Pour reproduire les grains, le nanofil est décomposé en polyèdres de Voronoi, chacun d'entre eux présentant une orientation aléatoire de l'anisotropie cristalline. Cette partie spécifique du script OOMMF a été écrite par Rémy Lassalle Ballier. Non seulement la création de « grains » permet d'être au plus proche du système réel, mais il permet aussi de stabiliser les parois de domaines dans les simulations. Dans le cas des multicouches Co/Cu, je montrerai dans la section II.3 que celles-ci peuvent être orientées de différentes façons par rapport à l'axe du fil. Ainsi, nous n'avons pas des couches strictement cylindriques. Pour reproduire la complexité de leurs géométries dans les calculs, la procédure consiste à créer un disque de très grand diamètre puis de lui appliquer une rotation selon les axes  $x$  et  $y$  par exemple (Figure 19). Ensuite, nous le faisons traverser par un cylindre dont le diamètre est déterminé grâce aux images de microscopie. Seul le volume correspondant à leur intersection est conservé dans la simulation. Nous obtenons alors un disque dont les deux faces supérieures et inférieures auraient subi une rotation suivant les axes  $x$  et  $y$ .

Dans le cas où la géométrie de l'échantillon est simple avec une aimantation uniforme à l'intérieur, il est possible en utilisant les relations (8) de remonter à la valeur de l'aimantation à saturation  $M_s$  du matériau grâce à l'image de phase magnétique. Par exemple, les Figure 20.b et c présentent les images de phase expérimentale et reproduite par simulation micromagnétique obtenues d'un nanocylindre de Ni de 70 nm de diamètre. Ce nanofil présente une aimantation uniformément alignée le long de son axe. Cette configuration magnétique est celle attendue dans un nanocylindre « plein » à la rémanence en

raison de l'anisotropie de forme du système. Le diamètre du fil est déterminé à partir de l'image en champ clair (Figure 20.a) ou bien à partir de l'image d'amplitude. Sur la Figure 20.c, nous montrons le profil de l'aimantation projetée (car nous avons une image 2D) obtenue grâce aux équations (8). Nous retrouvons bien le profil cylindrique qui explique pourquoi le signal est plus important au centre puisque c'est là que l'épaisseur de matériau est la plus importante. Dans ce cas, l'accord entre la simulation et l'expérience permet de déterminer que l'aimantation dans le fil est de 0.48 Teslas.



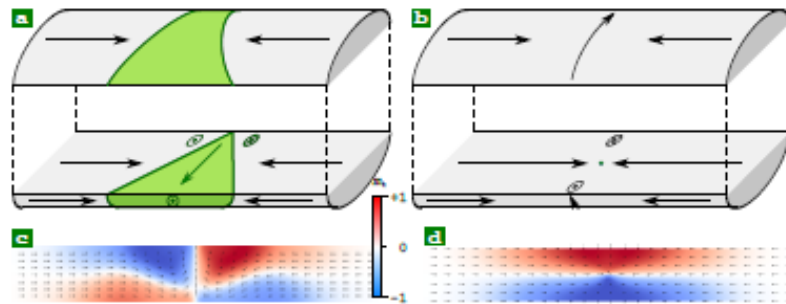
**Figure 20 :** (a) Image en transmission d'un nanocylindre de Nickel de diamètre 55 nm. Image de phase expérimentale (b) et simulée (d). (c) Profil de l'induction magnétique projetée le long de la ligne pointillée en (b) et (d). Images tirées de [88]. (e) Image de phase magnétique dans un nanofil de Cobalt de 44 nm de diamètre et variation de la phase (f) dans la direction indiquée par les flèches en pointillés dans (e). La valeur est moyennée sur l'ensemble de la zone grisée. Les images (e) et (f) sont tirées du manuscrit de thèse de David Reyes [94].

Une autre façon plus directe mais un peu moins précise de déterminer  $M_s$  dans le cas d'une aimantation uniforme est de mesurer directement la variation de l'amplitude de la phase dans la direction perpendiculaire à l'axe du fil. La Figure 20.e montre l'image de phase dans un nanocylindre de cobalt. La variation de phase associée (Figure 20.f) permet de déterminer  $M_s$  en approximant une structure cylindrique parfaite (ici le diamètre est de 44 nm). De cette manière, l'équation (8) peut s'approximer sous la forme  $\Delta\phi = \frac{e}{h}|B_z|\pi a^2 = \frac{e}{h}M_s\pi a^2$ , où  $a$  est le diamètre du fil. Cependant, la simulation numérique de la variation de phase est plus précise.

## II.2. Transition de paroi dans un nanocylindre de Ni.

L'un des articles ayant motivé les études que nous avons menées sur les parois dans les nanocylindres est celui de M. Yan *et al.* [69] qui ont introduit le concept de paroi de domaine « sans masse ». Grâce à des simulations micromagnétiques, les auteurs ont démontré qu'une paroi transverse dans un nanocylindre pouvait se déplacer sans que sa vitesse n'atteigne le seuil de Walker [95]–[97]. Ce seuil correspond à la limite de la valeur du champ magnétique (ou du courant électrique) au-dessus de laquelle la vitesse d'une paroi chute brutalement. Cet effet apparait lorsque le déplacement de la paroi devient trop rapide pour que les spins dans la paroi puissent s'orienter dans la direction du champ effectif local, en particulier dans la direction perpendiculaire au plan dans le cas d'un ruban, pour laquelle le champ dipolaire augmente. Lorsque cette vitesse critique est atteinte, la paroi présente des variations périodiques de géométrie et sa vitesse de déplacement moyenne diminue drastiquement. Ceci est très limitant pour l'utilisation technologique de parois magnétiques dans des nanorubans lithographiés.

Dans le cas d'une paroi transverse dans un système à symétrie cylindrique, le champ dipolaire, et donc le champ effectif, ne varie pas lors de la rotation des spins à l'intérieur de la paroi ce qui permet d'obtenir de très grandes vitesses avec une faible densité de courant électrique ou un faible champ magnétique. Le même type d'effet a ensuite été prédit pour des parois de type « point de Bloch » [98], [91], [99], [100]. Cette géométrie de paroi particulière est généralement décrite sous la forme d'une structure de type vortex séparant deux domaines « head to head » ou « tail to tail ». La particularité de cette paroi réside dans le fait qu'en son centre il est impossible de définir la direction de l'aimantation. Cette discontinuité au niveau micromagnétique traduit le passage abrupt entre les deux directions d'équilibre de l'aimantation suivant l'axe du fil. La configuration en vortex de ce type de paroi permet l'obtention de vitesses encore plus élevées que pour une paroi transverse, ce qui la rend attractive pour les applications [101]–[103].



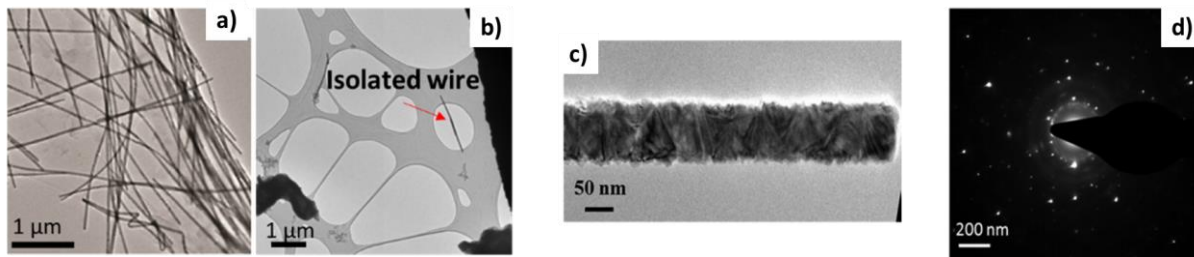
**Figure 21 :** (a) Schématisation d'une paroi transverse (a) ou « point de Bloch » (b) dans un nanocylindre. Celui-ci est coupé dans sa longueur afin de faciliter la vue de la structure interne des parois. (c) Simulation micromagnétique vue selon une coupe transverse le long du cylindre pour la paroi transverse (c) ou point de Bloch (d). Ces images sont tirées de [71].

*Au début de nos travaux en 2013, la plupart des études sur les parois dans les nanocylindres étaient réalisées par simulations et peu d'études expérimentales étaient rapportées. Il était prédit notamment qu'en fonction du diamètre du nanofil, une transition entre une paroi de type vortex (avec éventuellement une configuration de type « point de Bloch ») et une paroi de type transverse devait apparaître en diminuant le diamètre des fils [99], [104], [105]. Alors que le potentiel applicatif de ces objets était évident, j'ai souhaité d'abord étudier les parois transverses qui me semblaient être plus simples à obtenir. Aussi mon objectif était double. D'abord je souhaitais démontrer la transition entre paroi transverse et vortex et montrer que ces parois présentaient bien les caractéristiques prédites par les simulations micromagnétiques, ce qui nécessitait de voir « l'intérieur » de la paroi et ce qui n'avait donc pas été réalisé jusque-là. Le second objectif était de trouver un moyen de générer ces parois transverses, ce qui est un point clé pour ensuite pouvoir les manipuler.*

Nous avons choisi pour cette étude de réaliser des nanocylindres de Ni dans des membranes de polycarbonate (de chez « Poretics ») à partir d'une solution de  $\text{NiSO}_4 + \text{H}_3\text{BO}_4$ . Les nanofils ont ainsi des diamètres compris entre 50 et 90 nm et leurs longueurs sont de l'ordre de quelques microns. Afin d'étudier un nanoobjet individuel, l'une des étapes clés est la dissolution de la membrane. En effet, les résidus de polycarbonate vont induire du bruit dans les images de phase notamment parce que ces résidus se chargent sous l'effet du faisceau électronique. Le nettoyage est réalisé en trempant la membrane dans de multiples bains de  $\text{Cl}_2\text{CH}_4$ . Une fois nettoyés, les échantillons sont plongés dans une solution d'éthanol.

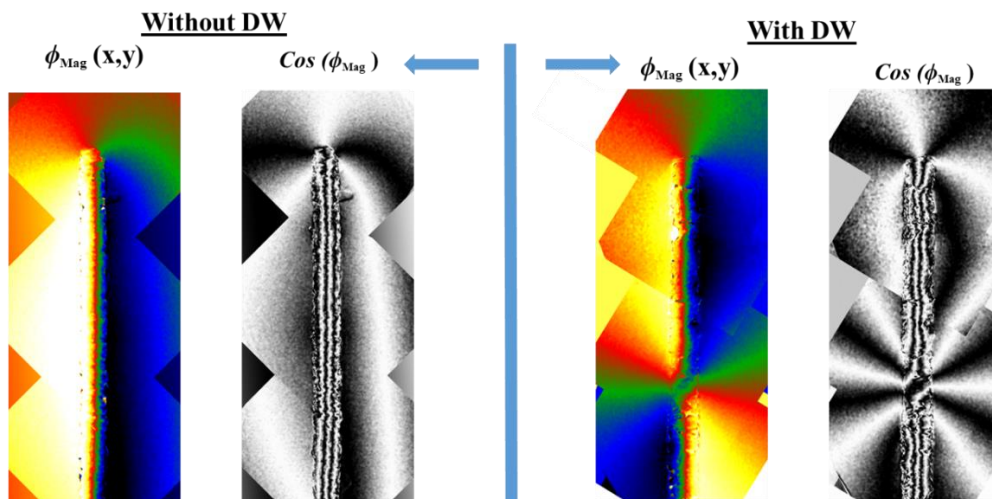
Afin de pouvoir étudier les nanofils in-situ, nous déposons une goutte de liquide sur une membrane en carbone tel que montré sur la Figure 22. Ils sont ensuite observés en microscopie électronique conventionnelle et en haute résolution pour déterminer les caractéristiques structurales du matériau, puis

en holographie électronique. Ces expériences ont été réalisées en mode Lorentz dans un microscope TECNAI F20 équipé d'un correcteur d'aberration sphérique. Cet équipement nous a permis d'obtenir une résolution spatiale de l'ordre de 5 nm en holographie électronique. Avant l'observation par holographie électronique un champ magnétique de saturation de 1 T est appliqué perpendiculairement à l'axe du nanofil (et donc au plan de l'image).



**Figure 22 :** Image en microscopie électronique conventionnelle d'une forêt de nanocylindres de Ni (a) ou d'un nanofil isolé de 90 nm de diamètre (b). (c) Image haute résolution du nanofil en (b) et figure de diffraction associée montrant le caractère polycristallin du Ni.

La Figure 22 montre que dans la plupart des cas, les nanofils sont agglutinés à cause des interactions dipolaires et des forces électrostatiques entre fils. Cependant, il est toujours possible de trouver un objet isolé magnétiquement des autres. L'imagerie haute résolution permet de vérifier le caractère polycristallin du Ni. Les cristaux ont généralement une taille de l'ordre du diamètre du nanofil et sont distribués de manière aléatoire. Afin de déterminer *in-situ* quels fils peuvent présenter une paroi, il est possible de regarder comment se répartit le champ de fuite dans l'espace entourant un fil. Comme le montre la Figure 23, la présence d'une paroi induit localement un changement de symétrie du champ rayonné.

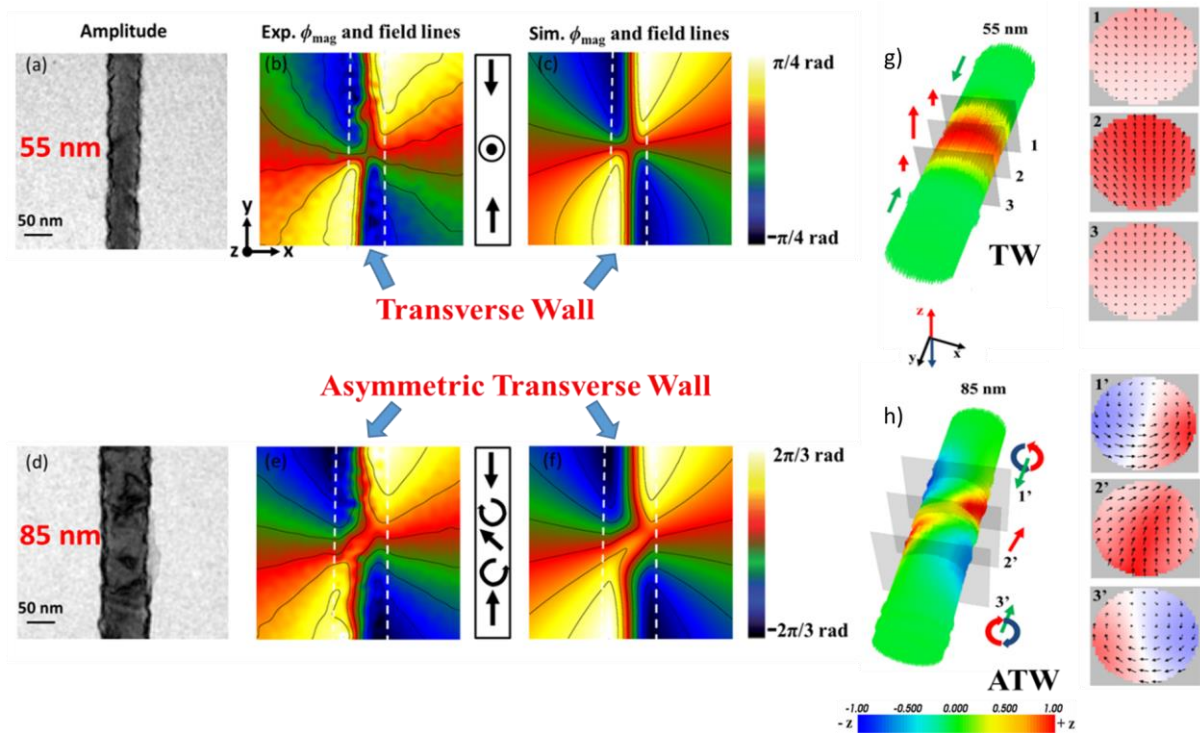


**Figure 23 :** (Gauche) Image de phase d'un nanofil de Ni de 90 nm de diamètre, uniformément aimanté. La figure en gris correspond aux lignes de flux du champ d'induction obtenues en calculant le cosinus de la phase. (Droite) Image de phase d'un nanofil de Ni de 95 nm de diamètre présentant une paroi hybride.

Nous avons étudié les parois dans des nanofils de différents diamètres. Les résultats principaux sont résumés sur la Figure 24 . Nous observons clairement deux types différents de parois. Pour le diamètre



le plus petit de 55 nm, les lignes de champ (que nous avons superposées directement à l'image de phase) sont symétriques par rapport aux axes  $x$  et  $y$  et apparaissent à la fois à l'intérieur et à l'extérieur du nanofil. De plus, au centre de la paroi il n'y a pas de ligne, ce qui signifie que l'aimantation pointe dans la direction du faisceau électronique (ici l'axe  $z$ ) et donc dans la direction du champ de saturation appliqué au préalable. Ce résultat est confirmé par la simulation micromagnétique. Celle-ci a été réalisée en utilisant les paramètres suivants  $\mu_0 M_s = 0.485$  T,  $A = 9 \cdot 10^{-12}$  J/m et  $H_k = -5.7 \cdot 10^{-3}$  J/m<sup>3</sup>. Notons que la direction de l'anisotropie cristalline est distribuée aléatoirement entre les grains. L'état rémanent est simulé avec la procédure décrite dans la partie II.1.2. Nous obtenons ici une paroi transverse séparant deux domaines « head to head » et orientée dans la direction du champ de saturation, c'est-à-dire perpendiculaire à l'axe du fil comme le montre le profil 3D de l'aimantation et les coupes en différents plans. L'accord à la fois qualitatif et quantitatif des images de phase expérimentale et simulée est excellent, validant ainsi l'hypothèse d'une paroi purement transverse. Il est intéressant de noter que dans la littérature, il est prédit que les parois transverses soient les plus stables lorsque le diamètre du fil est inférieur à  $7 \times L_{ex}$ . Dans, notre cas cela situerait la limite autour de 48 nm. Il est probable que le caractère polycristallin du matériau ait aidé à la stabilisation de ce type de structure dans nos systèmes. Par la suite, le même type de paroi fut observé dans des nanocylindres de permalloy de diamètre 35 nm par XMCD-PEEM [106].

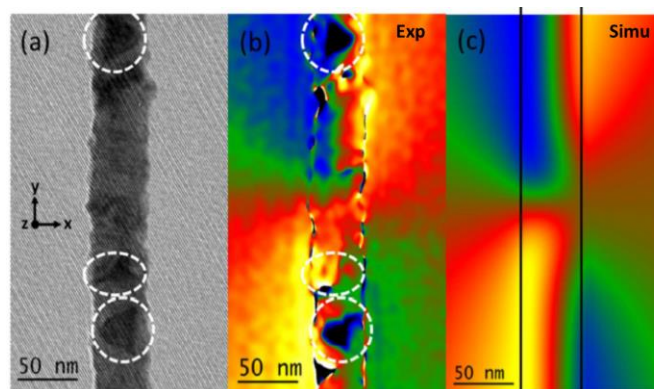


**Figure 24 :** Images d'amplitudes (a,d) et de phases expérimentales (b,e) et simulées (c,f) pour des nanocylindres de Ni de 55 et 85 nm de diamètre respectivement. (g,h) Représentations 3D de l'état magnétique correspondant aux images de phases simulées en (c) et (f). Les plans de coupe montrent l'orientation des spins dans la paroi aux positions numérotées. Tiré de [88].

Lorsque le diamètre augmente, nous observons cette fois que les lignes de champ ne présentent plus la même symétrie puisque celles-ci sont symétriques par rapport à un plan orienté à environ 45 degrés de l'axe  $x$ . De plus, en raison du fort champ rayonné à l'extérieur du fil, cette paroi ne peut être purement de type vortex car, dans ce cas, le flux magnétique devrait être principalement confiné dans le fil. Notons tout de même que même une paroi de type « point de Bloch » peut rayonner un champ de fuite faible du fait de l'accumulation de charges volumiques magnétiques créées par les domaines tête-bêche. Dans

notre cas, la simulation a démontré que la paroi présentait en réalité des caractéristiques à la fois de type vortex et à la fois de type transverse. Plus particulièrement la représentation 3D de l'aimantation ainsi que les plans de coupe montrent qu'une structure de type paroi transverse sépare deux zones de types paroi vortex de chiralité opposée. Ce type de paroi que nous avons initialement appelée paroi hybride dans [88] a ensuite été généralisée dans la littérature sous l'appellation de paroi Transverse-Vortex [71], [90], [91], [107], qui regroupe à la fois les parois transverses et les parois présentant un caractère vortex. Cependant, ceci reste indépendant des « parois de Bloch ».

Nous avons étudié de très nombreux fils montrant les mêmes configurations magnétiques que celles présentées ci-dessus. Cependant, nous avons parfois observé que les parois transverses étaient tournées par rapport à la direction du champ de saturation. Un exemple de rotation d'une paroi transverse dans un nanofil de 55 nm de diamètre est présenté dans la Figure 25. Dans ce cas la paroi pointe presque intégralement dans la direction  $x$  alors que le champ de saturation pointait dans la direction  $z$ . Différentes explications peuvent être avancées pour expliquer cela. La première concerne la variation locale d'anisotropie cristalline qui peut favoriser une direction du cœur de la paroi. Ces parois étant à la fois très mobiles et relativement instables une autre explication possible est un déplacement depuis sa position initiale, déplacement qui s'effectue via une rotation périodique du cœur de la paroi. Notons également que dans ces images, le rapport signal sur bruit peut fortement diminuer du fait des contrastes de diffraction qui apparaissent pour plusieurs grains (marqués par un cercle blanc dans la Figure 25.b) et qui empêchent de suivre clairement les lignes de champ dans tout le fil.



**Figure 25 :** Hologramme (a) et image de phase expérimentale (b) ou simulée (c) d'un nanofil de Ni de diamètre 55 nm présentant une paroi transverse orientée suivant l'axe  $x$ .

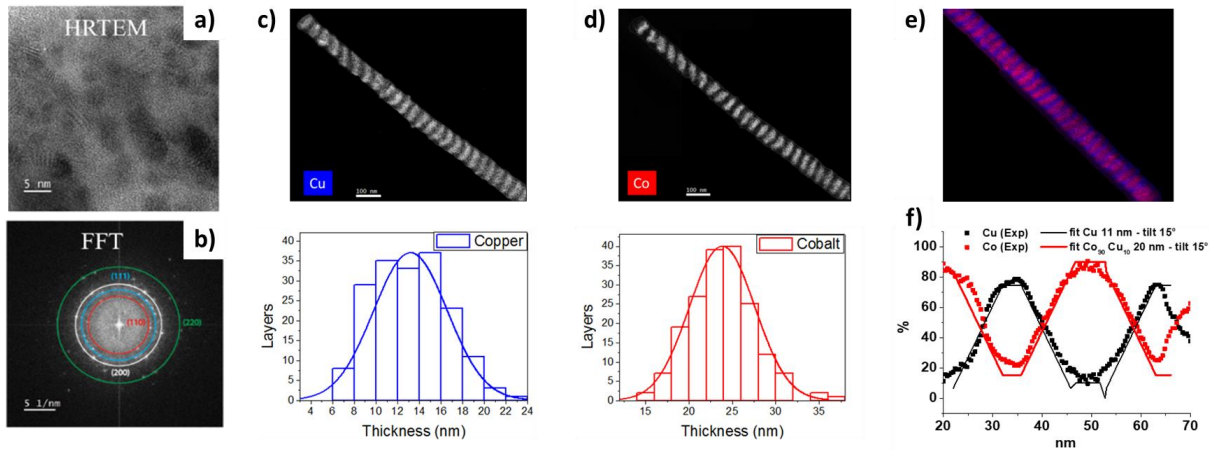
### II.3. Etats rémanents dans des nanocylindres de multicouches Co/Cu.

*Les études que j'ai menées sur les systèmes multicouches sont certainement les plus fondamentales au niveau micromagnétique que j'ai réalisées depuis mon entrée au CNRS. Mon intérêt pour les états rémanents de ces structures date de mon post doctorat à l'EPFL. A cette époque, nous avons observé avec E.Murè que dans une tri-couche Co/Cu/Co réalisée par électrodéposition, les modes dynamiques pour des valeurs de champ proches de la rémanence ne correspondaient à aucun mode pouvant être calculé à partir d'une configuration magnétique uniforme [65]. Ceci semblait montrer que les états étaient complexes. A la suite de nos premiers travaux sur les états magnétiques de nanofils de Ni, j'ai souhaité étudier de nouveaux ces systèmes modèles qui non seulement sont un terrain de jeu idéal pour le micromagnétisme mais également pour tester plus encore la méthodologie de traitement d'image d'holographie que nous avons développée.*

Bien que les nanocylindres ou les nanotubes soient très étudiés depuis le début des années 2000, peu de travaux traitent des états magnétiques dans les multicouches à symétrie cylindrique [108]–[111]. Pourtant, elles présentent un potentiel applicatif important. Comme mentionné plus haut, ces systèmes ont d’abord été développés pour obtenir des capteurs GMR. Puis, il a été démontré qu’ils pouvaient représenter une solution alternative pour fabriquer des nano-oscillateurs à transfert de spins [62], [112] connectés en série. Par la suite, d’autres types d’applications ont été proposées dans le domaine de la thermoélectricité [113] ou des composants magnoniques [114]. Pour toutes ces applications, la compréhension et la maîtrise des états magnétiques rémanents sont des prérequis pour le développement des composants.

Un point de départ pour comprendre les états de ces systèmes est d’étudier les configurations prédites dans des nano-disques de diverses sortes [115]–[118]. En règle générale, trois types d’états rémanents sont prédits en fonction du ratio entre le diamètre et l’épaisseur des couches. Soit l’aimantation est uniformément ou quasi-uniformément alignée dans le plan de la couche (ceci inclus les variantes du type état « fleur » ou état en « C »), soit elle est orientée perpendiculairement au plan de la couche si la hauteur du disque est plus importante que son diamètre, soit enfin elle peut présenter un état vortex si le diamètre de la couche est supérieur à environ 7 à 10 fois la longueur d’échange. Cependant, les variations structurales locales, qu’elles soient chimiques ou géométriques, peuvent modifier en profondeur les états magnétiques. Par exemple, il a été démontré que l’état rémanent dans des nanocylindres de composition chimique uniforme peut présenter différentes configurations en raison de variations locales de l’anisotropie cristalline ou du diamètre du fil [109], [119]–[122]. Une autre difficulté dans le cas de multicouches est l’influence du couplage dipolaire. Par exemple, Porrati et Huth [116] ont montré que ce couplage entre des nanodisques séparés de 10 nm pouvaient modifier les diagrammes d’états et notamment, pour des épaisseurs suffisantes, créer une rotation du cœur de vortex dans la direction perpendiculaire à l’axe de symétrie de la couche.

Pour mener notre étude, nous avons réalisé avec D. Reyes et T. Wade quatre séries d’échantillons avec différentes épaisseurs de cobalt ou de cuivre. Les échantillons sont fabriqués par électrodéposition dans des membranes de polycarbonate à partir d’un bain composé de  $\text{CoSO}_4 + \text{H}_3\text{BO}_4 + \text{CuSO}_4$ . Le diamètre des fils est compris entre 60 et 100 nm et leur longueur est de l’ordre de 1 à 2  $\mu\text{m}$  une fois la membrane dissoute. Les quatre séries d’échantillons ont les épaisseurs nominales suivantes  $\text{Co}_{25\text{ nm}}/\text{Cu}_{15\text{ nm}}$ ,  $\text{Co}_{25\text{ nm}}/\text{Cu}_{45\text{ nm}}$ ,  $\text{Co}_{50\text{ nm}}/\text{Cu}_{50\text{ nm}}$ ,  $\text{Co}_{100\text{ nm}}/\text{Cu}_{100\text{ nm}}$ . Les couches sont polycristallines comme le montre les Figure 26.a et b. L’étude du diamètre des anneaux et leurs espacements dans la FFT du cliché obtenu en haute résolution permet de déterminer que la structure du Co et du Cu est fcc, comme attendu en raison de la présence du Cu dans le Co [123], [124]. Pour observer cet effet et essayer de le quantifier, nous avons réalisé des images en EFTEM (Energy Filtered Transmission Electron Microscopy) ainsi qu’en EELS (Electron Energy Loss Spectroscopy) avec Bénédicte Warot-Fonrose. Ces deux méthodes d’analyse chimique reposent sur la diffusion inélastique et la perte en énergie associée des électrons incidents en fonction du matériau rencontré [125]. Ainsi, en filtrant l’énergie des électrons qui ont traversé le matériau, il est possible de cartographier les différents éléments chimiques présents dans un échantillon. Un exemple de cartographie du Cu et du Co obtenue en EFTEM est présenté sur les Figure 26.c et d. L’analyse directe des pertes en énergie (Figure 26.f) permet d’observer qu’en moyenne nous avons environ 15 % d’impuretés de Cu dans les couches de Co. Cependant ceci peut varier assez rapidement d’une couche à une autre.

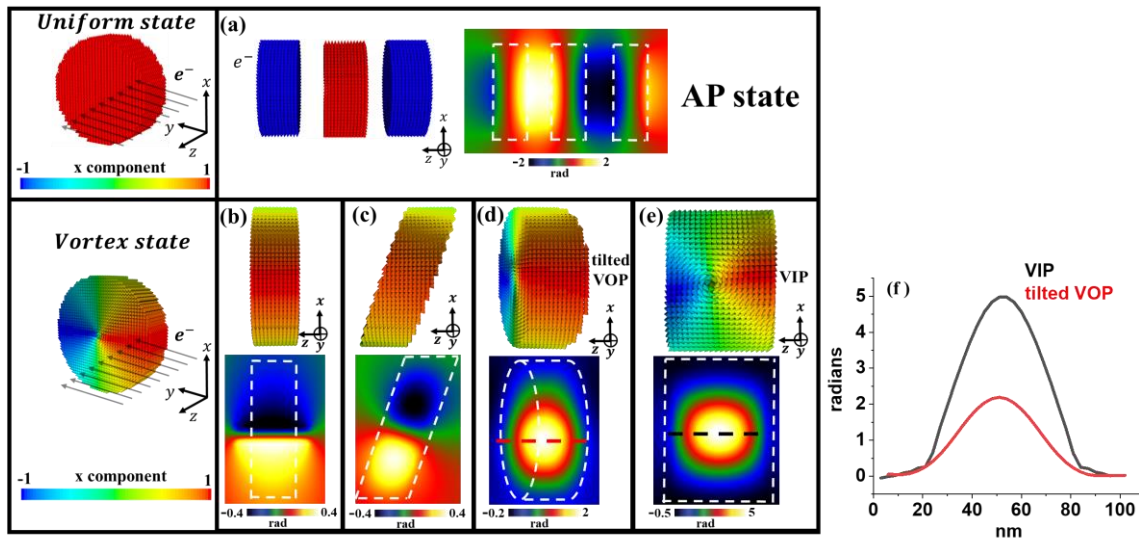


**Figure 26 :** Image haute résolution (a) et FFT correspondante (b) d'une couche de Co d'épaisseur 50 nm. Images EFTEM au seuil du Cu (c) ou du Co (d). (e) Superposition des images (c) et (d). (f) Simulations du signal EELS sur quelques couches montrant l'inclinaison par rapport à l'axe du fil.

Ces méthodes TEM (haute résolution et spectroscopie) sont particulièrement importantes pour notre étude. D'abord elles permettent de donner une idée de l'orientation des différentes couches par rapport à l'axe du fil ainsi que leurs épaisseurs et diamètres apparents. Par exemple, nous avons observé que les couches ne sont pas des « disques parfaits », c'est-à-dire avec le plan des couches perpendiculaire à l'axe du fil. Leur structure est plus complexe. En particulier elles peuvent présenter des variations d'orientation d'une couche à l'autre ce qui rend les images de phase en holographie électronique très complexe à interpréter du fait de la projection 2D de l'information. En moyenne les couches semblent tournées d'environ  $15^\circ$  par rapport à l'axe du fil mais cet angle peut augmenter jusqu'à  $40^\circ$ .

Pour illustrer ce problème de projection, la Figure 27 illustre différents calculs d'images de phase attendues pour diverses configurations magnétiques. Ici la direction du faisceau électronique est parallèle à l'axe  $y$ . Dans le cas, d'une configuration de type vortex, les Figure 27.b, c et d présentent l'image de phase calculée pour trois orientations différentes de la couche. Dans le premier cas, la couche est vue telle qu'elle le serait si elle était rigoureusement perpendiculaire à l'axe du fil. Dans le deuxième et troisième cas, la couche est tournée d'environ  $10^\circ$  par rapport aux axes  $y$  et  $x$  respectivement. On observe clairement que l'image de phase est résolument différente notamment entre les cas c et d. Cela provient du fait que la phase est induite par les composantes de l'aimantation perpendiculaires au faisceau électronique. Dans les cas b et c, la phase est induite uniquement par le cœur de vortex dirigé perpendiculairement au plan des couches. Ceci s'observe en suivant les lignes d'isophases (lignes de même couleur) et donc les composantes de  $B_\perp$ . Les autres composantes de l'aimantation tournant autour du disque s'annulent lors de l'intégration sur le trajet des électrons. En revanche dans le cas d, le cœur de vortex étant légèrement incliné vers le faisceau électronique, sa contribution est réduite. En contrepartie, les composantes azimutales du vortex ne s'annulent plus. C'est ce qui donne le profil circulaire dans l'image de phase.





**Figure 27 :** Illustration du problème de la projection 2D au travers d’images de phase électronique calculées pour différentes configurations magnétiques. La direction des électrons et donc d’observation est l’axe  $y$ . (a) Image de phase pour 3 couches uniformément aimantées selon les directions  $-x$  et  $x$  alternativement (couplage antiparallèle). Les couches font 20 nm d’épaisseur et 70 nm de diamètre. (b)-(e) Images de phase d’un état vortex observé dans quatre couches d’orientations et d’épaisseurs différentes. Le diamètre des couches est de 84 nm. L’épaisseur est de 30 nm pour (b) et (c), 35 nm pour (d) et 55 nm pour (e). L’état (b) correspond au cas d’une couche orientée perpendiculairement à l’axe du fil (= axe  $z$ ). Les couches en (c) et (d) sont tournées de  $15^\circ$  respectivement par rapport aux axes  $y$  et  $x$ . (e) Etat vortex dans une couche épaisse avec le cœur aligné dans le plan de la couche (suivant  $y$ ). (f) Comparaison des amplitudes tracées le long des lignes pointillées rouges et noires dans (d) et (e). Les pointillés blancs dans les images de phase représentent les positions des couches. Tiré de [126].

Un autre problème lié à la projection s’observe entre les configurations (d) et (e). Dans le cas (e), nous avons une couche plus épaisse qu’en (d), ce qui permet d’avoir un cœur de vortex qui est cette fois orienté suivant  $y$  et donc perpendiculairement au plan de l’image (voir explication plus bas). On peut voir que l’image de phase de cette configuration est très proche de celle en (d) alors que les états sont clairement différents. Or il est parfois très difficile de savoir en microscopie si on observe une couche « tournée » ou juste une couche épaisse. Dans ce cas, le seul moyen de discriminer les deux configurations est d’étudier l’amplitude de l’image de phase. Comme on peut le voir sur la Figure 27.f, la configuration (e) présente une variation de phase bien plus importante. *Il est ainsi impératif dans le cas de multicouches observées par holographie électronique de réaliser à la fois une analyse qualitative mais aussi quantitative des images pour déterminer avec précision leur état magnétique.*

Les expériences d’holographie électronique sur les nanocylindres de Co/Cu ont été réalisées avec un microscope Hitachi HF3300 (I2TEM) spécialement dédié à l’holographie électronique. La résolution spatiale pouvant être atteinte avec ce microscope en mode Lorentz pour les études magnétiques est de l’ordre du nanomètre. Avant d’étudier les états rémanents, un champ de saturation de 1T est appliqué dans notre électro-aimant, soit dans la direction quasi parallèle à l’axe des fils, soit quasi perpendiculaire. Ceci implique notamment de repérer les fils au préalable sur la grille de microscopie. Pour chaque série d’échantillon, excepté pour la série  $\text{Co}_{100\text{ nm}}/\text{Cu}_{100\text{ nm}}$ , jusqu’à 20 fils ont été observés afin d’obtenir une statistique sur l’apparition des états rémanents.

Bien qu’historiquement nous ayons commencé par étudier les systèmes  $\text{Co}_{25\text{ nm}}/\text{Cu}_{15\text{ nm}}$  [127], je ne vais pas présenter les résultats de manière chronologique mais synthétiser l’ensemble en commençant par montrer les états possibles pour une seule couche ce qui facilitera la compréhension des résultats obtenus dans les multicouches [126].

### II.3.1. Diagramme d'états dans un disque non planaire.

Afin de comprendre quels types d'états peuvent être observés dans nos systèmes multicouches ainsi que pour mieux interpréter les variations statistiques des états en fonction des dimensions des couches, nous avons été amené à simuler des diagrammes d'états magnétiques en fonction de divers paramètres. Pour cela, nous avons utilisé la méthode décrite dans la partie II.1.2 et schématisée sur la Figure 19. La couche est tournée de  $15^\circ$  et  $5^\circ$  autour des axes  $y$  et  $x$  respectivement afin de reproduire le désalignement moyen des couches vis-à-vis de l'axe des fils ( $z$  dans la Figure 19). Les valeurs de l'aimantation  $M_s$ , de l'échange  $A$ , et de l'anisotropie  $K_u$  valent respectivement  $1200 \cdot 10^3$  A/m ( $\mu_0 M_s = 1.5$  T),  $22 \cdot 10^{-12}$  J/m et  $130 \cdot 10^3$  J/m<sup>3</sup>. Ces valeurs ont été obtenues initialement après avoir reproduit la transition entre états antiparallèles et état vortex présentés dans la Figure 30. De plus, la valeur de l'aimantation a été mesurée grâce à l'image de phase de nanocylindres de Co électrodéposés à partir du même bain électrolytique utilisé pour faire les multicouches. Ces fils de Co « pleins » présentent donc aussi des impuretés de Cu et l'aimantation a été estimée en utilisant la relation  $\Delta\phi = \frac{e}{h} M_s \cdot \pi a^2$ . Dans notre modèle l'anisotropie est considérée uni-axiale afin de prendre en compte la polycristallinité des couches. D'une manière générale, tous les paramètres magnétiques sont plus faibles que les valeurs tabulées pour le Co massif, en accord avec la présence d'impuretés de Cu.

Les diagrammes d'états rémanents ont été calculés en fonction du diamètre et de l'épaisseur de la couche pour deux orientations type du champ de saturation  $H_s$  et deux orientations du champ d'anisotropie  $H_k$ .  $H_s$  est ainsi orienté avec un angle  $\theta$  à  $10^\circ$  ou  $80^\circ$  de l'axe  $z$  pour prendre en compte l'incertitude d'alignement du champ magnétique appliqué ex-situ avec les fils. Pour l'orientation de  $H_k$  il est évident que toutes les directions ne pouvaient être numériquement testées. Nous avons donc arbitrairement choisi de fixer l'angle  $\theta_k$  entre  $H_k$  et la normale  $\mathbf{n}$  au plan de la couche à  $10^\circ$  ou  $80^\circ$  afin de tester l'effet d'une anisotropie dirigée plutôt parallèle ou perpendiculaire au plan de la couche. Les résultats de ces simulations sont présentés sur les Figure 28.a-d.

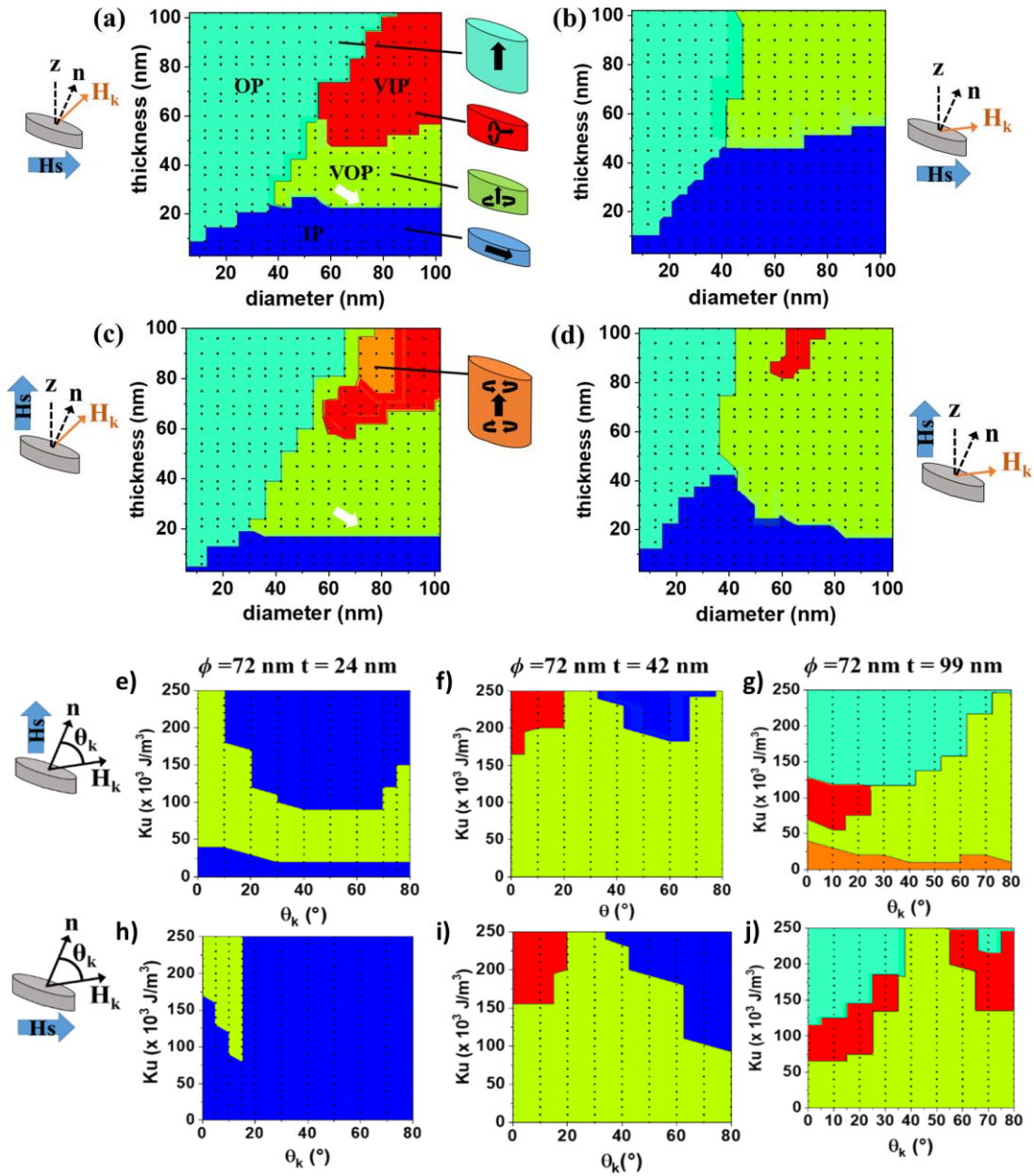
Typiquement quatre états peuvent être observés, chacun étant représenté par un code couleur (je ne discuterai pas de l'état codé en orange qui est un état transitoire et que nous n'avons pas observé dans nos systèmes). La couche peut présenter une aimantation uniforme orientée soit dans le plan de la couche (état IP pour « In Plane »), si l'épaisseur est faible devant le diamètre, soit dans la direction de l'axe du nanofil si l'épaisseur est plus grande que le diamètre (état OP pour « Out of Plane »). De plus, deux types d'états vortex peuvent être obtenus avec une direction du cœur de vortex orientée soit le long de l'axe du fil (état VOP pour « Vortex Out of Plane »), soit dans le plan de la couche (état VIP pour « Vortex In Plane »). Nous considérons que pour définir l'état VIP, le cœur du vortex doit être orienté au moins à plus de  $45^\circ$  de la normale  $\mathbf{n}$  au plan de la couche.

Comparativement aux résultats issus de la littérature, nous observons deux différences principales. La première est que la prise en compte de l'anisotropie cristalline permet d'obtenir deux types de vortex. Notamment dans le cas où  $H_k$  est proche de la normale à la couche et pour des rapports d'aspect proches de 1, l'état VIP peut apparaître afin de minimiser l'énergie magnéto cristalline. Dans ce cas, la majorité du volume magnétique est dirigé suivant  $H_k$ . De plus, la rotation de  $H_k$  vers le plan des couches permet d'augmenter la zone d'état IP, comme cela pouvait être espéré. Le second effet notable est l'influence du champ de saturation. Dans certaines zones des diagrammes, le changement de direction de  $H_s$  induit un changement d'état rémanent, par exemple de l'état IP à l'état VOP (Figure 28.a et b). L'application du champ de saturation dans différentes directions peut donc potentiellement permettre de remonter à la direction d'anisotropie dans le matériau.

Il est important de préciser également que tous ces diagrammes peuvent évoluer en fonction des dimensions et de l'orientation de la couche, de la direction du champ appliqué, mais aussi des paramètres



intrinsèques du matériau. Ceci est illustré sur les Figure 28.e-j qui montrent l'évolution de l'état rémanent dans des couches de Co de diamètres et épaisseurs fixes en fonction de l'amplitude et de la direction de  $H_k$ . Cependant les simulations présentées ici permettent de rendre compte globalement de ce qui peut être attendu dans nos structures.



**Figure 28 :** IP = In Plane, OP = Out of Plane, VIP = Vortex In Plane, VOP = Vortex Out of Plane. (a-d) Diagrammes d'états rémanents d'une couche de Co en fonction de son diamètre et de son épaisseur pour  $\theta = 10^\circ$  (a,b) ou  $80^\circ$  (c,d) et  $\theta_k = 10^\circ$  (a,c) ou  $80^\circ$  (b,d). Les codes couleurs correspondent aux états schématisés sur les figures (a) et (d). Les points en noir correspondent aux points de simulations. (e-j) Diagrammes d'états rémanents en fonction de la direction et de l'amplitude de  $H_k$  pour trois épaisseurs différentes et à diamètre fixe.  $\theta$  est égale à  $10^\circ$  (e-g) ou  $80^\circ$  (h-j). Pour toutes les simulations, la couche est tournée arbitrairement de  $15^\circ$  autour de l'axe  $y$  puis  $5^\circ$  autour de l'axe  $x$  pour prendre en compte l'orientation moyenne observée expérimentalement. Tiré de [126].

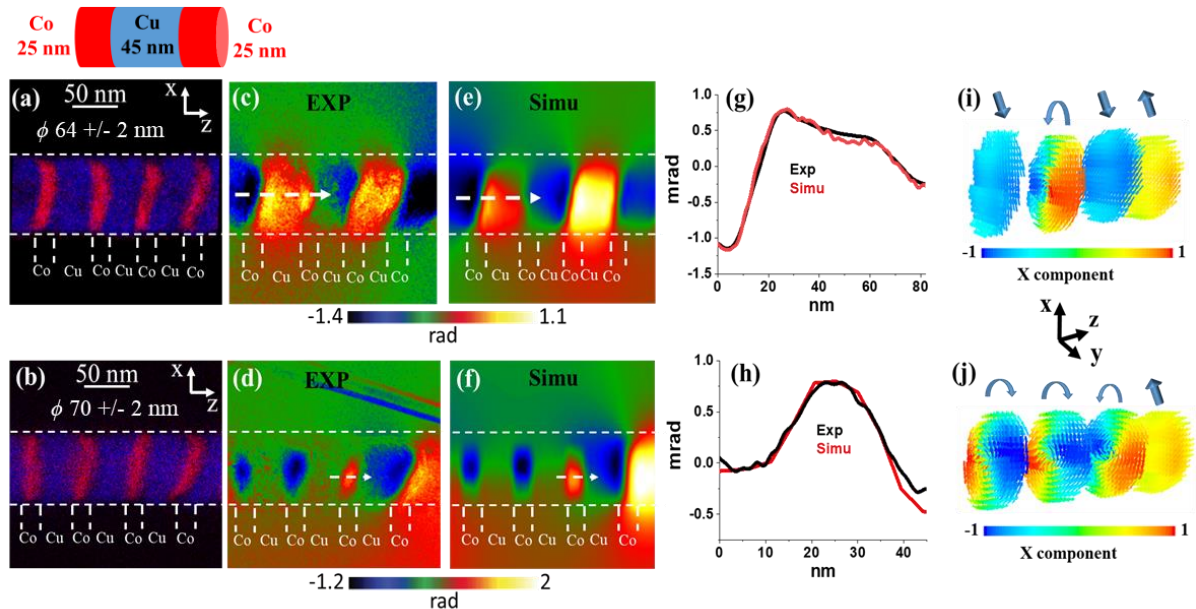
### II.3.2. Influence du couplage dipolaire.

Pour étudier l'influence du couplage dipolaire entre les couches, il est intéressant de comparer les deux séries d'échantillons  $\text{Co}_{25\text{ nm}}/\text{Cu}_{15\text{ nm}}$  et  $\text{Co}_{25\text{ nm}}/\text{Cu}_{45\text{ nm}}$ . En effet, alors que l'épaisseur de la couche de cobalt reste à peu près identique, l'augmentation de l'épaisseur de cuivre permet de diminuer d'environ un facteur 3 l'amplitude du champ dipolaire rayonnée par une couche sur une autre. Cette valeur a été estimée à partir de simulations micromagnétiques de deux couches dans l'état IP en comparant l'énergie totale entre deux états parallèles et deux états antiparallèles.

Dans le cas où l'épaisseur de Cu est la plus importante (45 nm), nous avons observé que les états rémanents des couches de Co étaient quasiment toujours les mêmes quelle que soit la direction de  $H_s$ . Cependant, d'un fil à un autre et d'une couche à une autre, il est possible de trouver soit des états uniformes avec l'aimantation dans le plan des couches (états IP), soit des états vortex (états VOP). Dans le cas de couches présentant une suite d'états IP, nous avons observé que les aimantations se couplaient de manière antiparallèle (états appelés AP). Cette configuration est clairement favorisée par le couplage entre les couches.

La Figure 29 présente les configurations magnétiques observées dans deux nanocylindres qui montrent que les états AP et VOP peuvent coexister au sein d'un même fil. Les états magnétiques de ces fils ont pu être reproduits à la fois qualitativement et quantitativement dans les simulations. Le bon accord quantitatif des images de phases expérimentales et simulées pour les deux premières couches du premier fil montre, par exemple, la présence d'un état vortex « coincé » entre des états IP (Figure 29.a, c, e, g et i). Notons que dans ce cas, le cœur de vortex n'est pas rigoureusement au centre de la couche du fait du champ dipolaire rayonné par les couches adjacentes. Ainsi les composantes azimutales de l'aimantation ne se compensent pas complètement, ce qui explique que ce vortex présente dans l'image de phase un contraste de couleurs proche de celui des couches adjacentes. Là encore, une mauvaise interprétation des images peut être faite si l'on ne prend pas garde à l'amplitude des signaux. Dans le cas du nanofil présenté sur les Figure 29.b-f, h et j, nous rencontrons une situation similaire à celle décrite dans la Figure 27.d. En effet, nous observons des états VOP dans des couches dont l'orientation par rapport au faisceau d'électrons permet de sonder les composantes azimutales du vortex. Ceci explique le profil légèrement circulaire dans les images de phase.

Nous avons étudié plus d'une cinquantaine de couches dans ces systèmes  $\text{Co}_{25\text{ nm}}/\text{Cu}_{45\text{ nm}}$ . Statistiquement, nous avons déterminé qu'environ 60% des couches présentent un état AP (ou au moins IP) et 40% un état VOP, et ce quelle que soit la direction de  $H_s$ . Cette quantité d'états vortex apparaît relativement importante au regard des diagrammes des Figure 28.e et h. et ce d'autant plus que le couplage dipolaire stabilise l'état AP. Des simulations sur des nanofils présentant jusqu'à 20 couches successives de Co de 25 nm d'épaisseur et séparées par 45 nm ont confirmé que les états VOP sont stabilisés quelle que soit la direction de  $H_s$  seulement si  $H_k$  est compris dans un cône d'environ  $20^\circ$  d'ouverture autour de la normale au plan de la couche et avec une amplitude de  $H_k$  d'au moins  $130.10^3 \text{ J/m}^3$ . Pour tout angle supérieur à  $20^\circ$  et quelle que soit la valeur de  $H_k$ , les états rémanents sont AP. Ainsi, l'étude statistique suggère une direction préférentielle de  $H_k$  le long de l'axe du fil.

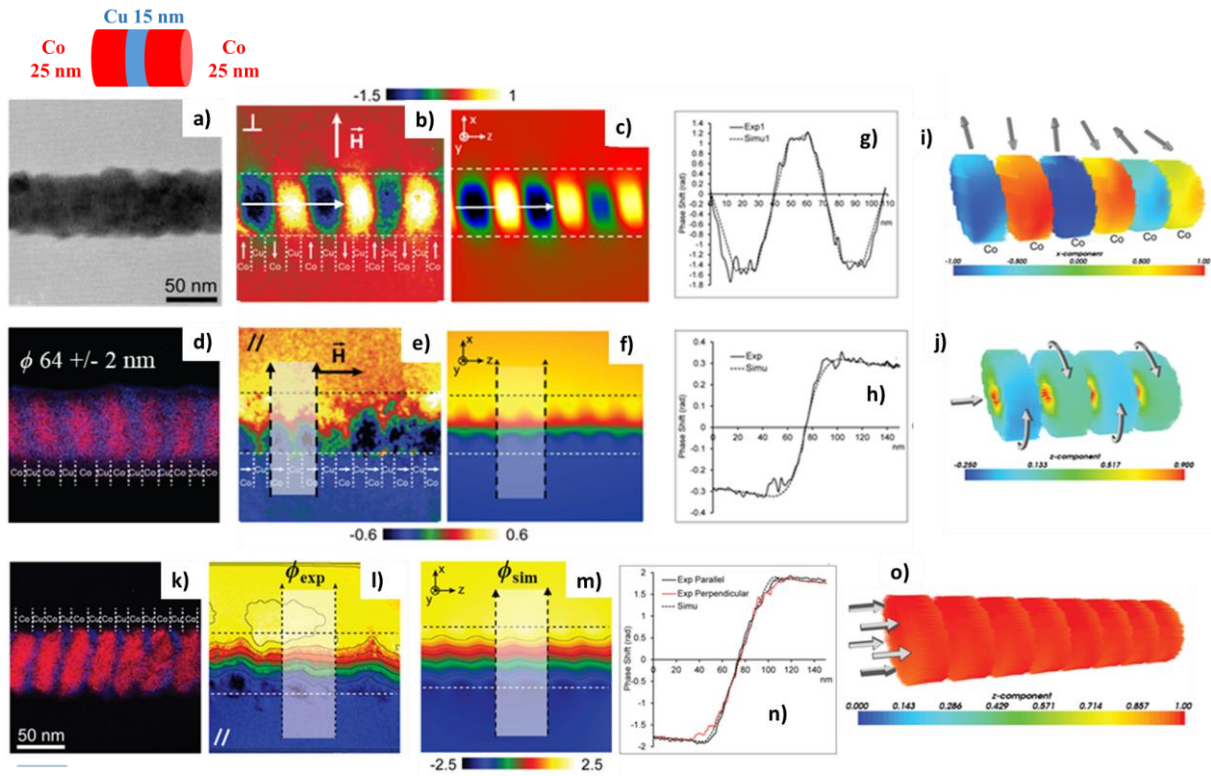


**Figure 29 :** (a,b) Images EFTEM de deux nanocylindres de  $\text{Co}_{25\text{nm}}/\text{Cu}_{45\text{nm}}$  de 80 nm de diamètre. Images de phase expérimentales (c,d) et simulées (e,f) pour  $H_s$  perpendiculaire à l'axe du fil (les mêmes états sont observés pour  $H_s$  parallèle). (g,h) Amplitudes des phases expérimentales et simulées le long des flèches pointillées blanches. (i,j) Représentations 3D des états rémanents correspondants aux images de phase simulées. Tiré de [126].

Dans les systèmes  $\text{Co}_{25\text{nm}}/\text{Cu}_{15\text{nm}}$ , la réduction de l'épaisseur de Cu conduit à trois observations différentes. Tout d'abord environ 70% des couches présentent un état AP quelle que soit la direction de  $H_s$ . Ensuite nous n'observons plus d'états VOP pour les deux directions de  $H_s$ . Cependant, comme montrées sur les Figure 30.a-f, une transition entre l'état VOP et l'état AP peut apparaître en saturant l'échantillon soit le long de l'axe du nanocylindre, soit perpendiculairement. Ce type de transition apparaît pour environ 20% des couches observées. Elles sont reproduites dans les simulations micromagnétiques réalisées sur 20 couches, avec les mêmes paramètres magnétiques ( $M_s=1200 \cdot 10^3$  A/m,  $A=22 \cdot 10^{-12}$  J/m,  $H_k=130 \cdot 10^3$  J/m<sup>3</sup>) que dans les simulations faites sur les systèmes  $\text{Co}_{25\text{nm}}/\text{Cu}_{45\text{nm}}$ . Là encore,  $H_k$  est distribué aléatoirement d'une couche à l'autre tout en restant dans un cône d'ouverture de 20° autour de la normale  $\mathbf{n}$ . Pour tout angle supérieur à 20° et quelle que soit la valeur de  $H_k$ , les états rémanents sont AP. Ceci démontre encore une fois que le couplage dipolaire favorise l'état AP puisque l'état VOP ne subsiste pas pour un champ de saturation perpendiculaire à l'axe du fil.

Notons qu'historiquement, c'est grâce à ces transitions que nous avons pu déterminer les gammes de valeurs des différents paramètres magnétiques. Elles ont également un intérêt technologique. En effet, dans le cas où l'anisotropie cristalline de ces couches électrodéposées pourrait être contrôlée avec une plus grande précision, il deviendrait possible de réaliser des composants de types oscillateurs micro-ondes à transfert de spin présentant deux fréquences de fonctionnement bien distinctes à la rémanence. Le passage entre ces fréquences pouvant être assuré par application d'un champ magnétique externe dans différentes directions.

Enfin une dernière configuration due au couplage dipolaire a été observée dans environ 10% des cas dans les systèmes  $\text{Co}_{25\text{nm}}/\text{Cu}_{15\text{nm}}$ . Elle correspond à une orientation hors plan de l'aimantation des couches de Co, similaire à l'état OP dans la Figure 28. Pour reproduire cette configuration, il faut là encore que  $H_k$  soit proche de la normale au plan des couches, mais il faut aussi que son amplitude soit au moins de l'ordre de  $200 \cdot 10^3$  J/m<sup>3</sup>. Toutefois, les diagrammes de la Figure 28 montrent que même pour ces valeurs de  $H_k$ , il est impossible qu'une couche isolée puisse présenter un état OP. C'est donc là encore le couplage entre couches qui permet ce type de configuration.



**Figure 30** : Images TEM (a) et EFTEM (d) d'un nanocylindre de  $\text{Co}_{25\text{nm}}/\text{Cu}_{15\text{nm}}$  d'environ 64 nm de diamètre. Images de phase expérimentales (b,e) et simulées (c,f) pour  $H_s$  perpendiculaire (b,c) et parallèle (e,f) à l'axe du fil. (g) Amplitude de la phase expérimentale et simulée le long des flèches blanches en (b) et (c). (h) Amplitude de la phase expérimentale et simulée le long des flèches noires en (e) et (f) moyennée sur la surface grisée. (i,j) Représentations 3D des états rémanents correspondants aux phases simulées en (c) et (f) respectivement. Ces simulations montrent le passage de l'état AP à VOP sous l'influence de  $H_s$ . (k) Image EFTEM d'un nanocylindre de  $\text{Co}_{25\text{nm}}/\text{Cu}_{15\text{nm}}$  d'environ 70 nm de diamètre. Images de phase expérimentale (l) et simulée (m) à partir de la configuration magnétique 3D présentée en (o) présentant un alignement des aimantations selon l'axe du fil. Tiré de [127].

### II.3.3. Influence du rapport d'aspect.

L'étude des systèmes  $\text{Co}_{50\text{nm}}/\text{Cu}_{50\text{nm}}$  et  $\text{Co}_{100\text{nm}}/\text{Cu}_{100\text{nm}}$  permet de donner une image de l'influence du rapport d'aspect, via la variation d'épaisseur, sur le type d'états rémanents accessibles. Par exemple, le calcul micromagnétique montre que l'énergie de couplage dipolaire entre deux couches de Co de 50 nm d'épaisseur séparées de 50 nm est à 20% près équivalente à l'énergie entre deux couches de 25 nm séparées de 15 nm.

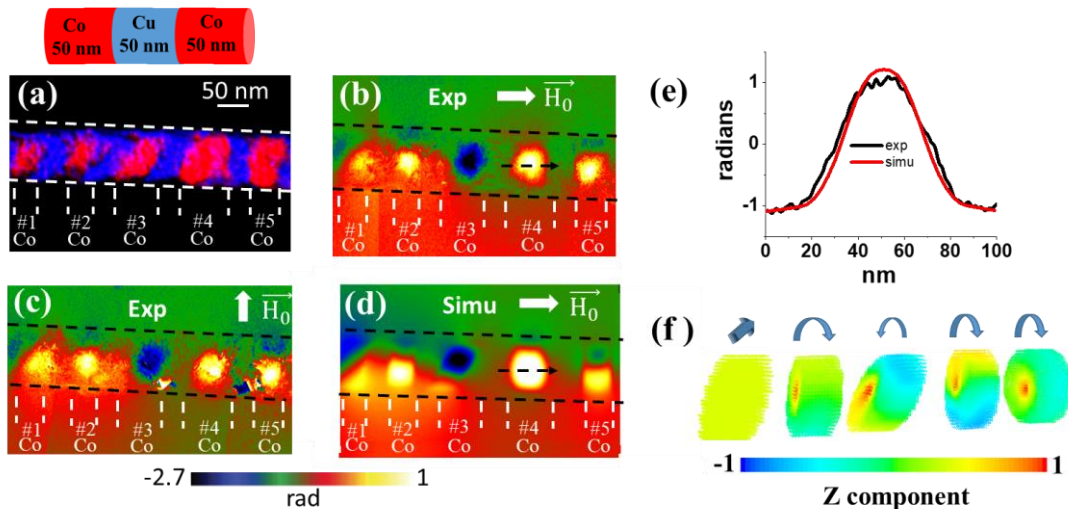
Les nanocylindres de  $\text{Co}_{50\text{nm}}/\text{Cu}_{50\text{nm}}$  ont probablement été les plus difficiles à étudier du point de vue micromagnétique, en tout cas pour reproduire quantitativement les images de phases expérimentales. Au premier abord, la situation semble simple puisque là encore, aucun changement d'état n'est observé en changeant la direction de  $H_s$ . De plus, les images de phases sont très significatives de la présence d'états vortex, ce qui tend à montrer que le couplage dipolaire entre les couches est moins prédominant que pour les couches plus fines. Cependant il a été très difficile de statuer entre des états VOP et VIP, ceci en raison de la plus grande dispersion en épaisseur des couches que dans les cas  $\text{Co}_{25\text{nm}}/\text{Cu}_{45\text{nm}}$  ou  $\text{Co}_{25\text{nm}}/\text{Cu}_{15\text{nm}}$ .



Un exemple type illustrant à la fois les états observés dans les fils  $\text{Co}_{50\text{nm}}/\text{Cu}_{50\text{nm}}$  et les difficultés à analyser les images de phase est présenté sur la Figure 31. Sur l'image EFTEM, on peut voir que chaque couche présente à la fois un diamètre, une épaisseur ainsi qu'une orientation par rapport à l'axe du fil différents. Par exemple, les couches de Co #3 et #4 apparaissent assez épaisses comparativement aux autres (jusqu'à 60 nm pour la couche #4). Ici, nous sommes typiquement dans le cas du problème de projection 2D décrit dans les Figure 27.d et e. En effet, l'état VIP peut potentiellement apparaître pour des valeurs de  $H_k$  de l'ordre de  $150$  à  $200 \cdot 10^3 \text{ J/m}^3$  et d'autant plus facilement que la couche est épaisse.

Pour reproduire quantitativement l'image de phase, ces cinq couches ont dû être simulées avec chacune son propre jeu de paramètres structuraux (diamètre, épaisseur, orientation par rapport à l'axe du fil) et magnétiques ( $M_s$ ,  $A$ ,  $H_k$ ). L'ensemble des paramètres utilisés peuvent être trouvés dans [126]. En dehors de la première couche, les autres présentent des valeurs de  $M_s$  et de  $A$  quasi équivalentes. Cependant leurs paramètres structuraux sont très différents. Finalement, c'est grâce à l'analyse quantitative de la phase que nous avons pu montrer que ces couches sont en réalité fortement tournées par rapport à l'axe du fil et que nous sommes en présence d'états de type VOP. En effet, non seulement un état VIP dans la couche #4 montrait une amplitude de la phase beaucoup trop importante par rapport à l'expérience mais en plus elle modifiait fortement l'aimantation des couches environnantes et les états des autres couches étaient difficilement reproduits. Cet effet de rotation s'est vérifié sur l'ensemble des fils que nous avons observés.

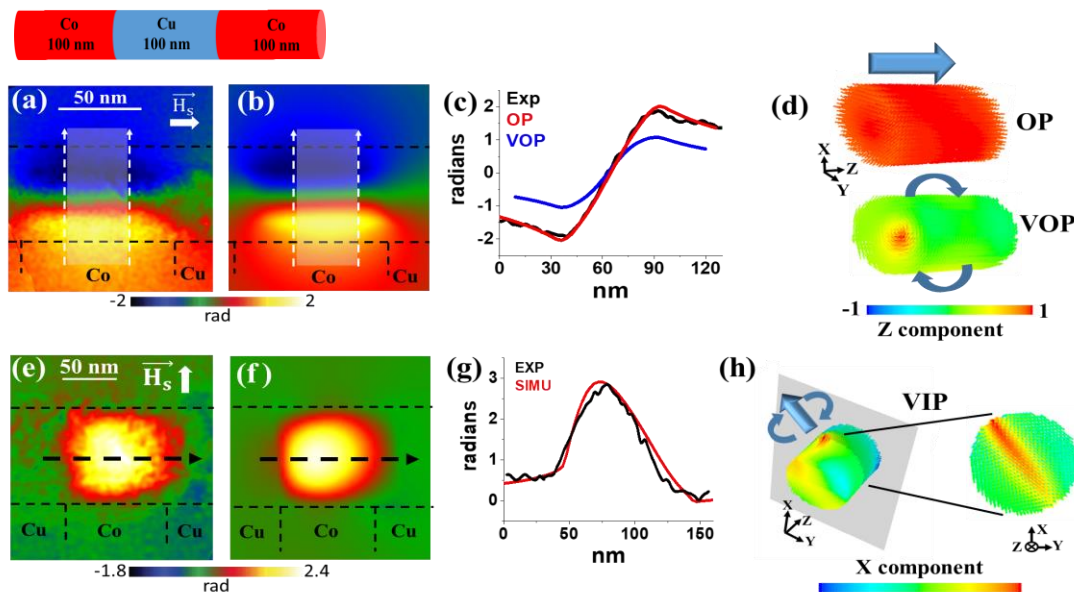
Sur plus de 50 couches étudiées dans différents nanofils de  $\text{Co}_{50\text{nm}}/\text{Cu}_{50\text{nm}}$ , nous avons observé quasiment que des états VOP (seul quelques états IP ont été détectés), avec toutefois comme particularité un cœur de vortex souvent décalé du centre de la couche en raison de la compétition entre les anisotropies cristallines, de forme et le couplage dipolaire. Grâce à l'inclinaison des couches, nous avons accès à la chiralité des vortex. Par exemple, les vortex dans les couches #3 et #4 ont une chiralité opposée, ce qui se voit par le changement de contraste du bleu au rouge dans l'image. Toutefois, nous n'avons pas décelé de tendance statistique claire pour un couplage éventuel entre les chiralités des vortex.



**Figure 31** : Image EFTEM (a) d'un nanocylindre de  $\text{Co}_{50\text{nm}}/\text{Cu}_{50\text{nm}}$  d'environ 84 nm de diamètre. Images de phase expérimentales pour  $H_s$  parallèle (b) et perpendiculaire (c) à l'axe du fil. (d) Image de phase simulée pour  $H_s$  parallèle à l'axe du fil. (e) Amplitude de la phase expérimentale et simulée le long des flèches noires en (b) et (d). (f) Représentation 3D des états rémanents correspondants aux phases simulées en (d). Tiré de [126].

Au regard des diagrammes des Figure 28.f et i, l'absence d'autres états que VOP pourrait signifier que les valeurs de  $H_k$  sont assez faibles, ce qui serait en accord avec l'idée que l'anisotropie diminue avec le nombre de grains dans les couches. Cependant, l'image de phase de la Figure 31 a pu être reproduite avec des valeurs de  $H_k$  comprises entre  $150.10^3$  et  $200.10^3$  J/m<sup>3</sup>, mais avec une orientation de  $H_k$  proche de la normale au plan des couches. D'après les Figure 28.f et i, nous sommes dans la gamme d'amplitude pour laquelle des états VIP auraient pu être attendus mais le couplage dipolaire stabilise les états VOP.

Les derniers systèmes étudiés sont des nanocylindres de  $Co_{100nm}/Cu_{100nm}$ , pour lesquels les rapports d'aspects des couches de Co sont  $\geq 1$ . Malheureusement, peu de fils ont pu être observés et nous n'avons pas pu réaliser de statistique sur l'apparition des différents états. La Figure 32 montre les deux types d'états observés quelle que soit la direction de  $H_s$ . Le premier fil a un diamètre de l'ordre de 64 nm alors que le second a un diamètre de l'ordre de 90 nm. Seule une couche est montrée à chaque fois. Dans le premier cas (Figure 32.a-d), nous observons des lignes d'isophases parallèles à l'axe du fil, comme ce qui peut être attendu dans le cas des états VOP ou OP. L'analyse de l'amplitude de la phase a permis de montrer que cet état était OP, avec l'aimantation orientée le long du fil. Dans le second cas (Figure 32.e-h), nous voyons un état VIP caractérisé par la structure quasi circulaire de la phase. Ici le cœur de vortex est orienté dans le plan xy, environ à 45° de l'axe y.



**Figure 32** : Images de phase expérimentale (a) et simulée (b) dans un nanofil de  $Co_{100nm}/Cu_{100nm}$  de 64 nm de diamètre. (c) Amplitude de la phase tracée le long des flèches pointillées blanches en (a) et (b) et moyennée sur la zone grisée. (d) Représentation 3D des états OP et VOP. La simulation en (b) est calculée à partir de l'état OP. Images de phase expérimentale (e) et simulée (f) dans un nanofil de  $Co_{100nm}/Cu_{100nm}$  de 90 nm de diamètre. (g) Amplitude de la phase tracée le long des flèches pointillées noires en (e) et (f). (h) Représentation 3D de l'état VIP qui a donné l'image simulée en (f). Tiré de [126].

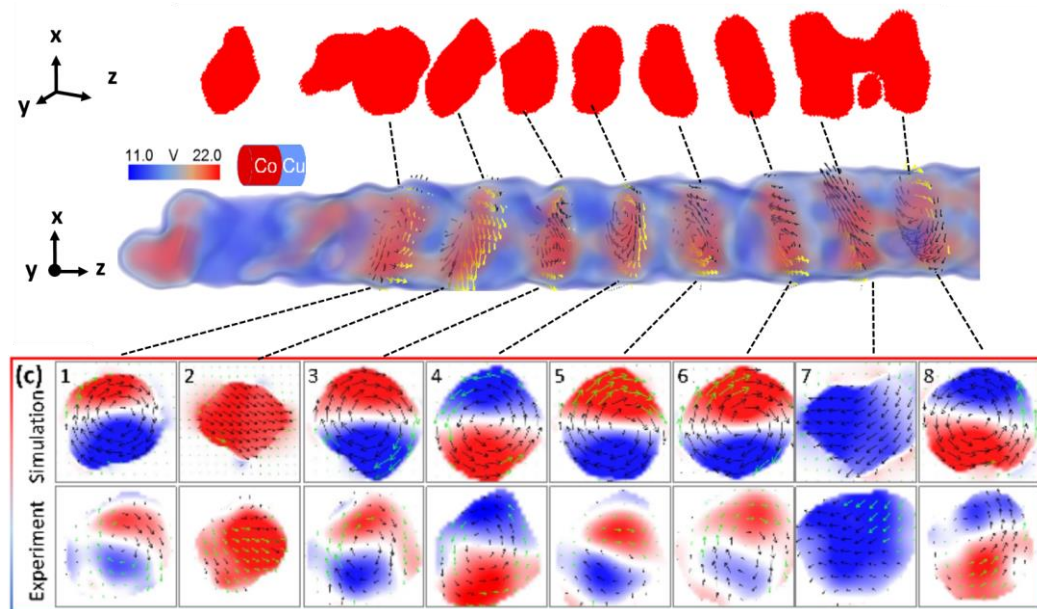
### II.3.4. Vers une reconstruction 3D.

Nous avons complété nos travaux sur les nanocylindres de Co/Cu avec une étude utilisant la méthode d'holographie VFET (Vector Field Electron Holography) en collaboration avec leurs concepteurs, Axel Lubk et Daniel Wolf, de l'« Institute for Solid State Research » à Dresden en Allemagne. Cette



technique complexe combine des mesures d'holographie électronique avec des mesures de tomographie. Ceci permet de reconstruire des images en 3D des trois composantes de l'induction magnétique ainsi que la cartographie 3D de la composition chimique de l'objet étudié. Pour cela, une série d'hologrammes est enregistrée en tournant l'échantillon sur la plus large plage possible, idéalement 360°. En réalité, les contraintes matérielles autorisent une plage de 280°. Puis, les images de phase électrostatique et magnétique sont reconstruites après réaligement de toutes les images. Cette technique est complexe à la fois au niveau expérimentale mais également au niveau du post traitement des images qui nécessite beaucoup de temps. En conséquence, elle ne peut pas être appliquée à un grand nombre d'échantillons.

Dans notre cas, un fil  $\text{Co}_{25\text{nm}}/\text{Cu}_{15\text{nm}}$  a été observé par l'équipe allemande. La résolution spatiale pour l'imagerie magnétique et chimique est de l'ordre de 10 nm. Afin de pouvoir intégrer la structure 3D issue de l'imagerie du potentiel électrostatique aux simulations micromagnétiques, Daniel Wolf a codé un fichier de manière à attribuer un 0 à chaque voxel correspondant à du vide, un 1 pour du Cu et un 2 pour du Co. Afin de pouvoir travailler sur des voxels de dimensions équivalentes à la valeur de la longueur d'échange, il a extrapolé linéairement leurs résultats pour passer « artificiellement » à des voxels de 5 nm. J'ai ensuite écrit un script permettant de « lire » ce fichier avec OOMMF pour reproduire la géométrie 3D des différentes couches. Enfin, à chaque couche de Co est attribué un jeu de paramètres magnétiques individuels ( $M_s$ ,  $A$   $H_k$ ). *A notre connaissance, c'est la première fois qu'une structure géométrique « réelle » est intégrée à un solveur micromagnétique.*



**Figure 33 :** (haut) Structure 3D reconstruite avec OOMMF à partir des expériences d'holographie vectorielle 3D. (milieu) Projection 2D de l'induction magnétique et du potentiel électrique représentant les couches de cuivre en bleu et celles de Cobalt en rouge. (bas) Comparaison entre expérience d'holographie 3D et calculs micromagnétiques des profils d'induction dans les couches. Tiré de [128].

Le résultat de cette procédure est présenté sur la Figure 33. En bas de l'image est présentée la comparaison entre l'expérience et la simulation de l'induction magnétique dans les couches. Les images correspondent à des coupes transverses à l'axe du fil. Les états observés de type VOP et IP correspondent à ceux que nous avons déterminés dans nos études précédentes pour des couches de cette dimension. Nous avons pu reproduire qualitativement les états observés et remonter aux propriétés magnétiques de chaque couche individuelle [128]. Cependant, l'accord quantitatif n'est pas encore parfait puisque l'induction expérimentale mesurée est de l'ordre de 20% plus faible que dans les simulations. Ceci peut

s'expliquer de différentes façons, notamment en raison d'artefact de reconstruction des images (problème de réalignement, de diffractions parasites à certains angles etc..). Ainsi, de plus amples développements doivent être réalisés pour arriver à un accord parfait entre ces expériences d'holographie VFET et les simulations. Mais cette méthode est potentiellement très utile car elle permet de lever un grand nombre d'incertitudes géométriques sur les couches et donc de se focaliser uniquement sur les paramètres magnétiques des couches individuelles.

## II.4. Conclusion et perspectives sur les nanofils.

Durant ces études sur les nanocylindres magnétiques, nous avons effectué différents développements méthodologiques permettant l'étude des configurations rémanentes à l'échelle de quelques nanomètres. En particulier, la comparaison quantitative des images de phase magnétique obtenues par holographie électronique et celles calculées à partir de simulations micromagnétiques ont permis une meilleure compréhension des états observés. Cette méthode est aujourd'hui reprise par mes collègues du CEMES travaillant sur d'autres types de systèmes magnétiques.

L'ensemble des travaux auxquels j'ai participé depuis 2013 dans cette thématique sont répertoriés ci-dessous du plus récent au plus ancien.

- ***Multi magnetic states in Co/Cu multilayered cylindrical nanowires studied by combination of off-axis electron holography imaging and micromagnetic simulations.*** N. Biziere, D. Reyes, T. L. Wade, B. Warot-Fonrose and C. Gatel,, J. Appl. Phys. 126, 163906, 2019.
- ***Holographic Vector Field Electron Tomography of Three-Dimensional Nanomagnets,*** Daniel Wolf, Nicolas Biziere, Sebastian Sturm, David Reyes, Travis Wade, Tore Niermann, Jonas Krehl, Bénédicte Warot-Fonrose, Bernd Büchner, Etienne Snoeck, Christophe Gatel, and Axel Lubk, Communications Physics, 2, 87, 2019.
- ***Magnetic Configurations in Co/Cu Multilayered Nanowires: Evidence of Structural and Magnetic Interplay.*** D. Reyes, N. Biziere, B. Warot-Fonrose, T. Wade, and C. Gatel,, Nanoletters 16, 1230, 2016.
- ***Imaging the Fine Structure of a Magnetic Domain Wall in a Ni Nanocylinder.*** N. Biziere, C. Gatel, R. Lassalle-Balier, M-C. Clochard, J.E. Wegrowe, E. Snoeck, NanoLetters, 13, 2053, 2013.

D'un point de vue fondamental, nos travaux ont permis d'observer pour la première fois la transition entre une paroi transverse et une paroi plutôt vortex dans des nanocylindres de Ni, ceci en bon accord avec les simulations micromagnétiques. La possibilité de nucléer des parois transverses par application d'un champ de saturation transverse permet d'envisager des méthodes simples pour approfondir l'étude de leur manipulation sous courant électrique ou sans champ. Cependant, ces parois étant extrêmement mobiles, elles restent difficiles à piéger. Par la suite, nous chercherons à observer et étudier la création de paroi de type « point de Bloch » dans ces mêmes systèmes. Pour cela, la difficulté majeure sera de trouver comment les garder « piégées » dans le fil car, là aussi, elles sont très mobiles. Ceci pourrait être réalisé en faisant des cycles de désaimantation sur les fils et en bénéficiant du caractère polycristallin du Ni. Mais pour cela il faut une orientation précise des fils vis-à-vis du champ appliqué.

Concernant les multicouches Co/Cu, nos travaux ont démontré la complexité et la richesse des états rémanents en fonction des paramètres géométriques et magnétiques des couches. En particulier, ces nombreux états ont pu être observés du fait des faibles valeurs des paramètres magnétiques du Co liées

aux inclusions de Cu. En contrepartie, ces travaux montrent également toute la difficulté à maîtriser à la fois la géométrie, la composition chimique et les paramètres magnétiques de couches fabriquées par électrodéposition. Alors que la variété d'états observés et les transitions entre ceux-ci permettent d'envisager la réalisation de composants innovants, l'utilisation de l'électrodéposition pour la réalisation de composants à l'échelle industrielle reste une gageure. Par la suite, l'un des axes de travail envisagé sur ces systèmes est de les adresser électriquement et d'observer in-situ des transitions magnétiques sous l'effet d'un courant. Cependant ceci implique des développements technologiques complexes puisqu'il faut à la fois déposer les nanofils sur des substrats transparents aux électrons, (telles des membranes de  $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) puis réaliser des contacts électriques dessus par les méthodes classiques de lithographie électronique et de métallisation.



### III. Projet de recherche.

*Le projet de recherche que je souhaite mener pour les années à venir est à la fois dans la continuité de ce que j'ai réalisé jusqu'à aujourd'hui au CEMES mais également une manière de combiner les différents domaines que j'ai pu explorer. Ce projet se décline en deux axes majeurs :*

*1) Le développement de matériaux présentant un intérêt direct pour le domaine industriel. Je souhaite d'abord démontrer la possibilité de faire croître un alliage d'Heusler  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  directement sur des substrats de la microélectronique. Le second point de ce volet du projet consistera à développer de nouvelles fonctionnalités micro-ondes par un contrôle local des propriétés magnétiques de l'alliage FeRh.*

*2) L'étude des propriétés des systèmes magnoniques. Au cours de la thèse de Sarah Manton que j'encadre depuis Octobre 2019, nous cherchons à étudier les phénomènes de filtrage d'ondes hyperfréquences dus à la présence d'un cristal magnonique dans un guide d'onde magnétique. Nous nous attacherons également à démontrer la possibilité de détecter électriquement et localement ces phénomènes. En parallèle, je souhaite développer avec C. Gatel et A. Masseboeuf (institut Néel) une nouvelle méthode d'imagerie d'ondes de spins basée sur l'holographie électronique. Ce projet, qui correspondait à l'un des axes de recherche de mon projet d'entrée au CNRS, permettrait d'obtenir une visualisation des ondes de spins (en particulier les modes quantifiés) avec une résolution spatiale inégalée et nécessaire à la compréhension complète de la dynamique de spins aux échelles inférieures à 100 nm.*

#### III.1. Croissance de matériaux pour les applications en spintronique.

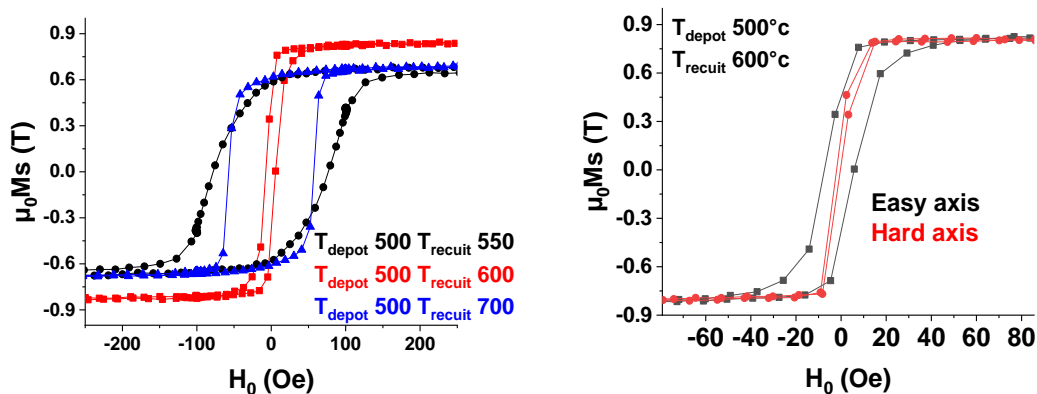
Comme déjà mentionné dans la partie I.3, le transfert d'alliage d'Heusler du type  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  dans le domaine industriel nécessite notamment de faire croître ces matériaux sur des substrats compatibles avec ceux de la microélectronique. L'étude de ce « problème » est l'un des thèmes que je souhaite poursuivre. Pour cela, nous avons commencé avec Gérard BenAssayag à étudier la faisabilité d'un dépôt de film mince de  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  sur un substrat de silicium, et plus particulièrement de SOI (Silicon On Insulator). Le SOI consiste en un substrat épais de silicium recouvert d'une couche d'oxyde  $\text{SiO}_2$  de quelques centaines de nanomètres (box) et enfin d'une fine couche de silicium très pure et cristalline. Ce substrat est fabriqué par le procédé Smart Cut dont Alain Claverie (membre du groupe MEM du CEMES) est l'un des spécialistes mondiaux. Les substrats nous ont été fournis par la société SOITEC avec qui Alain collabore depuis 20 ans. Au-delà de l'aspect technologique, l'intérêt du silicium est d'avoir potentiellement un désaccord de maille avec le CMS de 3 %, inférieur à celui avec le MgO (5.4 %) qui est le substrat classique utilisé pour le faire croître. Quelques rares travaux dans la littérature ont montré l'apparition de l'ordre B2 pour le CMS sur des substrats commerciaux de Si/SiO<sub>2</sub> [129]–[132]. Les propriétés magnétiques sont rarement étudiées sur ces structures et les propriétés dynamiques jamais.

La difficulté majeure pour obtenir un alliage CMS de bonne qualité sur silicium provient de l'interdiffusion d'atomes de Si dans le CMS et la formation d'une couche de siliciure CoSi. Ceci est lié aux températures de dépôt du CMS autour de 500 à 600° pour obtenir la phase L2<sub>1</sub>, dans la gamme de température de la formation du CoSi. Cependant, nous pensons qu'en utilisant un substrat de SOI avec une couche très fine de Si à la surface, il est possible de limiter cet effet.

Nos premières études datent de début 2019. Nous avons d'abord cherché à faire pousser un alliage de CMS sur un SOI ayant une couche de Si à la surface d'environ 50 nm en utilisant des paramètres de croissance proches de ceux utilisés pour des substrats de MgO. Des mesures de magnétométrie (Figure 34) montrent que le maximum de moment magnétique était obtenu pour une température de dépôt de

500°C et une température de recuit de 600°C. Cependant, nous n'avons observé aucun pic de sur-structure par diffraction X. L'aimantation maximale obtenue est de 0.9 T, ce qui est environ 30% plus faible qu'attendu. Cependant, cette valeur est sous-estimée car une couche de siliciure CoSi s'est probablement formée à l'interface réduisant le volume magnétique actif. Ceci est cohérent avec les mesures de résonance ferromagnétique (RFM) réalisées sur l'échantillon déposé à 500°C et recuit à 600°C qui donne une valeur  $\mu_0 M_s$  de 1T. De même, le coefficient de relaxation dynamique mesuré par RFM est de  $7.10^{-3}$ , c'est à dire l'équivalent du Permalloy. Enfin, nous observons une petite anisotropie cristalline pour les meilleurs échantillons, suggérant un ordre local.

Ces travaux préliminaires montrent qu'il est potentiellement possible de déposer un Heusler sur un substrat à base de Silicium mais les conditions optimales de dépôt pour obtenir de bonnes propriétés magnétiques restent à être définies précisément. Pour cela, limiter la diffusion de silicium sera l'une des clés. C'est pourquoi, nous souhaitons utiliser à terme les substrats commerciaux de SOI avec une épaisseur de Si très pur de seulement 5 nm. A cette épaisseur les mécanismes de diffusion du Si devraient être limités par la réduction du volume « actif » de diffusion. De plus, nous chercherons à déposer le CMS à des températures plus basses, qui permettent l'apparition éventuelle de l'ordre B2 tout en limitant la formation de CoSi.



**Figure 34 :** (gauche) Cycles d'hystérésis en fonction de la température de recuit pour un film de  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  sur substrat SOI. (Droite) Cycles d'hystérésis dans les directions de facile et difficile aimantation.

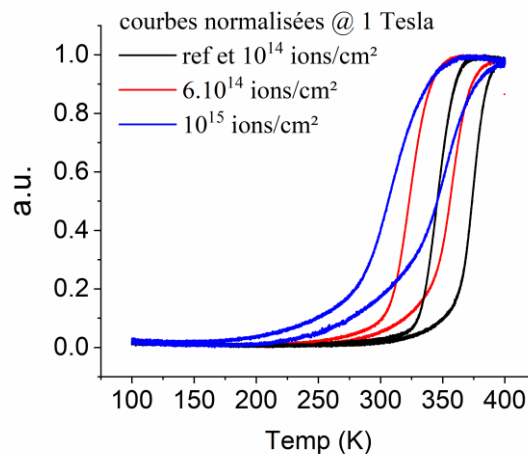
Le second axe de travail sur lequel je souhaite m'investir est l'étude des mécanismes de la transition de phase antiferro/ferro magnétique dans l'alliage FeRh. En effet, dans sa phase cristallographie B2, ce matériau présente une phase antiferromagnétique à température ambiante et une phase ferromagnétique au-dessus d'une température de transition  $T_c$  de l'ordre de 370K [133], [134]. Grâce à cette propriété remarquable, de nombreuses applications ont déjà été envisagées, notamment pour des applications magnéto-caloriques ou encore des mémoires magnétiques activées thermiquement ou électriquement [135]–[138]. Cependant, bien que ce matériau soit étudié depuis près d'un siècle, les mécanismes sous-jacents de cette transition sont encore débattus. Par exemple, l'influence relative de la présence d'une phase cristallographique A2 ou de défauts ponctuels de type lacunes, interstitiels ou dislocations est toujours une question ouverte pour expliquer la diminution de  $T_c$  observée dans certaines expériences. D'autres mécanismes telle que la variation de  $T_c$  entre les surfaces et le cœur d'un film mince a été démontrée récemment [139].

L'objectif sera d'étudier ces mécanismes en utilisant notamment l'irradiation ionique aux ions légers. A l'image de ce que nous avons réalisé pour les alliages d'Heusler, nous souhaitons induire des variations de phase cristallographiques de manière contrôlée et observer leur influence sur  $T_c$ . De plus, à fortes fluences nous pouvons induire des défauts ponctuels et ainsi couvrir une gamme assez large de



phénomènes qui devraient permettre de répondre aux questions fondamentales mentionnées ci-dessus. Dans un second temps, notre objectif consistera à réaliser des structures hybrides consistant en des zones irradiées localement aux ions légers afin d'avoir des zones ayant des températures de transitions proches de l'ambiante, encapsulées dans une matrice anti ferromagnétique. Le contrôle local des températures de transition permettrait ainsi d'envisager des composants RF thermiquement activés tels que des cristaux magnoniques par exemple, dont les configurations magnétiques seraient stabilisées par la présence du couplage antiferromagnétique avec la matrice.

Nos premiers résultats datant du début 2020 sont présentés sur la Figure 35. Dans cette expérience nous avons étudié la variation de  $T_c$  en fonction de la fluence d'irradiation aux ions  $\text{He}^+$  à 100 KeV dans un film mince de FeRh de 40 nm d'épaisseur. Alors qu'une fluence de  $10^{14}$  ions/cm<sup>2</sup> donne un cycle équivalent à l'échantillon de référence, une légère augmentation de celle-ci permet d'abaisser  $T_c$  tout en gardant une même largeur de cycle (autour de 30 K). A plus haute fluence en revanche, ce cycle commence à s'élargir et le matériau devient partiellement ferromagnétique à l'ambiante. Ces résultats préliminaires démontrent que l'irradiation ionique peut être une solution intéressante afin de sonder les mécanismes structuraux liés à la variation de  $T_c$ .



**Figure 35 :** Mesures par magnétométrie de la transition antiferro/ferro magnétique sous un champ de 1 tesla dans un film mince de FeRh de 40 nm d'épaisseur. Les mesures sont réalisées pour différentes fluences d'irradiation aux ions  $\text{He}^+$  (100 KeV). Les courbes sont normalisées en amplitude afin de pouvoir les superposer.

### III.2. Développements autour de la magnonique.

La manipulation de la dynamique de spin à l'échelle nanométrique a permis la réalisation de mémoires magnétiques à transfert de spin (« Spin Torque (ST) –MRAM») [140] ou de nano-oscillateurs hyperfréquences à transfert de spin [141], [142]. Outre ces deux concepts déjà bien établis, la manipulation des ondes de spin à l'échelle nanométrique est devenue un domaine d'étude majeur depuis environ 20 ans. Ce domaine à croissance exponentielle, appelé magnonique [143], [144], vise à utiliser les propriétés spéciales des ondes de spin pour développer une nouvelle classe de dispositifs.

Les ondes de spin sont les excitations collectives de l'aimantation dans un matériau magnétique. Elles sont appelées magnons lorsqu'elles sont considérées comme des quasi-particules. Dans le domaine des micro-ondes, elles ont des longueurs d'ondes de quelques nanomètres à quelques micromètres, qui sont de plusieurs ordres de grandeur inférieurs aux caractéristiques des ondes électromagnétiques dans le vide ou dans l'air. Il est également possible de décaler leurs fréquences avec un champ magnétique et elles présentent de faibles vitesses de groupe et des longueurs d'atténuation allant jusqu'à plusieurs

dizaines de microns. Ces propriétés permettent d'envisager la miniaturisation des dispositifs hyperfréquences tels que les lignes à retard de phase. Des applications de type opérations logiques ou de traitement de l'information basées sur les interférences constructives ou destructives des ondes de spin ont également été proposées récemment [145]. L'intérêt principal par rapport aux dispositifs électroniques classiques est la faible perte d'énergie liée à l'effet Joule lors de la propagation des ondes. L'échauffement Joule peut même être quasi-nul dans le cas de matériaux isolants. Par conséquent, la plupart des études récentes en magnonique se sont concentrées sur la propagation des ondes de spin dans des micro et nano rubans en YIG, qui est l'isolant magnétique ayant le coefficient d'amortissement le plus bas parmi tous les matériaux, et permettant d'obtenir des longueurs d'atténuation allant jusqu'au millimètre [146], [147].

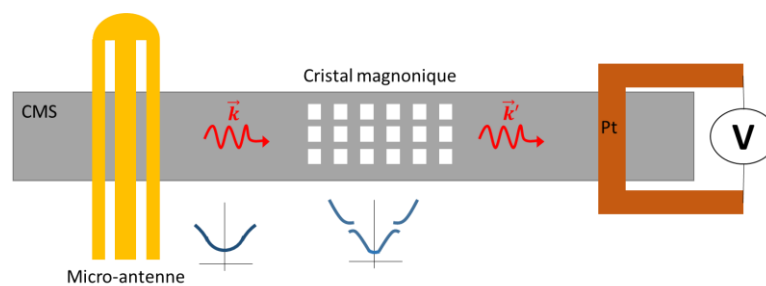
Une autre application de la dynamique de spin à l'échelle nanométrique est liée au développement de cristaux magnoniques. Bien que découverts au milieu des années 70 [148], ils font l'objet d'intenses recherches internationales depuis le début des années 2000. Les cristaux magnoniques sont constitués d'un matériau magnétique avec une modulation spatiale périodique de ses propriétés magnétiques, par la réalisation d'un motif artificiel par exemple [149]. A l'instar des cristaux photoniques ou phononiques, le motif périodique conduit à la création de bandes interdites de fréquence pour lesquelles la propagation d'ondes de spin est interdite. De tels systèmes permettent des opérations similaires aux dispositifs optiques mais avec des dimensions réduites. De nombreuses applications ont été proposées (filtres hyperfréquences accordables, résonateurs, lignes à retard, traitements de données etc.). Une revue très complète des applications potentielles des dispositifs magnoniques a été faite par A.V. Chumak *et al.* [150]. Par exemple, ces auteurs ont proposé le concept de « transistor à magnons » dans lequel les magnons remplacent les électrons. La source, le drain et la grille sont remplacés par des antennes hyperfréquences. La densité des magnons se déplaçant de la source au drain est contrôlée par des processus de diffusion à 4 magnons localisés dans un cristal magnonique placé entre la source et le drain.

Malgré le grand potentiel offert par les dispositifs basés sur les ondes de spin, une condition préalable à leur développement industriel est leur intégration à l'échelle nanométrique, typiquement sous les 100 nm. Ceci est un prérequis indispensable afin que cette technologie soit compatible, voir même concurrentielle, avec la technologie CMOS comme prévu dans l'IRDS 2017 [151]. Dans ce contexte j'ai souhaité m'attacher à deux aspects particuliers de la magnonique. Le premier est le plus « appliqué » et concerne les mécanismes de propagation et de détection d'ondes de spins au travers les cristaux magnoniques pour des applications de type filtrage. Le second point est plus fondamental et concerne le développement d'une nouvelle méthode basée sur l'holographie électronique permettant d'imager les modes d'ondes de spins dans une nanostructure avec une très grande résolution spatiale.

### **III.2.1. Propagation et détection d'ondes de spins dans les cristaux magnoniques : application au filtrage fréquentiel.**

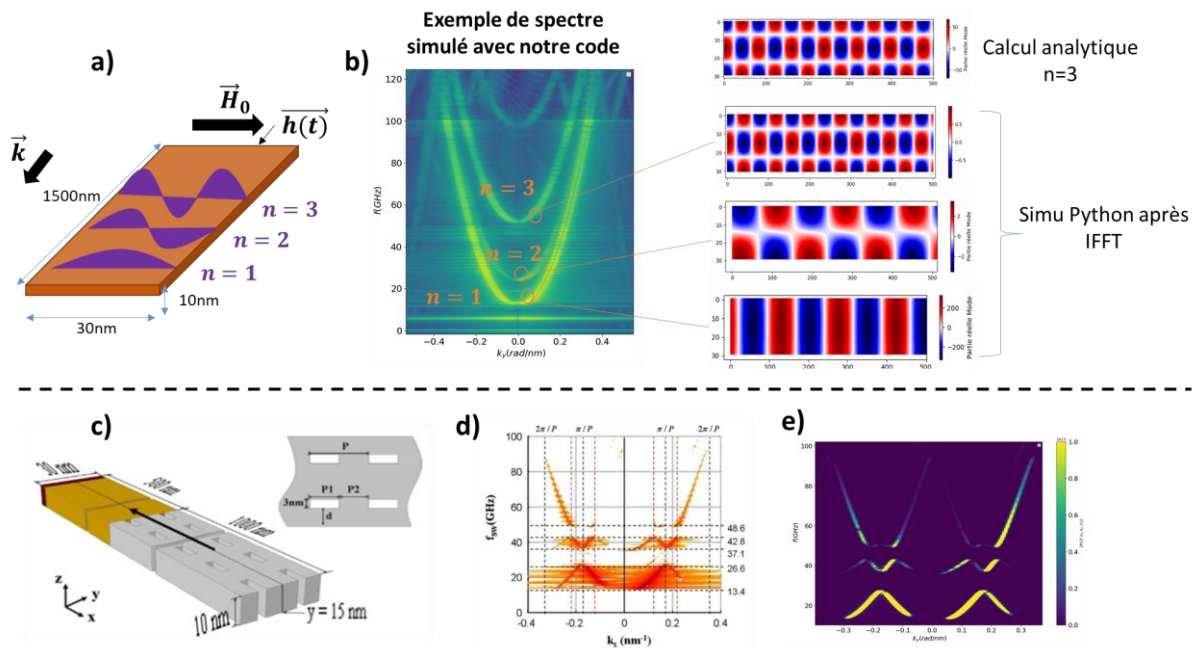
L'une des premières applications des cristaux magnoniques est reliée à leur faculté de filtrage de certains modes d'ondes de spins. Cependant les mécanismes physiques mis en jeu dans ce phénomène sont encore assez mal décrits (effets d'absorption/réémission d'un front d'ondes de spins par un cristal, longueur de recouvrement du profil spatial de l'onde incidente etc...). De plus, une des difficultés technologiques associées aux nanostructures concerne la méthode de détection des ondes de spins à petites échelles. En effet, les techniques inductives et optiques, qui sont les méthodes classiques d'étude des ondes de spins dans les nano-objets, ne peuvent être appliquées dans un composant électronique standard. Les techniques optiques sont généralement limitées par la taille des faisceaux LASER de l'ordre de quelques centaines de nanomètres. De même les techniques inductives ont une sensibilité intrinsèquement dépendante de la taille de l'antenne et sont difficilement intégrables.

L'étude de ces deux problématiques fait l'objet de la thèse de Sarah Manton qui a débuté en octobre 2019 sous ma direction. Afin de répondre à la problématique de la détection, nous souhaitons démontrer l'efficacité d'une mesure via des effets magnéto-résistifs comme la GMR ou des effets basés sur l'interaction spin-orbite tel que l'effet Hall de spin inverse (ISHE) pour sonder la propagation de l'onde après le cristal. L'intérêt d'une approche « tout électrique » est que l'amplitude de l'effet GMR et potentiellement de l'ISHE sont intrinsèquement indépendants du volume du matériau. Ces méthodes de détection sont donc potentiellement intégrables à des dimensions très faibles sans pertes de performance. De plus, il est possible d'obtenir une tension DC facilement manipulable à partir d'un signal RF [152], [153]. Notre objectif sera de réaliser un démonstrateur de cette méthode de détection tel que schématisé sur la Figure 36. Ici la détection est schématisée par l'ISHE dans une couche de Pt déposée sur un métal de type Heusler. Bien que l'ISHE ait été démontré clairement avec du YIG [152], la réalisation de ce type de mesure avec des métaux restent plus complexes. Pour réaliser une détection GMR, la couche de Pt peut être remplacée par une vanne de spin ad-hoc par dépôt d'une bi-couche de Cu/Co par exemple.



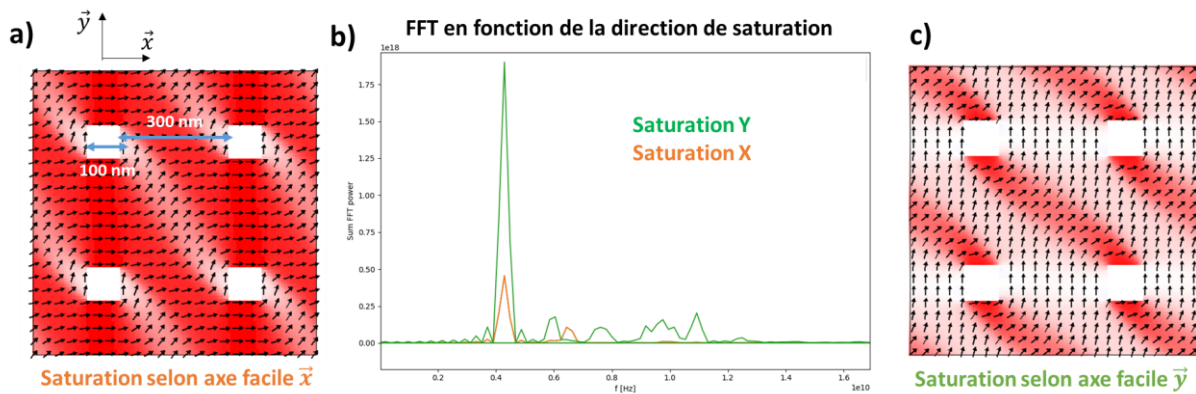
**Figure 36 :** Schéma de principe du démonstrateur de filtrage d'onde de spins par un cristal magnonique détecté par effet ISHE.

Pour nous aider dans la compréhension des phénomènes de filtrage, nous avons développé durant la première année de thèse de Sarah Manton un programme d'analyse numérique sous Python. Ce programme permet à partir de simulations temporelles réalisées avec OOMMF de calculer les diagrammes de dispersion  $f(k)$  des ondes de spins, ainsi que les profils spatiaux des différents modes. Un exemple de validation de notre code sur un système modèle de type ruban de Py est présenté sur la Figure 37.a. Dans ce cas simple, la quantification du vecteur d'onde transverse et les diagrammes de dispersion peuvent être calculés analytiquement. La comparaison entre les modes que nous avons calculés avec notre code et ceux calculés analytiquement sont en parfait accord (Figure 37.b). Nous avons également validé notre code en reproduisant des résultats de simulations numériques sur des cristaux magnoniques [154] comme le montre les Figure 37.d et e. Le système simulé est semblable à celui que nous souhaitons reproduire mais ici les dimensions sont très petites. Les ondes excitées dans une partie sans cristal se propagent ensuite dans un cristal infini. Nous pouvons observer dans le diagramme de dispersion calculé dans le cristal l'ouverture des bandes interdites liées aux interférences destructives à certaines fréquences.



**Figure 37 :** (a) Exemple de système modèle permettant de valider notre code développé sous Python. Le système simulé est un ruban de Py pour lesquels les modes quantifiés en largeur peuvent être calculés analytiquement. (b) Courbes de dispersion calculées avec notre code et visualisation des modes associés. (c) Exemple de simulation de la propagation d'ondes de spins au travers un cristal magnonique. Courbes de dispersion calculées dans le cristal issues de [154] (d) et obtenues avec notre code (e).

La mise au point de ce code de simulation nous permet notamment de visualiser ce qui se passe dans nos systèmes mais également de prédire la meilleure configuration géométrique pour obtenir les effets de filtrage recherchés. La première application que nous en avons faite a été de démontrer la variation des modes dynamiques à la rémanence dans un cristal magnonique d'Heusler présentant des motifs carrés de 100 nm séparés par 300 nm. L'épaisseur de la couche est de 40 nm. Ici nous avons utilisé des conditions périodiques pour simuler un cristal infini en  $x$  et  $y$ . L'état rémanent est calculé après application d'un champ de 1T, soit dans la direction  $+x$ , soit  $+y$ . Les paramètres magnétiques utilisés pour ces calculs sont ceux obtenus sur nos échantillons de  $\text{Co}_2\text{MnSi}$ . Notamment, nous tirons parti de la forte anisotropie cubique du matériau pour avoir deux états rémanents bien distincts. Ceci se traduit par l'apparition ou la disparition de modes dynamiques dans la FFT du système comme le montre la Figure 38.b. Nous poursuivons actuellement nos analyses sur l'influence de la géométrie du motif mais ce résultat montre un exemple de structure qui pourrait être intégrée à notre dispositif final pour réaliser la fonction de filtrage espérée à la rémanence.



**Figure 38** : Etat rémanent calculé avec OOMMF dans un cristal magnétique d’Heusler pour un champ appliqué selon l’axe  $x$  (a) ou  $y$  (c). (b) Transformées de Fourier du signal  $M_x(t)$  calculées sur une période de 4096 points de 5 ps en partant des configurations présentées en (a) ou en (c). Un pulse de champ appliqué dans la direction  $x$  et ayant une dépendance temporelle en sinus cardinal est appliqué sur l’ensemble de la structure pour simuler une mesure FMR.

### III.2.2. Vers l’imagerie d’ondes de spins par holographie électronique.

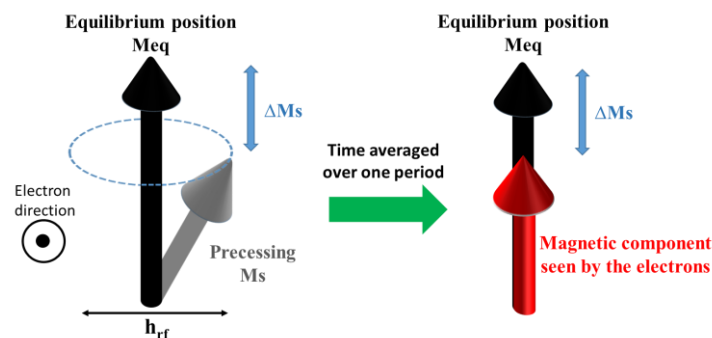
Le second verrou technologique pour le développement des dispositifs magnoniques est plus fondamental et correspond à une meilleure compréhension et description des modes dynamiques accessibles dans les structures submicroniques. A notre connaissance, la plupart des études de dynamiques de spins dans les nano-objets sont généralement décrites qualitativement par comparaison avec la modélisation micromagnétique des modes dynamiques dans des géométries « parfaites », ce qui peut conduire à des écarts avec les données expérimentales. Or, à cette échelle, les effets d’interface, les variations locales de géométrie ou de chimie peuvent avoir un impact important sur les modes d’excitations dynamiques. Ceci est particulièrement vrai à la rémanence qui est l’état de fonctionnement classique d’un dispositif. L’état rémanent est également plus sensible aux imperfections locales à mesure que la taille de l’échantillon diminue. Les procédés de nano fabrication (procédés de lithographie et de gravure par exemple) et le mélange chimique aux interfaces induisent de telles imperfections. La description complète des modes dynamiques nécessite donc des informations structurales et magnétiques.

A l’heure actuelle, très peu de techniques permettent une imagerie de la dynamique de spins dans le domaine des micro-ondes à des échelles submicroniques et encore moins sous les 100 nm. Les méthodes optiques présentent généralement une résolution spatiale limitée due à la longueur d’onde du faisceau LASER. Par exemple, la résolution spatiale de la microscopie par effet Kerr (MOKE) résolue en temps est d’environ 500 nanomètres avec une résolution temporelle de quelques dizaines de picosecondes [155], [156]. Une autre technique très répandue est la diffusion Brillouin (Brillouin Light Scattering BLS) permettant de sonder les magnons thermiques dans une large gamme de vecteurs d’ondes et de fréquences ( $0-20 \mu\text{m}^{-1}$  et  $5-300 \text{ GHz}$ ) [157], [158]. Cette technique est très efficace, notamment pour sonder les modes quantifiés. Alors que la résolution spatiale des expériences BLS standard est généralement autour de 800 nm, le développement du micro-focus BLS il y a une dizaine d’années permet désormais de cartographier les ondes de spin avec une résolution spatiale allant jusqu’à 50-60 nm [159], [160]. Outre les techniques basées sur le LASER, d’autres méthodes ont été utilisées comme la microscopie à force de résonance magnétique (MRFM) [161], [162] ou la microscopie à transmission de rayons X [163]. En 2019, cette dernière a permis d’établir un record de résolution spatiale de 15 nm dans des expériences de type pompe-sonde avec une résolution temporelle de 100 ps

[164]. Ceci a permis d'imager la propagation d'ondes de spins dans des ellipses de NiFe et CoFe. La possibilité d'ajuster l'énergie des photons X au seuil d'absorption d'un élément spécifique permet également d'obtenir des informations structurales sur le matériau étudié en plus des configurations magnétiques statiques et dynamiques. Cependant l'utilisation de cette technique requiert l'accès à un synchrotron.

*La deuxième partie de mon projet consistera à développer une nouvelle méthode d'imagerie d'ondes de spins et plus particulièrement des modes stationnaires dans des nanostructures. Pour cela, je souhaite utiliser en collaboration avec Christophe Gatel (CEMES) et Aurelien Masseboeuf (à l'institut Néel depuis Septembre 2019) l'holographie électronique pour imager la précession de l'aimantation d'un nano-objet. Comparativement à l'état de l'art des techniques d'imagerie des ondes de spins telles que la diffusion Brillouin, la magnéto-optique ou la diffraction X synchrotron, l'intérêt de notre approche est de bénéficier de la résolution spatiale de la microscopie électronique qui est de l'ordre du nanomètre pour l'imagerie magnétique. De plus, la microscopie électronique permet de relier directement le profil spatial de l'onde à l'état magnétique ainsi qu'aux propriétés structurales de l'échantillon.*

Les processus dynamiques seront observés dans une approche quasi-statique, similaire au concept utilisé en MRFM. Le principe est décrit schématiquement sur la Figure 39. Le point de départ est la sensibilité de l'holographie électronique aux composantes de l'induction moyennées dans le temps. En effet, les hologrammes sont enregistrés pendant au moins quelques secondes. Dans notre cas, c'est plusieurs ordres de grandeur plus longs que la période de précession de l'aimantation à la résonance ( $< ns$ ) ferromagnétique. Or, pendant une période de précession, la composante de l'aimantation dans la direction d'équilibre ( $M_{eq}$  sur la Figure 39) est diminuée d'une quantité  $\Delta Ms$  tandis que les composantes radiales s'annulent. Ainsi, nous mesurerons la variation locale de  $\Delta Ms$  en soustrayant deux images de phase, l'une obtenue à l'équilibre (sans excitation micro-onde) et l'autre à la résonance (sous champ micro-onde). Les variations spatiales de la précession magnétique apparaîtront alors comme des variations relatives par rapport à l'état statique, comme le montre par exemple la Figure 40. Puisque  $\Delta Ms$  augmente avec l'angle de précession, les variations de déphasage sont directement proportionnelles à l'amplitude locale de précession.



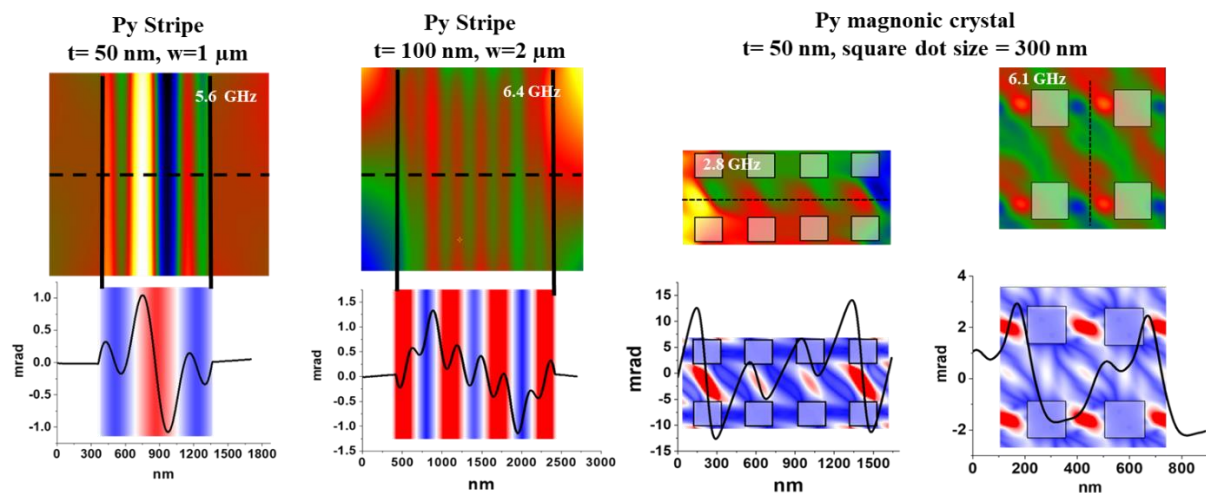
**Figure 39 :** Schéma de principe de la variation des composantes de l'aimantation sous l'effet d'un champ radiofréquence. Durant une période de précession, la moyenne des composantes radiales devient nulle alors que la composante suivant la direction d'équilibre diminue d'une quantité  $\Delta Ms$ .

Grâce à la grande sensibilité de l'holographie électronique à l'induction magnétique, notre objectif sera de mesurer la variation relative de  $\Delta Ms$  avec une résolution spatiale jusqu'au nanomètre. La résolution spatiale atteignable sera déterminée par le rapport signal/bruit (S/N) dans les images de phase. À l'état de l'art, avec notre niveau de bruit dans le microscope I2TEM, nous pouvons estimer une résolution d'environ 2 nm dans une couche de permalloy de 50 nm d'épaisseur pour un angle de précession d'environ 2-3 degrés (typique de l'amplitude des ondes de spin). Ce niveau de bruit peut



notamment être amélioré grâce à un contrôle « en direct » des paramètres du microscope électronique à travers un programme développé par C. Gatel [165]. De plus, les nouvelles générations de caméra à détection d'électrons directs offrent des niveaux de bruit environ un ordre de grandeur plus bas que les caméras actuelles, ce qui, à terme, permettra de mesurer des fluctuations extrêmement faibles.

Afin de valider notre approche, j'ai déjà mis au point les outils numériques permettant de simuler les modes dynamiques dans des nano-objets et de reconstruire l'image de phase attendue en holographie électronique après intégration temporelle. Comme on peut le voir sur la Figure 40 pour différents systèmes modèles, les variations attendues dans l'image de phase entre l'état d'équilibre (sans excitation RF) et l'état dynamique (avec excitation RF) sont de l'ordre de quelques mrad. Les variations peuvent même atteindre quelques dizaines de mrad dans le cas de cristaux magnoniques. De plus, ces variations spatiales dans l'image de phase représentent bien le profil des modes obtenus dans les simulations magnétiques. A l'heure actuelle, notre limite de détection est environ le mrad, ce qui rend ce projet réalisable.



**Figure 40 :** (en haut) Exemple de variation dans des images de phase magnétique calculées pour des modes quantifiés dans des systèmes modèles de type ruban de Py ou cristal magnonique avec un réseau carré. Les images correspondent à la soustraction des images de phase avec un champ hyperfréquence (la fréquence est indiquée sur les images) et à l'équilibre. (en bas) Profil spatial des modes calculés. Par-dessus est superposée la variation dans les images de phase le long des lignes en pointillés noirs. Pour les rubans de Py, le contraste bleu-rouge correspond à une oscillation en opposition de phase. Pour le cristal, le bleu correspond à une amplitude de précession nulle.

Nous nous focaliserons d'abord sur des systèmes modèles permettant de valider notre approche expérimentale (ex : réseaux de lignes ou de plots) pour lesquels les fréquences des modes peuvent être calculées analytiquement et directement comparées aux résultats obtenus en holographie. Puis, nous viserons des systèmes plus complexes (ex : cristaux magnoniques). Les expériences seront réalisées à la rémanence, qui est le mode de fonctionnement usuel des composants. Enfin, la possibilité d'imager directement les modes dynamiques dans des structures complexes permettra de développer plus avant les modèles de dynamique de spins dans des configurations magnétiques fortement inhomogènes, pour lesquels peu de modèles analytiques existent. Pour ce faire, deux verrous devront être levés. Le premier concerne la fabrication d'échantillons déposés sur des grilles de  $\text{Si}_3\text{N}_4$  suffisamment fines pour être transparentes aux électrons. Le second consiste à développer un porte-objet permettant d'injecter *in-situ* un signal radiofréquence. J'ai obtenu un financement du LABEX NEXT/NANOX en septembre 2019 pour développer cette activité en collaboration avec C. Gatel et B. Lassagne du LPCNO à Toulouse, spécialiste en nano fabrication et en mesures électriques de nano-objets.



## IV. Enseignement et formation des étudiants.

Ce chapitre assez court apparaîtra probablement comme une digression par rapport au reste du manuscrit mais, de mon point de vue, il permet d'aborder ce qui pour moi est au cœur même de ce qu'est l'habilitation à diriger des recherches. Ainsi, je vais essayer en quelques lignes de présenter ma façon d'encadrer les étudiants. Bien évidemment, je ne révolutionne en rien la manière de former les « jeunes ». Bien d'autres chercheurs avant et après moi ont eu et auront la même, ou une meilleure, manière de fonctionner. En ce qui me concerne, j'essaie de m'inspirer d'une phrase que m'avait dit Claude Fermon au cours de ma thèse, « *je ne cherche pas à former de futurs post-doc, je forme de futurs chercheurs* ».

Au-delà des éléments classiques que l'on retrouve dans n'importe quelle thèse (apprendre à écrire un article, présenter ses résultats, formaliser ses idées etc.), il y a deux points en particulier sur lesquels j'insiste avec les doctorants que j'encadre. Le premier concerne la prise d'autonomie au sens le plus large. D'abord au niveau scientifique. J'essaie de les inciter autant que possible à devenir moteur de leur sujet de thèse le plus rapidement possible. De cette façon, cela leur permet de transiter entre un état passif (sans que cela ne soit péjoratif), et passage quasi obligé, consistant à aborder le début de thèse de façon un peu scolaire à la manière de travaux pratiques, à un état actif dans lequel ils deviennent décideurs des expériences à réaliser, voire même de l'évolution thématique au cours de la thèse en concertation avec moi. Dès le début de la deuxième année, je leur demande de proposer un planning d'expériences qu'ils pensent nécessaires pour atteindre leurs objectifs. A travers cela, je leur demande également de gérer le plus possible les interactions entre les différentes plateformes techniques afin de développer le travail collaboratif. J'interviens bien évidemment en cas de difficultés éventuelles, quel que soit le domaine. L'autre aspect de l'autonomie sur lequel j'insiste concerne la recherche d'informations. Cela passe par l'apprentissage de la recherche bibliographique (point souvent compliqué pour les jeunes étudiants) à travers la définition des « bons » mots clefs, mais aussi apprendre à demander les informations auprès de personnes ayant les compétences spécifiques recherchées.

Le second point que j'essaie de mettre en place durant une thèse est d'offrir aux étudiants la possibilité de voir différentes techniques expérimentales. Ceci est quelque chose auquel je tiens particulièrement. Par exemple, durant sa thèse, Iman Abdallah a pu découvrir des techniques de croissance de films minces, d'analyses structurales (diffraction X, microscopie électronique), de mesures radiofréquences. Quant à Sarah Manton, elle va pouvoir aborder la croissance, la nano-fabrication, les mesures de transport DC et radiofréquences ainsi que la simulation micromagnétique. De mon point de vue, bien que certains aspects soient plus poussés que d'autres, ce côté pluridisciplinaire est un atout pour les étudiants puisque cela leur permet par la suite de pouvoir postuler sur des sujets de post-doctorat dans différents domaines. Cela leur permet aussi d'acquérir une vision globale de la réalisation d'un projet et des éventuelles difficultés qu'ils vont rencontrer. Enfin, et sûrement la chose la plus importante, être confronté durant sa thèse à la manipulation d'équipements différents augmente leur capacité d'adaptation à de nouvelles techniques expérimentales lorsqu'ils arrivent sur de nouvelles thématiques.

J'ai également encadré d'autres étudiants de niveau licence jusqu'au niveau Master (voir partie CV en début du manuscrit) pour des durées allant de quelques semaines à quelques mois. Evidemment, les attentes sont différentes que dans le cas d'une thèse mais j'essaie de mettre en place les mêmes choses, notamment sur la prise d'autonomie dans leurs travaux.

Former, c'est aussi permettre aux étudiants de travailler dans les meilleures conditions. Pour cela, j'essaie d'obtenir des contrats permettant d'assurer le soutien financier nécessaire à la bonne réalisation des différents travaux. Depuis 2013, j'ai été coordinateur de 4 contrats de recherches (voir CV) qui ont permis notamment de développer les activités de magnétisme et de mesures radiofréquences au

laboratoire et j'ai participé à 2 autres contrats. J'ai également le soutien financier de mon groupe en cas de difficultés. J'essaie aussi de mettre en place certaines synergies avec d'autres collègues au sein du laboratoire ou au niveau local toulousain, afin d'offrir aux étudiants différents interlocuteurs (G. BenAssayag dans la thèse d'Iman, B. Lassagne dans la thèse de Sarah) qui peuvent prendre le relai sur des questions spécifiques. J'espère à l'avenir développer de nouvelles collaborations au niveau national, comme celle que j'ai par exemple avec T. Wade du LSI et qui a permis de réaliser les travaux de thèse de D. Reyes. Ces collaborations permettront à mes étudiants de découvrir ponctuellement d'autres laboratoires et d'autres méthodes.

Enfin, je réalise environ 40H de TD annuellement depuis 2012 (en très grande majorité effectuées à l'INSA Toulouse et sur des modules de mécanique et d'optique). C'est une activité que je souhaite poursuivre à l'avenir.



# CONCLUSION

Tout au long de ce manuscrit, j'ai tenté de présenter de façon plus ou moins claire la plupart des travaux que j'ai effectués depuis mon entrée au CNRS. Les résultats obtenus sont la conséquence d'un travail à la fois individuel et collectif avec des membres permanents du laboratoire et des étudiants en thèse ou en stage de fin d'études que j'ai encadrés, officiellement ou non.

Nos observations sur l'influence des différents types de désordre atomique sur les propriétés magnétiques de l'alliage d'Heusler  $\text{Co}_2\text{MnSi}$ , les variations de configurations magnétiques rémanentes dans des nanofils magnétiques ou la réalisation de simulations micromagnétiques incluant la structure 3D réelle de nano-objets ont permis d'atteindre la majeure partie de objectifs présentés dans mon projet d'entrée au CNRS. Bien que ces études aient été généralement plutôt fondamentales, les différentes thématiques que j'ai abordées ont toujours été inspirées par des problématiques technologiques. Durant ces études, j'ai essayé d'apporter un soin particulier aux développements méthodologiques, que ce soit dans la mise en place des expériences ou dans l'interprétation des résultats, afin d'éviter au mieux les erreurs d'interprétations.

Les études que je souhaite poursuivre dans les années à venir s'appuieront en partie sur les résultats précédents, notamment pour le développement de la croissance d'Heusler sur des substrats de la microélectronique. L'étude des mécanismes de propagation et de détection d'ondes de spins dans des systèmes magnoniques me permettra de développer une nouvelle thématique au laboratoire. Celle-ci sera renforcée par la mise au point d'une nouvelle méthode d'imagerie de la dynamique de spins par holographie électronique. Cette technique, qui je l'espère s'avérera efficace, « bouclera la boucle » puisqu'elle répondra au dernier thème de mon projet d'entrée CNRS consistant à combiner les techniques radiofréquences et d'imageries in-situ. Cependant, atteindre ces objectifs passera obligatoirement par la mise en place au sein du laboratoire des techniques de base de nano fabrication, ce qui reste particulièrement compliqué pour l'instant. Grâce au CPER 2014-2020 NANOMAT, le CEMES a acquis différents équipements, souvent non conventionnels (bâti de gravure ionique en 2017, développement d'une lithographie électronique sur un FIB dual Beam depuis 2018, bâti de métallisation et de passivation en 2019.). Leurs installations dans la salle blanche du CEMES, leurs maintenances et le développement des recettes associées ont occupé une bonne partie de mon temps depuis 3 ans, ainsi que celui de plusieurs collègues (G. BenAssayag, A. Masseboeuf) qui ne sont plus au CEMES depuis 2019. La mise en place au laboratoire depuis quelques mois d'une plateforme technique dédiée à la salle blanche devrait nous aider à finaliser la mise en service des équipements et atteindre prochainement un régime normal de fonctionnement.

Par l'intermédiaire de ces projets, j'espère développer de nouvelles collaborations avec d'autres acteurs au niveau local ou national, non seulement dans le domaine du magnétisme mais également dans d'autres thématiques puisque les méthodes mises en place pour injecter un signal RF dans un microscope électronique pourront être utilisées dans de nombreuses études in-situ de composants électroniques.



## REFERENCES

- [1] F. Heusler, « Über magnetische Manganlegierungen », *Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft*, vol. 12, p. 219, 1903.
- [2] F. Casper, T. Graf, S. Chadov, B. Balke, et C. Felser, « Half-Heusler compounds: novel materials for energy and spintronic applications », *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 27, n° 6, p. 063001, avr. 2012, doi: 10.1088/0268-1242/27/6/063001.
- [3] C. Felser et A. Hirohata, *Heusler Alloys : Properties, Growth, Applications*. Springer International Publishing, 2016.
- [4] T. Graf, C. Felser, et S. S. P. Parkin, « Simple rules for the understanding of Heusler compounds », *Progress in Solid State Chemistry*, vol. 39, n° 1, p. 1-50, mai 2011, doi: 10.1016/j.progsolidstchem.2011.02.001.
- [5] R. A. de Groot, F. M. Mueller, P. G. van Engen, et K. H. J. Buschow, « New Class of Materials: Half-Metallic Ferromagnets », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 50, n° 25, p. 2024-2027, juin 1983, doi: 10.1103/PhysRevLett.50.2024.
- [6] J. Kübler, « Ab initio estimates of the Curie temperature for magnetic compounds », *J. Phys.: Condens. Matter*, vol. 18, n° 43, p. 9795–9807, oct. 2006, doi: 10.1088/0953-8984/18/43/003.
- [7] I. Galanakis, P. Mavropoulos, et P. H. Dederichs, « Electronic structure and Slater–Pauling behaviour in half-metallic Heusler alloys calculated from first principles », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 39, n° 5, p. 765–775, févr. 2006, doi: 10.1088/0022-3727/39/5/S01.
- [8] I. Galanakis, P. H. Dederichs, et N. Papanikolaou, « Slater-Pauling behavior and origin of the half-metallicity of the full-Heusler alloys », *Phys. Rev. B*, vol. 66, n° 17, p. 174429, nov. 2002, doi: 10.1103/PhysRevB.66.174429.
- [9] V. Kamberský, « On the Landau–Lifshitz relaxation in ferromagnetic metals - Canadian Journal of Physics », *Revue canadienne de physique*, vol. 48, n° 24, p. 2906-2911, 1970, doi: <https://doi.org/10.1139/p70-361>.
- [10] V. Kamberský, « On ferromagnetic resonance damping in metals », *Czech J Phys*, vol. 26, n° 12, p. 1366-1383, déc. 1976, doi: 10.1007/BF01587621.
- [11] J. Chico *et al.*, « First-principles studies of the Gilbert damping and exchange interactions for half-metallic Heuslers alloys », *Phys. Rev. B*, vol. 93, n° 21, p. 214439, juin 2016, doi: 10.1103/PhysRevB.93.214439.
- [12] A. Sakuma, « First-principles study of the Gilbert damping constants of Heusler alloys based on the torque correlation model », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 48, n° 16, p. 164011, avr. 2015, doi: 10.1088/0022-3727/48/16/164011.
- [13] M. Jourdan *et al.*, « Direct observation of half-metallicity in the Heusler compound Co<sub>2</sub>MnSi », *Nat Commun*, vol. 5, n° 1, p. 3974, sept. 2014, doi: 10.1038/ncomms4974.
- [14] S. Andrieu *et al.*, « Direct evidence for minority spin gap in the Co<sub>2</sub>MnSi Heusler compound », *Phys. Rev. B*, vol. 93, n° 9, p. 094417, mars 2016, doi: 10.1103/PhysRevB.93.094417.
- [15] C. Guillemard *et al.*, « Ultralow Magnetic Damping in Co<sub>2</sub>Mn-Based Heusler Compounds: Promising Materials for Spintronics », *Phys. Rev. Applied*, vol. 11, n° 6, p. 064009, juin 2019, doi: 10.1103/PhysRevApplied.11.064009.
- [16] B. Ravel, M. P. Raphael, V. G. Harris, et Q. Huang, « EXAFS and neutron diffraction study of the Heusler alloy Co<sub>2</sub>MnSi », *Phys. Rev. B*, vol. 65, n° 18, p. 184431, mai 2002, doi: 10.1103/PhysRevB.65.184431.

- [17] M. P. Raphael *et al.*, « Presence of antisite disorder and its characterization in the predicted half-metal Co<sub>2</sub>MnSi », *Phys. Rev. B*, vol. 66, n° 10, p. 104429, sept. 2002, doi: 10.1103/PhysRevB.66.104429.
- [18] S. Picozzi, A. Continenza, et A. J. Freeman, « Role of structural defects on the half-metallic character of Co<sub>2</sub>MnGe and Co<sub>2</sub>MnSi Heusler alloys », *Phys. Rev. B*, vol. 69, n° 9, p. 094423, mars 2004, doi: 10.1103/PhysRevB.69.094423.
- [19] B. Pradines, R. Arras, I. Abdallah, N. Biziere, et L. Calmels, « First-principles calculation of the effects of partial alloy disorder on the static and dynamic magnetic properties of Co<sub>2</sub>MnSi », *Phys. Rev. B*, vol. 95, n° 9, p. 094425, mars 2017, doi: 10.1103/PhysRevB.95.094425.
- [20] H. Pandey, R. Prasad, et R. C. Budhani, « Correlation between Site Disorder and Magnetic Moment in Full-Heusler Co<sub>2</sub>MnSi », présenté à Proceedings of the International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2013), Tokyo, Japan, juin 2014, doi: 10.7566/JPSCP.3.017037.
- [21] S. J. Hashemifar, P. Kratzer, et M. Scheffler, « Preserving the Half-Metallicity at the Heusler Alloy Co<sub>2</sub>MnSi (001) Surface: A Density Functional Theory Study », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 94, n° 9, p. 096402, mars 2005, doi: 10.1103/PhysRevLett.94.096402.
- [22] S. Ishida, T. Masaki, S. Fujii, et S. Asano, « Theoretical search for half-metallic films of Co<sub>2</sub>MnZ (Z = Si, Ge) », *Physica B: Condensed Matter*, vol. 245, n° 1, p. 1-8, janv. 1998, doi: 10.1016/S0921-4526(97)00495-X.
- [23] G. Ortiz *et al.*, « Broadband Ferromagnetic Resonance Study of Co<sub>2</sub>MnSi Thin Films: Effect of the Film Thickness », *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 49, n° 3, p. 1037-1040, mars 2013, doi: 10.1109/TMAG.2012.2231856.
- [24] G. Ortiz, A. García-García, N. Biziere, F. Boust, J. F. Bobo, et E. Snoeck, « Growth, structural, and magnetic characterization of epitaxial Co<sub>2</sub>MnSi films deposited on MgO and Cr seed layers », *Journal of Applied Physics*, vol. 113, n° 4, p. 043921, janv. 2013, doi: 10.1063/1.4789801.
- [25] L. A. Giannuzzi, Éd., *Introduction to focused ion beams: instrumentation, theory, techniques and practice*. New York, NY: Springer, 2005.
- [26] D. A. Bromley, Éd., *Treatise on Heavy-Ion Science*. Boston, MA: Springer US, 1985.
- [27] O. Gaier, « A study of exchange interaction, magnetic anisotropies, and ion beam induced effects in thin films of Co<sub>2</sub>-based Heusler compounds », PhD., Kaiserslautern, 2009.
- [28] T. Devolder, « Light ion irradiation of Co/Pt systems: Structural origin of the decrease in magnetic anisotropy », *Phys. Rev. B*, vol. 62, n° 9, p. 5794-5802, sept. 2000, doi: 10.1103/PhysRevB.62.5794.
- [29] J. Fassbender et J. McCord, « Magnetic patterning by means of ion irradiation and implantation », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 320, n° 3-4, p. 579-596, févr. 2008, doi: 10.1016/j.jmmm.2007.07.032.
- [30] C. Chappert *et al.*, « Planar Patterned Magnetic Media Obtained by Ion Irradiation », *Science*, vol. 280, n° 5371, p. 1919-1922, juin 1998, doi: 10.1126/science.280.5371.1919.
- [31] O. Gaier *et al.*, « Improvement of structural, electronic, and magnetic properties of Co<sub>2</sub>MnSi thin films by He<sup>+</sup> irradiation », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, n° 15, p. 152508, avr. 2009, doi: 10.1063/1.3119188.
- [32] F. Hammerath *et al.*, « Structure-property relationship of Co<sub>2</sub>MnSi thin films in response to He<sup>+</sup> irradiation », *Sci Rep*, vol. 9, n° 1, p. 2766, déc. 2019, doi: 10.1038/s41598-019-39435-4.
- [33] I. Abdallah *et al.*, « Structural and magnetic properties of He<sup>+</sup> irradiated Co<sub>2</sub>MnSi Heusler alloys », *Mater. Res. Express*, vol. 3, n° 4, p. 046101, avr. 2016, doi: 10.1088/2053-1591/3/4/046101.

- [34] Y. Takamura, R. Nakane, et S. Sugahara, « Quantitative analysis of atomic disorders in full-Heusler Co<sub>2</sub>FeSi alloy thin films using x-ray diffraction with Co K $\alpha$  and Cu K $\alpha$  sources », *Journal of Applied Physics*, vol. 107, n<sup>o</sup> 9, p. 09B111, mai 2010, doi: 10.1063/1.3350914.
- [35] Y. Takamura, R. Nakane, et S. Sugahara, « Analysis of L21-ordering in full-Heusler Co<sub>2</sub>FeSi alloy thin films formed by rapid thermal annealing », *Journal of Applied Physics*, vol. 105, n<sup>o</sup> 7, p. 07B109, avr. 2009, doi: 10.1063/1.3075989.
- [36] V. Niculescu, K. Raj, T. J. Burch, et J. I. Budnick, « Correlation of the internal fields, magnetic moments, and site preferences in Fe<sub>3-x</sub>Mn<sub>x</sub>Si alloys », *Phys. Rev. B*, vol. 13, n<sup>o</sup> 7, p. 3167-3174, avr. 1976, doi: 10.1103/PhysRevB.13.3167.
- [37] C. H. MacGillavry et G. D. Rieck, *International tables for X-ray crystallography*, Birmingham: Published for the International Union of Crystallography by the Kynoch Press., vol. 3. 1968.
- [38] M. J. Hÿtch, E. Snoeck, et R. Kilaas, « Quantitative measurement of displacement and strain fields from HREM micrographs », *Ultramicroscopy*, vol. 74, n<sup>o</sup> 3, p. 131-146, août 1998, doi: 10.1016/S0304-3991(98)00035-7.
- [39] E. Snoeck *et al.*, « Quantitative analysis of strain field in thin films from HRTEM micrographs », *Thin Solid Films*, vol. 319, n<sup>o</sup> 1, p. 157-162, avr. 1998, doi: 10.1016/S0040-6090(97)01113-9.
- [40] I. Abdallah *et al.*, « Evolution of magnetic properties and damping coefficient of Co<sub>2</sub>MnSi Heusler alloy with Mn/Si and Co/Mn atomic disorder », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 50, n<sup>o</sup> 3, p. 035003, janv. 2017, doi: 10.1088/1361-6463/50/3/035003.
- [41] J. Smit et H. G. Belgers, « Ferromagnetic resonance absorption in BaFe<sub>12</sub>O<sub>19</sub>, a highly anisotropic crystal », *Philips Res. Rep*, vol. 10, p. 113, 1955.
- [42] M. Belmeguenai *et al.*, « Anisotropy and dynamic properties of Co<sub>2</sub>MnGe Heusler thin films », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 321, n<sup>o</sup> 7, p. 750-753, avr. 2009, doi: 10.1016/j.jmmm.2008.11.042.
- [43] J. Hamrle *et al.*, « Ion beam induced modification of exchange interaction and spin-orbit coupling in the Co<sub>2</sub>FeSi Heusler compound », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 40, n<sup>o</sup> 6, p. 1558-1562, mars 2007, doi: 10.1088/0022-3727/40/6/S08.
- [44] O. Gaier *et al.*, « Improvement of structural, electronic, and magnetic properties of Co<sub>2</sub>MnSi thin films by He<sup>+</sup> irradiation », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, n<sup>o</sup> 15, p. 152508, avr. 2009, doi: 10.1063/1.3119188.
- [45] « SPRKKR Presentation ». [https://www.ebert.cup.uni-muenchen.de/old/index.php?option=com\\_remository&Itemid=20&func=startdown&id=53&lang=de](https://www.ebert.cup.uni-muenchen.de/old/index.php?option=com_remository&Itemid=20&func=startdown&id=53&lang=de) (consulté le juin 28, 2020).
- [46] H. Ebert, D. Ködderitzsch, et J. Minár, « Calculating condensed matter properties using the KKR-Green function method—recent developments and applications », *Rep. Prog. Phys.*, vol. 74, n<sup>o</sup> 9, p. 096501, août 2011, doi: 10.1088/0034-4885/74/9/096501.
- [47] J. Chico *et al.*, « First-principles studies of the Gilbert damping and exchange interactions for half-metallic Heuslers alloys », *Phys. Rev. B*, vol. 93, n<sup>o</sup> 21, p. 214439, juin 2016, doi: 10.1103/PhysRevB.93.214439.
- [48] A. Köhler *et al.*, « Tunable damping in the Heusler compound Co<sub>2</sub>-xIrxMnSi », *Phys. Rev. B*, vol. 93, n<sup>o</sup> 9, p. 094410, mars 2016, doi: 10.1103/PhysRevB.93.094410.
- [49] B. Obry *et al.*, « A micro-structured ion-implanted magnonic crystal », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 102, n<sup>o</sup> 20, p. 202403, mai 2013, doi: 10.1063/1.4807721.
- [50] C. Guillemard *et al.*, « Ultra-low magnetic damping in Co<sub>2</sub>Mn- based Heusler compounds: promising materials for spintronic », p. 20, 2019.

- [51] S. Tsunegi *et al.*, « Tunnel magnetoresistance in epitaxially grown magnetic tunnel junctions using Heusler alloy electrode and MgO barrier », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 42, n° 19, p. 195004, sept. 2009, doi: 10.1088/0022-3727/42/19/195004.
- [52] T. Ishikawa *et al.*, « Spin-dependent tunneling characteristics of fully epitaxial magnetic tunneling junctions with a full-Heusler alloy Co<sub>2</sub>MnSi thin film and a MgO tunnel barrier », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 89, n° 19, p. 192505, nov. 2006, doi: 10.1063/1.2378397.
- [53] C. Guillemard *et al.*, « Polycrystalline Co<sub>2</sub> Mn-based Heusler thin films with high spin polarization and low magnetic damping », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 115, n° 17, p. 172401, oct. 2019, doi: 10.1063/1.5121614.
- [54] B. Doudin et J.-Ph. Ansermet, « A new method to construct nanostructured materials of controlled morphology », *Nanostructured Materials*, vol. 6, n° 1, p. 521-524, janv. 1995, doi: 10.1016/0965-9773(95)00111-5.
- [55] A. Blondel, J. P. Meier, B. Doudin, et J. -Ph. Ansermet, « Giant magnetoresistance of nanowires of multilayers », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 65, n° 23, p. 3019-3021, déc. 1994, doi: 10.1063/1.112495.
- [56] J.-P. Ansermet, « Perpendicular transport of spin-polarized electrons through magnetic nanostructures », *J. Phys.: Condens. Matter*, vol. 10, n° 27, p. 6027-6050, juill. 1998, doi: 10.1088/0953-8984/10/27/005.
- [57] L. Piraux, S. Dubois, J. L. Duvail, K. Ounadjela, et A. Fert, « Arrays of nanowires of magnetic metals and multilayers: Perpendicular GMR and magnetic properties », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 175, n° 1, p. 127-136, nov. 1997, doi: 10.1016/S0304-8853(97)00157-1.
- [58] W. Schwarzacher et D. S. Lashmore, « Giant magnetoresistance in electrodeposited films », *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 32, n° 4, p. 3133-3153, juill. 1996, doi: 10.1109/20.508379.
- [59] T. Ono, H. Miyajima, K. Shigeto, et T. Shinjo, « Magnetization reversal in submicron magnetic wire studied by using giant magnetoresistance effect », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 72, n° 9, p. 1116-1117, mars 1998, doi: 10.1063/1.120941.
- [60] S. Dubois *et al.*, « Perpendicular giant magnetoresistance of NiFe/Cu multilayered nanowires », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 70, n° 3, p. 396-398, janv. 1997, doi: 10.1063/1.118385.
- [61] A. Fert et L. Piraux, « Magnetic nanowires », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 200, n° 1, p. 338-358, oct. 1999, doi: 10.1016/S0304-8853(99)00375-3.
- [62] M. Darques *et al.*, « Bottom-up approach for the fabrication of spin torque nano-oscillators », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 44, n° 10, p. 105003, févr. 2011, doi: 10.1088/0022-3727/44/10/105003.
- [63] N. Biziere, E. Murè, et J.-Ph. Ansermet, « Current-driven, electrically detected ferromagnetic resonance in electrodeposited spin valves », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 322, n° 9-12, p. 1357-1359, mai 2010, doi: 10.1016/j.jmmm.2009.09.037.
- [64] X. Huang, L. Tan, H. Cho, et B. J. H. Stadler, « Magnetoresistance and spin transfer torque in electrodeposited Co/Cu multilayered nanowire arrays with small diameters », *Journal of Applied Physics*, vol. 105, n° 7, p. 07D128, mars 2009, doi: 10.1063/1.3075990.
- [65] N. Biziere, E. Murè, et J.-Ph. Ansermet, « Microwave spin-torque excitation in a template-synthesized nanomagnet », *Phys. Rev. B*, vol. 79, n° 1, p. 012404, janv. 2009, doi: 10.1103/PhysRevB.79.012404.
- [66] T. Blon *et al.*, « Spin momentum transfer effects observed in electrodeposited Co/Cu/Co nanowires », *Journal of Applied Physics*, vol. 102, n° 10, p. 103906, nov. 2007, doi: 10.1063/1.2812677.
- [67] J.-E. Wegrowe *et al.*, « Exchange torque and spin transfer between spin polarized current and ferromagnetic layers », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 80, n° 20, p. 3775-3777, mai 2002, doi: 10.1063/1.1476065.

- [68] P. Grünberg, D. E. Bürgler, H. Dasso, A. D. Rata, et C. M. Schneider, « Spin-transfer phenomena in layered magnetic structures: Physical phenomena and materials aspects », *Acta Materialia*, vol. 55, n° 4, p. 1171-1182, févr. 2007, doi: 10.1016/j.actamat.2006.10.002.
- [69] M. Yan, A. Kákay, S. Gliga, et R. Hertel, « Beating the Walker Limit with Massless Domain Walls in Cylindrical Nanowires », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 104, n° 5, p. 057201, févr. 2010, doi: 10.1103/PhysRevLett.104.057201.
- [70] M. Vasquez, « Magnetic Nano- and Microwires - 1st Edition », 2015. <https://www.elsevier.com/books/magnetic-nano-and-microwires/vazquez/978-0-08-100164-6> (consulté le juill. 17, 2020).
- [71] M. Staño et O. Fruchart, « Chapter 3 - Magnetic Nanowires and Nanotubes », in *Handbook of Magnetic Materials*, vol. 27, E. Brück, Éd. Elsevier, 2018, p. 155-267.
- [72] N. Biziere *et al.*, « Synthesis and magnetic reversal of bi-conical Ni nanostructures », *Journal of Applied Physics*, vol. 110, n° 6, p. 063906, sept. 2011, doi: 10.1063/1.3638072.
- [73] M.-C. Clochard *et al.*, « Magnetic nanoconstrictions made from nickel electrodeposition in polymeric bi-conical tracks: Magneto-transport behavior », *Radiation Physics and Chemistry*, vol. 94, p. 66-71, janv. 2014, doi: 10.1016/j.radphyschem.2013.06.016.
- [74] A. Encinas-Oropesa, M. Demand, L. Piraux, U. Ebels, et I. Huynen, « Effect of dipolar interactions on the ferromagnetic resonance properties in arrays of magnetic nanowires », *Journal of Applied Physics*, vol. 89, n° 11, p. 6704-6706, juin 2001, doi: 10.1063/1.1362638.
- [75] X. F. Qin *et al.*, « Magnetization Reversal of High Aspect Ratio Iron Nanowires Grown by Electrodeposition », *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 48, n° 11, p. 3136-3139, nov. 2012, doi: 10.1109/TMAG.2012.2205561.
- [76] Q.-F. Zhan, J.-H. Gao, Y.-Q. Liang, N.-L. Di, et Z.-H. Cheng, « Dipolar interactions in arrays of iron nanowires studied by Mössbauer spectroscopy », *Phys. Rev. B*, vol. 72, n° 2, p. 024428, juill. 2005, doi: 10.1103/PhysRevB.72.024428.
- [77] F. Zighem, T. Maurer, F. Ott, et G. Chaboussant, « Dipolar interactions in arrays of ferromagnetic nanowires: A micromagnetic study », *Journal of Applied Physics*, vol. 109, n° 1, p. 013910, janv. 2011, doi: 10.1063/1.3518498.
- [78] W. Zhang, W. Li, L. Zhang, et S. Yao, « Electrodeposition of Ordered Arrays of Multilayered Cu/Ni Nanowires by Dual Bath Technique », *Acta Physico-Chimica Sinica*, vol. 22, n° 8, p. 977-980, août 2006, doi: 10.1016/S1872-1508(06)60043-0.
- [79] « Dual-Bath Electrodeposition of Cu/Ni Compositionally Modulated Multilayers - IOPscience ». <https://iopscience.iop.org/article/10.1149/1.2054689/meta> (consulté le juill. 19, 2020).
- [80] I. Kirilova, I. Ivanov, et St. Rashkov, « Anodic behaviour of composition modulated Zn-Co multilayers electrodeposited from single and dual baths », *Journal of Applied Electrochemistry*, vol. 28, n° 12, p. 1359-1363, déc. 1998, doi: 10.1023/A:1003410011506.
- [81] A. Fernández-Pacheco *et al.*, « Three dimensional magnetic nanowires grown by focused electron-beam induced deposition », *Scientific Reports*, vol. 3, n° 1, Art. n° 1, mars 2013, doi: 10.1038/srep01492.
- [82] K. Pitzschel *et al.*, « Magnetic reversal of cylindrical nickel nanowires with modulated diameters », *Journal of Applied Physics*, vol. 109, n° 3, p. 033907, févr. 2011, doi: 10.1063/1.3544036.
- [83] J. M. García, A. Thiaville, et J. Miltat, « MFM imaging of nanowires and elongated patterned elements », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 249, n° 1, p. 163-169, août 2002, doi: 10.1016/S0304-8853(02)00525-5.

- [84] J. M. Garcia, A. Asenjo, M. Vazquez, P. Aranda, et E. Ruiz-Hitzky, « Characterization of cobalt nanowires by means of force microscopy », *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 36, n° 5, p. 2981-2983, sept. 2000, doi: 10.1109/20.908647.
- [85] S. Bochmann *et al.*, « Systematic tuning of segmented magnetic nanowires into three-dimensional arrays of ‘bits’ », *RSC Adv.*, vol. 7, n° 60, p. 37627-37635, juill. 2017, doi: 10.1039/C7RA06734H.
- [86] C. Beeli, B. Doudin, J.-Ph. Ansermet, et P. Stadelmann, « Study of Co, Ni and Co/Cu nanowires: Magnetic flux imaging by off-axis electron holography », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 164, n° 1, p. 77-90, nov. 1996, doi: 10.1016/S0304-8853(96)00399-X.
- [87] Y. P. Ivanov, A. Chuvilin, L. G. Vivas, J. Kosel, O. Chubykalo-Fesenko, et M. Vázquez, « Single crystalline cylindrical nanowires – toward dense 3D arrays of magnetic vortices », *Scientific Reports*, vol. 6, n° 1, Art. n° 1, mars 2016, doi: 10.1038/srep23844.
- [88] N. Biziere, C. Gatel, R. Lassalle-Balier, M. C. Clochard, J. E. Wegrowe, et E. Snoeck, « Imaging the Fine Structure of a Magnetic Domain Wall in a Ni Nanocylinder », *Nano Lett.*, vol. 13, n° 5, p. 2053-2057, mai 2013, doi: 10.1021/nl400317j.
- [89] C. Bran *et al.*, « Spin configuration of cylindrical bamboo-like magnetic nanowires », *J. Mater. Chem. C*, vol. 4, n° 5, p. 978-984, janv. 2016, doi: 10.1039/C5TC04194E.
- [90] S. Jamet *et al.*, « Quantitative analysis of shadow x-ray magnetic circular dichroism photoemission electron microscopy », *Phys. Rev. B*, vol. 92, n° 14, p. 144428, oct. 2015, doi: 10.1103/PhysRevB.92.144428.
- [91] S. Da Col *et al.*, « Observation of Bloch-point domain walls in cylindrical magnetic nanowires », *Phys. Rev. B*, vol. 89, n° 18, p. 180405, mai 2014, doi: 10.1103/PhysRevB.89.180405.
- [92] A. Tonomura, T. Matsuda, J. Endo, T. Arii, et K. Mihama, « Holographic interference electron microscopy for determining specimen magnetic structure and thickness distribution », *Phys. Rev. B*, vol. 34, n° 5, p. 3397-3402, sept. 1986, doi: 10.1103/PhysRevB.34.3397.
- [93] M. J. Donahue et D. G. Porter, *OOMMF Object Oriented Micromagnetic Framework*. National Institute of Standards and Technology, 1999.
- [94] D. F. Reyes Vasquez, « Magnetic configurations in Co-based nanowires explored by electron holography and micromagnetic calculations », Theses, Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2016.
- [95] N. L. Schryer et L. R. Walker, « The motion of 180° domain walls in uniform dc magnetic fields », *Journal of Applied Physics*, vol. 45, n° 12, p. 5406-5421, déc. 1974, doi: 10.1063/1.1663252.
- [96] A. Mougin, M. Cormier, J. P. Adam, P. J. Metaxas, et J. Ferré, « Domain wall mobility, stability and Walker breakdown in magnetic nanowires », *EPL*, vol. 78, n° 5, p. 57007, mai 2007, doi: 10.1209/0295-5075/78/57007.
- [97] T. Koyama *et al.*, « Current-induced magnetic domain wall motion below intrinsic threshold triggered by Walker breakdown », *Nature Nanotechnology*, vol. 7, n° 10, Art. n° 10, oct. 2012, doi: 10.1038/nano.2012.151.
- [98] A. Arrott, B. Heinrich, et A. Aharoni, « Point singularities and magnetization reversal in ideally soft ferromagnetic cylinders », *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 15, n° 5, p. 1228-1235, sept. 1979, doi: 10.1109/TMAG.1979.1060342.
- [99] R. Hertel, « Computational micromagnetism of magnetization processes in nickel nanowires », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 249, n° 1-2, p. 251-256, août 2002, doi: 10.1016/S0304-8853(02)00539-5.
- [100] A. Thiaville et Y. Nakatani, « Domain-Wall Dynamics in Nanowires and Nanostrips », in *Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures III*, vol. 101, B. Hillebrands et A. Thiaville, Éd. Springer Berlin Heidelberg, 2006, p. 161-205.



- [101] S. S. P. Parkin, M. Hayashi, et L. Thomas, « Magnetic Domain-Wall Racetrack Memory », *Science*, vol. 320, n° 5873, p. 190-194, avr. 2008, doi: 10.1126/science.1145799.
- [102] M. Hayashi, L. Thomas, R. Moriya, C. Rettner, et S. S. P. Parkin, « Current-Controlled Magnetic Domain-Wall Nanowire Shift Register », *Science*, vol. 320, n° 5873, p. 209-211, avr. 2008, doi: 10.1126/science.1154587.
- [103] J. H. Franken, H. J. M. Swagten, et B. Koopmans, « Shift registers based on magnetic domain wall ratchets with perpendicular anisotropy », *Nature Nanotechnology*, vol. 7, n° 8, Art. n° 8, août 2012, doi: 10.1038/nnano.2012.111.
- [104] F. Porrati et M. Huth, « Diagram of the states in arrays of iron nanocylinders », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 85, n° 15, p. 3157-3159, oct. 2004, doi: 10.1063/1.1805697.
- [105] R. Hertel et J. Kirschner, « Magnetization reversal dynamics in nickel nanowires », *Physica B: Condensed Matter*, vol. 343, n° 1-4, p. 206-210, janv. 2004, doi: 10.1016/j.physb.2003.08.095.
- [106] « Version soumise ». Consulté le: juill. 18, 2020. [En ligne]. Disponible sur: <https://arxiv.org/pdf/1311.7368>.
- [107] S. Jamet, N. Rougemaille, J. C. Toussaint, et O. Fruchart, « 25 - Head-to-head domain walls in one-dimensional nanostructures: An extended phase diagram ranging from strips to cylindrical wires », in *Magnetic Nano- and Microwires*, M. Vázquez, Éd. Woodhead Publishing, 2015, p. 783-811.
- [108] C. Beeli, B. Doudin, J.-Ph. Ansermet, et P. Stadelmann, « Study of Co, Ni and Co/Cu nanowires: Magnetic flux imaging by off-axis electron holography », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 164, n° 1, p. 77-90, nov. 1996, doi: 10.1016/S0304-8853(96)00399-X.
- [109] A. Akhtari-Zavareh *et al.*, « Off-axis electron holography of ferromagnetic multilayer nanowires », *Journal of Applied Physics*, vol. 116, n° 2, p. 023902, juill. 2014, doi: 10.1063/1.4887488.
- [110] J. Cantu-Valle *et al.*, « Quantitative magnetometry analysis and structural characterization of multisegmented cobalt–nickel nanowires », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 379, p. 294-299, avr. 2015, doi: 10.1016/j.jmmm.2014.12.022.
- [111] G. Kartopu, « Fabrication and Applications of Metal Nanowire Arrays Electrodeposited in Ordered Porous Templates », 2010, doi: 10.5772/39481.
- [112] F. Abreu Araujo et L. Piraux, « Spin-Transfer-Torque Driven Vortex Dynamics in Electrodeposited Nanowire Spin-Valves », *SPIN*, vol. 07, n° 01, p. 1740007, mars 2017, doi: 10.1142/S2010324717400070.
- [113] T. Böhnert *et al.*, « Magnetothermopower and magnetoresistance of single Co-Ni/Cu multilayered nanowires », *Phys. Rev. B*, vol. 90, n° 16, p. 165416, oct. 2014, doi: 10.1103/PhysRevB.90.165416.
- [114] M. Krawczyk et D. Grundler, « Review and prospects of magnonic crystals and devices with reprogrammable band structure », *J. Phys.: Condens. Matter*, vol. 26, n° 12, p. 123202, mars 2014, doi: 10.1088/0953-8984/26/12/123202.
- [115] W. Scholz *et al.*, « Transition from single-domain to vortex state in soft magnetic cylindrical nanodots », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 266, n° 1, p. 155-163, oct. 2003, doi: 10.1016/S0304-8853(03)00466-9.
- [116] F. Porrati et M. Huth, « Diagram of the states in arrays of iron nanocylinders », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 85, n° 15, p. 3157-3159, oct. 2004, doi: 10.1063/1.1805697.
- [117] C. Bran *et al.*, « Direct Observation of Transverse and Vortex Metastable Magnetic Domains observed in Cylindrical Nanowires », p. 15.

- [118] K. L. Metlov et K. Y. Guslienko, « Stability of magnetic vortex in soft magnetic nano-sized circular cylinder », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 242-245, p. 1015-1017, avr. 2002, doi: 10.1016/S0304-8853(01)01360-9.
- [119] L. G. Vivas, J. Escrig, D. G. Trabada, G. A. Badini-Confalonieri, et M. Vázquez, « Magnetic anisotropy in ordered textured Co nanowires », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 100, n° 25, p. 252405, juin 2012, doi: 10.1063/1.4729782.
- [120] Y. Henry, K. Ounadjela, L. Piraux, S. Dubois, J.-M. George, et J.-L. Duvail, « Magnetic anisotropy and domain patterns in electrodeposited cobalt nanowires », *Eur. Phys. J. B*, vol. 20, n° 1, p. 35-54, mars 2001, doi: 10.1007/s100510170283.
- [121] Y. P. Ivanov, A. Chuvilin, S. Lopatin, et J. Kosel, « Modulated Magnetic Nanowires for Controlling Domain Wall Motion: Toward 3D Magnetic Memories », *ACS Nano*, vol. 10, n° 5, p. 5326-5332, mai 2016, doi: 10.1021/acsnano.6b01337.
- [122] Y. P. Ivanov, L. G. Vivas, A. Asenjo, A. Chuvilin, O. Chubykalo-fesenko, et M. Vázquez, « Magnetic structure of a single-crystal hcp electrodeposited cobalt nanowire », *EPL*, vol. 102, n° 1, p. 17009, avr. 2013, doi: 10.1209/0295-5075/102/17009.
- [123] M. Almasi Kashi, A. Ramazani, F. A. Najafabadi, et Z. Heydari, « Controlled Cu content of electrodeposited CoCu nanowires through pulse features and investigations of microstructures and magnetic properties », *Applied Surface Science*, vol. 257, n° 22, p. 9347-9350, sept. 2011, doi: 10.1016/j.apsusc.2011.05.059.
- [124] M. Darques *et al.*, « Controlled growth of CoCu nanowires and application to multilayered CoCu/Cu nanowires with selected anisotropy », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 39, n° 23, p. 5025-5032, déc. 2006, doi: 10.1088/0022-3727/39/23/019.
- [125] J. Verbeeck, D. Van Dyck, et G. Van Tendeloo, « Energy-filtered transmission electron microscopy: an overview », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 59, n° 10, p. 1529-1534, oct. 2004, doi: 10.1016/j.sab.2004.03.020.
- [126] N. Biziere, D. Reyes, T. L. Wade, B. Warot-Fonrose, et C. Gatel, « Multi magnetic states in Co/Cu multilayered cylindrical nanowires studied by combination of off-axis electron holography imaging and micromagnetic simulations », *Journal of Applied Physics*, vol. 126, n° 16, p. 163906, oct. 2019, doi: 10.1063/1.5124620.
- [127] D. Reyes, N. Biziere, B. Warot-Fonrose, T. Wade, et C. Gatel, « Magnetic Configurations in Co/Cu Multilayered Nanowires: Evidence of Structural and Magnetic Interplay », *Nano Lett.*, vol. 16, n° 2, p. 1230-1236, févr. 2016, doi: 10.1021/acs.nanolett.5b04553.
- [128] D. Wolf *et al.*, « Holographic vector field electron tomography of three-dimensional nanomagnets », *Communications Physics*, vol. 2, n° 1, Art. n° 1, juill. 2019, doi: 10.1038/s42005-019-0187-8.
- [129] H. Wu, P. Kratzer, et M. Scheffler, « First-principles study of thin magnetic transition-metal silicide films on Si(001) », *Phys. Rev. B*, vol. 72, n° 14, p. 144425, oct. 2005, doi: 10.1103/PhysRevB.72.144425.
- [130] A. Rajanikanth, Y. K. Takahashi, et K. Hono, « Spin polarization of Co<sub>2</sub>MnGe and Co<sub>2</sub>MnSi thin films with A2 and L21 structures », *Journal of Applied Physics*, vol. 101, n° 2, p. 023901, janv. 2007, doi: 10.1063/1.2409775.
- [131] F. Yang *et al.*, « The microstructure and magnetic properties of Co<sub>2</sub>MnSi thin films deposited on Si substrate », *Journal of Alloys and Compounds*, vol. 723, p. 188-191, nov. 2017, doi: 10.1016/j.jallcom.2017.06.232.
- [132] G. Grigaliūnaitė-Vonševičienė, B. Vengalis, A. Maneikis, et R. Juškėnas, « Magnetic and electrical properties of postannealed Co<sub>2</sub>MnSi Heusler alloy films », *Appl Nanosci*, vol. 10, n° 7, p. 2229-2237, juill. 2020, doi: 10.1007/s13204-020-01426-7.

- [133] M. Fallot, « Les alliages du fer avec les métaux de la famille du platine », *Ann. Phys.*, vol. 11, n° 10, p. 291-332, 1938, doi: 10.1051/anphys/193811100291.
- [134] M. R. Ibarra et P. A. Algarabel, « Giant volume magnetostriction in the FeRh alloy », *Phys. Rev. B*, vol. 50, n° 6, p. 4196-4199, août 1994, doi: 10.1103/PhysRevB.50.4196.
- [135] R. O. Cherifi *et al.*, « Electric-field control of magnetic order above room temperature », *Nat Mater*, vol. 13, n° 4, p. 345-351, avr. 2014, doi: 10.1038/nmat3870.
- [136] G. Ju *et al.*, « Ultrafast Generation of Ferromagnetic Order via a Laser-Induced Phase Transformation in FeRh Thin Films », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 93, n° 19, p. 197403, nov. 2004, doi: 10.1103/PhysRevLett.93.197403.
- [137] X. Marti *et al.*, « Room-temperature antiferromagnetic memory resistor », *Nat Mater*, vol. 13, n° 4, p. 367-374, avr. 2014, doi: 10.1038/nmat3861.
- [138] Y. Liu, L. C. Phillips, R. Mattana, M. Bibes, A. Barthélémy, et B. Dkhil, « Large reversible caloric effect in FeRh thin films via a dual-stimulus multicaloric cycle », *Nature Communications*, vol. 7, n° 1, Art. n° 1, mai 2016, doi: 10.1038/ncomms11614.
- [139] C. Gatel *et al.*, « Inhomogeneous spatial distribution of the magnetic transition in an iron-rhodium thin film », *Nature Communications*, vol. 8, n° 1, Art. n° 1, juin 2017, doi: 10.1038/ncomms15703.
- [140] A. D. Kent et D. C. Worledge, « A new spin on magnetic memories », *Nature Nanotechnology*, vol. 10, n° 3, Art. n° 3, mars 2015, doi: 10.1038/nnano.2015.24.
- [141] M. Romera *et al.*, « Vowel recognition with four coupled spin-torque nano-oscillators », *Nature*, vol. 563, n° 7730, Art. n° 7730, nov. 2018, doi: 10.1038/s41586-018-0632-y.
- [142] N. Locatelli, V. Cros, et J. Grollier, « Spin-torque building blocks », *Nature Materials*, vol. 13, n° 1, Art. n° 1, janv. 2014, doi: 10.1038/nmat3823.
- [143] A. V. Chumak, V. I. Vasyuchka, A. A. Serga, et B. Hillebrands, « Magnon spintronics », *Nature Physics*, vol. 11, n° 6, Art. n° 6, juin 2015, doi: 10.1038/nphys3347.
- [144] B. Lenk, H. Ulrichs, F. Garbs, et M. Münzenberg, « The building blocks of magnonics », *Physics Reports*, vol. 507, n° 4-5, p. 107-136, oct. 2011, doi: 10.1016/j.physrep.2011.06.003.
- [145] K.-S. Lee et S.-K. Kim, « Conceptual design of spin wave logic gates based on a Mach–Zehnder-type spin wave interferometer for universal logic functions », *Journal of Applied Physics*, vol. 104, n° 5, p. 053909, sept. 2008, doi: 10.1063/1.2975235.
- [146] M. Collet *et al.*, « Generation of coherent spin-wave modes in yttrium iron garnet microdiscs by spin–orbit torque », *Nature Communications*, vol. 7, n° 1, Art. n° 1, janv. 2016, doi: 10.1038/ncomms10377.
- [147] A. A. Serga, A. V. Chumak, et B. Hillebrands, « YIG magnonics », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 43, n° 26, p. 264002, juin 2010, doi: 10.1088/0022-3727/43/26/264002.
- [148] C. G. Sykes, J. D. Adam, et J. H. Collins, « Magnetostatic wave propagation in a periodic structure », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 29, n° 6, p. 388-391, sept. 1976, doi: 10.1063/1.89098.
- [149] M. Krawczyk et D. Grundler, « Review and prospects of magnonic crystals and devices with reprogrammable band structure », *J. Phys.: Condens. Matter*, vol. 26, n° 12, p. 123202, mars 2014, doi: 10.1088/0953-8984/26/12/123202.
- [150] A. V. Chumak, A. A. Serga, et B. Hillebrands, « Magnonic crystals for data processing », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 50, n° 24, p. 244001, mai 2017, doi: 10.1088/1361-6463/aa6a65.
- [151] IRDS, « International Roadmap for devices and systems ». 2017, [En ligne]. Disponible sur: [https://irds.ieee.org/images/files/pdf/2017/2017IRDS\\_BC.pdf](https://irds.ieee.org/images/files/pdf/2017/2017IRDS_BC.pdf).
- [152] S. Emori *et al.*, « Spin-orbit torque and spin pumping in YIG/Pt with interfacial insertion layers », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 112, n° 18, p. 182406, avr. 2018, doi: 10.1063/1.5025623.

- [153]N. Biziere et C. Fermon, « dc effect in a single micrometric spin valve sensor under ferromagnetic resonance », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 92, n° 9, p. 092503, mars 2008, doi: 10.1063/1.2885088.
- [154]Q. Wang *et al.*, « Design of nanostrip magnonic crystal waveguides with a single magnonic band gap », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 340, p. 23-26, août 2013, doi: 10.1016/j.jmmm.2013.03.017.
- [155]N. O. Urs *et al.*, « Advanced magneto-optical microscopy: Imaging from picoseconds to centimeters - imaging spin waves and temperature distributions (invited) », *AIP Advances*, vol. 6, n° 5, p. 055605, mars 2016, doi: 10.1063/1.4943760.
- [156]F. Busse, M. Mansurova, B. Lenk, M. von der Ehe, et M. Münzenberg, « A scenario for magnonic spin-wave traps », *Scientific Reports*, vol. 5, n° 1, Art. n° 1, août 2015, doi: 10.1038/srep12824.
- [157]J. Jorzick *et al.*, « Spin Wave Wells in Nonellipsoidal Micrometer Size Magnetic Elements », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 88, n° 4, p. 047204, janv. 2002, doi: 10.1103/PhysRevLett.88.047204.
- [158]C. Bayer *et al.*, « Spin-Wave Excitations in Finite Rectangular Elements », in *Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures III*, B. Hillebrands et A. Thiaville, Éd. Berlin, Heidelberg: Springer, 2006, p. 57-103.
- [159]T. Sebastian, K. Schultheiss, B. Obry, B. Hillebrands, et H. Schultheiss, « Micro-focused Brillouin light scattering: imaging spin waves at the nanoscale », *Front. Phys.*, vol. 3, 2015, doi: 10.3389/fphy.2015.00035.
- [160]V. E. Demidov *et al.*, « Direct observation of dynamic modes excited in a magnetic insulator by pure spin current », *Scientific Reports*, vol. 6, n° 1, Art. n° 1, sept. 2016, doi: 10.1038/srep32781.
- [161]O. Klein *et al.*, « Ferromagnetic resonance force spectroscopy of individual submicron-size samples », *Phys. Rev. B*, vol. 78, n° 14, p. 144410, oct. 2008, doi: 10.1103/PhysRevB.78.144410.
- [162]F. Guo, L. M. Belova, et R. D. McMichael, « Spectroscopy and Imaging of Edge Modes in Permalloy Nanodisks », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 110, n° 1, p. 017601, janv. 2013, doi: 10.1103/PhysRevLett.110.017601.
- [163]S. Bonetti *et al.*, « Direct observation and imaging of a spin-wave soliton with p-like symmetry », *Nature Communications*, vol. 6, n° 1, Art. n° 1, nov. 2015, doi: 10.1038/ncomms9889.
- [164]V. Sluka *et al.*, « Emission and propagation of 1D and 2D spin waves with nanoscale wavelengths in anisotropic spin textures », *Nature Nanotechnology*, vol. 14, n° 4, Art. n° 4, avr. 2019, doi: 10.1038/s41565-019-0383-4.
- [165]C. Gatel, J. Dupuy, F. Houdellier, et M. J. Hÿtch, « Unlimited acquisition time in electron holography by automated feedback control of transmission electron microscope », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 113, n° 13, p. 133102, sept. 2018, doi: 10.1063/1.5050906.



# LISTE DE PUBLICATIONS ET DE CONFERENCES

## BREVETS

---

- ***“A METHOD AND APPARATUS FOR MAGNETIC FIELD MEASUREMENTS USING A MAGNETORESISTIVE SENSOR”***, International Application N° PCT/EP2005/055304, N. Biziere, M. Pannetier-Lecoœur, C.Fermon.
- ***“METHOD AND DEVICE FOR NON DESTRUCTIVE EVALUATION OF DEFECTS IN A METALLIC OBJECT”***, International Application N° PCT/EP2006/002599, C.Fermon, M.Pannetier, N.Biziere, T.Sollier, F.Vacher.

## PUBLICATION DANS DES REVUES INTERNATIONALES AVEC COMITE DE LECTURE :

---

- ***Multi magnetic states in Co/Cu multilayered cylindrical nanowires studied by combination of off-axis electron holography imaging and micromagnetic simulations***. N. Biziere, D. Reyes, T. L. Wade, B. Warot-Fonrose and C. Gatel., J. Appl. Phys. 126, 163906, 2019.
- ***Holographic Vector Field Electron Tomography of Three-Dimensional Nanomagnets***, Daniel Wolf, Nicolas Biziere, Sebastian Sturm, David Reyes, Travis Wade, Tore Niermann, Jonas Krehl, Bénédicte Warot-Fonrose, Bernd Büchner, Etienne Snoeck, Christophe Gatel, and Axel Lubk, Communications Physics, 2, 87, 2019.
- ***Inhomogeneous spatial distribution of the magnetic transition in an iron-rhodium thin film***, C. Gatel, B. Warot-Fonrose, N. Biziere, L.A. Rodriguez, D. Reyes, R. Cours, M. Castiella & M.J. Casanove, Nature Communications, 8, 15703, 2017.
- ***First-principles calculation of the effects of partial alloy disorder on the static and dynamic magnetic properties of Co<sub>2</sub>MnSi***. B. Pradines, R. Arras, I. Abdallah, N. Biziere, and L. Calmels, Physical Review B. 95, 094425, 2017.
- ***Evolution of magnetic properties and damping coefficient of Co<sub>2</sub>MnSi Heusler alloy with Mn/Si and Co/Mn atomic disorder***. I. Abdallah, B. Pradines, N. Ratel-Ramond, G. BenAssayag, R. Arras, L. Calmels, J.F. Bobo, E. Snoeck and N. Biziere, Journal of physics D, 50, 035003, 2017.
- ***Structural and magnetic properties of He<sup>+</sup> irradiated Co<sub>2</sub>MnSi Heusler alloys***. I. Abdallah, N. Ratel-Ramond, CMagen, B. Pecassou, R. Cours, A.Arnoult, M. Respaud, J.F Bobo, G. BenAssayag, E. Snoeck and N. Biziere, Material Research Express 3, 046101, 2016.
- ***Magnetic Configurations in Co/Cu Multilayered Nanowires: Evidence of Structural and Magnetic Interplay***. D. Reyes, N. Biziere, B. Warot-Fonrose, T. Wade, and C. Gatel., Nanoletters 16, 1230, 2016.
- ***Magnetic nanoconstrictions made from nickel electrodeposition in polymeric bi-conical tracks: Magneto-transport behavior***, M-C Clochard, M El Jouad, N Biziere, Pham Do, H-J Drouhin, Emmanuel Balanzat, D Lairez, M Viret, J-E Wegrowe, Radiation Physics and Chemistry 94, 66, 2014.
- ***Strain-induced inverse magnetostriction measured on a single contacted Ni nanowire in a polymer matrix***. Do-Ch Pham, N Biziere, G Melilli, R Pajon, D Lacour, L Bouvot, M Tabellout, D Lairez, H-J Drouhin, M-C Clochard and J-E Wegrowe, Materials Research Express 1, 045017, 2014.
- ***Spin transport in benzofurane bithiophene based organic spin valves***. M. Palosse, I Seguy, E. Bedel-Pereira, C. Villeneuve-Faure, C. Mallet, P.Frere, B. Warot-Fonrose, N. Biziere, J.F. Bobo, AIP Advances 4, 017117, 2014.



- **Imaging the Fine Structure of a Magnetic Domain Wall in a Ni Nanocylinder.** N. Biziere, C. Gatel, R. Lassalle-Balier, M-C. Clochard, J.E. Wegrowe, E. Snoeck, NanoLetters, 13, 2053, 2013.
- **Magneto-resistance in magnetic nanoconstrictions: The role of structural defects.** N. Biziere, M.-C. Clochard, Pham Do Chung, J.-E. Wegrowe, M. Viret, Journal of Applied Physics, 113, 173910, 2013.
- **Broadband Ferromagnetic Resonance Study of Co<sub>2</sub>MnSi Thin Films: Effect of the Film Thickness,** G. Ortiz, A. Garcia, J. BenYoussef, N. Biziere, F. Boust, J.-F. Bobo, E. Snoeck, and N. Vukadinovic, IEEE TRANSACTIONS ON MAGNETICS, 49, 3, 2013.
- **Growth, structural, and magnetic characterization of epitaxial Co<sub>2</sub>MnSi films deposited on MgO and Cr seed layers,** G. Ortiz, A. Garcia, N. Biziere, F. Boust, J. F. Bobo, E. Snoeck, Journal of Applied Physics, 113, 043921, 2013.
- **Synthesis and magnetic reversal of bi-conical Ni nanostructures,** N. Biziere, R. Lassalle Ballier, M. C. Clochard, M. Viret, T. L. Wade, E. Balanzat, J. E. Wegrowe, Journal of Applied Physics, 110, 063906, 2011.
- **Switching field modulation by microwave spin torque,** N. Biziere, E. Murè, J-Ph. Ansermet, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 322, 3320, 2010.
- **Microwave spin torque excitation in template synthesized nanomagnet,** N. Biziere, E. Murè, J-Ph. Ansermet, Physical Review B Brief Report., 79, 012404, 2009.
- **High-frequency giant magneto-resistance measurement to study the dynamics of a micron-scale spin-valve sensor,** N. Biziere and C. Fermon, Physical Review B., 78, 064408, 2008.
- **DC effect in a single micrometric spin valve sensor under ferromagnetic resonance,** N. Biziere and C. Fermon, Applied Physics Letters, 92, 092503, 2008.
- **High efficiency Brillouin light scattering by spin waves in a Permalloy film under microwave resonance pumping,** Stashkevich A., Djemia P., Fetisov Y.K., Biziere N., Fermon C., Journal of Applied Physics, 102, 103905, 2007.
- **RF Response of Superconducting-GMR Mixed Sensors, Application to NQR,** Pannetier-Lecoeur, M., Fermon, C., Biziere N., Scola, J., Walliang, A.L., IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 17, 598, 2007.
- **Optimised GMR sensors for low and high frequencies applications,** C. Fermon, M. Pannetier-Lecoeur, N. Biziere, B. Cousin, Sensors and Actuators A, 129, 203-206, 2006.
- **Preparation of Nd-Fe-B magnets by screen printing,** A. Speliotis, D. Niarchos, P. Falaras, D. Tsoukleris, J. Pepirri, P. Meneroud, G. Magnac, F. Claeysen, C. Fermon, M. Pannetier, N. Biziere, Journal of Iron and Steel Research, International, 13, 405, 2006.

PUBLICATION DANS DES ARTICLES DE CONFERENCES AVEC COMITE DE LECTURE:

---

- **Magnetic nanoconstrictions made from nickel electrodeposition in polymeric bi-conical tracks: Magneto-transport behavior.** M-C. Clochard, M. El Jouad, N. Biziere, Pham Do Chung, H-J. Drouhin, E. Balanzat, D. Lairez, M. Viret, J-E. Wegrowe, Radiation Physics and Chemistry, 94, 66, 2014. Proceedings of IRaP 2012.
- **Current-driven, electrically-detected ferromagnetic resonance in electrodeposited spin valves,** N. Biziere, E. Murè, J-Ph. Ansermet, Journal of Magnetism and Magnetic Material, 322, 1357, 2010. Proceedings of the IV Joint European Magnetic Symposia 2008.
- **Lithography-free study of Spin Torque,** E. Murè, N. Biziere, J-Ph. Ansermet, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 322, 1443, 2010. Proceedings of the IV Joint European Magnetic Symposia 2008.

- *Hyper frequency behavior of the GMR effect in a single spin valve sensor*, N. Biziere, C. Fermon, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 316, 340, 2007. Proceedings of the III Joint European Magnetic Symposia.
- *Micro-motor with screen-printed rotor magnet*, Thanassis Speliotis, Dimitris Niarchos, Patrick Meneroud, G. Magnac, Franck Claeysen, John Pepin, Claude Fermon, Myriam Pannetier and Nicolas Biziere, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 316, e120, 2007. Proceedings of the Joint European Magnetic Symposia 2006.
- **Correlations between dynamic and transport properties in a single spin valve sensor**, N. Biziere, C. Fermon, IEEE International Magnetics Conference (INTERMAG), 2006.

## CONTRIBUTIONS ORALES.

---

Conférences, Workshops internationaux : **2 oraux invités**

Présentation orale (premier auteur = orateur)

- **(invite)** *Micromagnetic study of magnetic states in Co/Cu multilayered cylinders observed by electron holography*, **N. Biziere**, D. Reyes, T. Wade, B. Warot-Fonrose, C. Gatel, M<sup>2</sup>OZART Workshop on Nanomagnetism, Zaragoza (SP), 21-22 Fevrier 2019.
- **(invite)** *Cylindrical nanowires : the role of structural properties on magnetic configurations*, **N. Biziere**, C. Gatel, D. Reyes, B. Warot-Fonrose, T. Wade, M.C. Clochard, R. Lassalle-Balier, TALEM Fall meeting 2016, 14-15 December 2016, Toulouse (FR).
- *Effect of He<sup>+</sup> ion irradiation on the structural and magnetic properties of Co<sub>2</sub>MnSi alloys*, **N. Biziere**, I. Abdallah, B. Pradines, N. Ratel-Ramond, C. Magen, R. Arras, L. Calmels, J.F. Bobo, G. BenAssayag, E. Snoeck, JEMS, 21-26 Aout 2016, Glasgow (UK).
- *Inside a FeRh layer during the ferromagnetic/antiferromagnetic transition: a quantitative study by off-axis electron holography*, C. Gatel, B. Warot-Fonrose, L-A Rodriguez, D. Reyes, **N. Biziere**, R. Cours, M-J Casanove, European Microscopy Congress 2016 – 29 august-2 september 2016, Lyon (Fr).
- *Remnant states and magnetic coupling in Co/Cu multilayered nanowires observed by electron holography*, D. Reyes, L-A Rodríguez, B. Warot-Fonrose, **N. Biziere**, T. Wade, C. Gatel, European Microscopy Congress 2016 – 29 august-2 september 2016, Lyon (Fr).
- *Electron holography of magnetic states in cylindrical Co/Cu multilayered nanowires*, **N. Biziere**, D. Reyes, T. Wade, B. Warot-Fonrose, C. Gatel, International Conference on magnetism (ICM), 5-10 Juillet 2015, Barcelone (SP).
- *Magnetic states related to the chemical composition in Co/Cu cylindrical multilayers*, **N. Biziere**, D. Reyes, B. Warot-Fonrose, T. Wade and C. Gatel, EMRS spring meeting, Lille, 11-15 Mai 2015 (FR).
- *Magnetic states in Co/Cu multi-layered nano-wires observed by electron holography*, D. Reyes, C. Gatel, **N. Biziere**, T. Wade, B. Warot-Fonrose, EMAG 2015, 26-30 juin, 2015, Manchester (UK).
- *Internal magnetic structure of Ni nanowire and Fe nanocubes by electron holography*, C. Gatel, **N. Biziere**, R. Lassalle-Balier, E. Snoeck, M.-C. Clochard, J.-E. Wegrowe, T. Blon, A. Meffre and L.-M. Lacroix., MRS Spring, San Francisco (USA), 2014.
- *Electron Holography and Micromagnetic Simulations of a Domain wall in a Ni nanocylinder*, **N. Biziere**, C. Gatel, R. Lassalle-Balier, M-C. Clochard, J.E. Wegrowe, E. Snoeck., Joint European Magnetic Symposia (JEMS) 2012, Parme (IT).

- ***Quantitative electron holography and in-situ experiments***, C. Gatel, L. de Knoop, A. Lubk, G. Pozzi, A. Masseboeuf, **N. Biziere**, M.J. Hÿtch and E. Snoeck., Inauguration TITAN Ultimate, Grenoble, 2012.
- ***Bi-conical Ni nanostructures by template synthesis in track-etched membranes: an original tool for spintronics*** M-C. Clochard, **N. Biziere**, R. Lassalle Ballier, H-J. Drouhin, E. Balanzat, D. Lairez, M. Viret, J-E. Wegrowe., 10<sup>th</sup> meeting of the Ionizing Radiation and Polymers symposium (IRaP), Cracovie (Pologne, 2012).
- ***Current-driven, electrically-detected ferromagnetic resonance in electrodeposited spin valves***, **N. Biziere**, E. Murè, J.Ph. Ansermet, IV Joint European Magnetics Symposia, Dublin (IR), 2008.
- ***Electrically detected ferromagnetic resonance in electrodeposited spin valves under AC excitation***, E. Murè, **N. Biziere**, J.Ph. Ansermet, International Magnetics Conference (INTERMAG 2008), Madrid (SP), 2008.
- ***Correlations between dynamic and transport properties in a single spin valve sensor***, **N. Biziere**, C. Fermon, International Magnetics Conference (INTERMAG 2006), San Diego (USA), 2006.
- ***Correlations between GMR effect and spin waves excitations in a single spin valve sensor***, **N. Biziere**, C. Fermon, III Joint European Magnetics Symposia, San Sebastian (SP), 2006.

Conférences, Workshop Nationales : **1 oral invité**

- ***(invite) Influence de la structure des matériaux pour les applications en spintronique et magnonique***, **N. Biziere**, Journées Thématiques « Capteurs Magnétiques & Electromagnétiques (EM) et Applications » GDR Ondes CNRS 2451, GT3-Capteurs, Inversion & Imagerie, 31 Mai – 01 Juin 2018, Grenoble.
- ***Growth and characterization of Cu/Co multi-layered nanowires***, D. Reyes, **N. Biziere**, C. Gatel, T. L. Wade, B. Warot-Fonrose, Colloque Néel 2014, Autrans.
- ***Détection électrique de la résonance ferromagnétique dans une vanne de spin électrodéposée excitée par un courant AC***, **N. Biziere**, E. Murè, J.Ph. Ansermet, Colloque Louis Néel 2008, La grande Motte.

Symposium Européen :

- ***Local measurement of spin dynamics***, **N. Biziere**, C. Fermon, Mid term meeting of European contract “Dynamics”, 2005, Grenoble (FR).

Symposium National :

- ***Local measurement of spin dynamic in magnetic multilayers***, **N. Biziere**, C. Fermon, ACI Nanodyne, 2005, Paris.

## CONTRIBUTIONS POSTERS.

Conférences Nationales et Internationales :

- Micromagnetism of Co/Cu multi-layered cylinders observed by electron holography, **Nicolas Biziere**, David Reyes, Bénédicte Warot Fonrose, Christophe Gatel, Daniel Wolf, Sebastian Sturm and Axel Lubk, JEMS 2019, UPSALLA (SW). **ANNULE pour raisons familiales**
- ***Evolution of magnetic properties and damping coefficient of Co<sub>2</sub>MnSi Heusler alloy with Mn/Si and Co/Mn atomic disorder***, **N. Biziere**, I. Abdallah, N. Ratel-Ramond, C. Magen, B. Pecassou, R. Cours, A. Arnoult, M. Respaud, J. F. Bobo, G. BenAssayag, E. Snoeck, INTERMAG 2017, Dublin (IR). **ANNULE pour raisons familiales.**

- **Structure and spin dynamics of irradiated Co<sub>2</sub>MnSi Heusler alloys by He<sup>+</sup> ions**, I. ABDALLAH, **N. BIZIERE**, B. PECASSOU, G. BENASSAYAG, J.F. BOBO and E. SNOECK, International Conference on magnetism (ICM), 2015, Barcelone (SP).
- *Holographie électronique de parois magnétiques dans des nano-cylindres de Nickel*, **N. Biziere**, C. Gatel, R. Lassalle-Balier, M-C. Clochard, J.E. Wegrowe, E. Snoeck., Colloque Louis Néel 2013, Tours.
- *Etude de la largeur de raie FMR dans des alliages de Co<sub>2</sub>MnSi*, **G. Ortiz**, N. Biziere, A. García-García, J. Ben Youssef, E. Snoeck, F. Boust, J.-F. Bobo., Colloque Louis Néel 2013, Tours.
- *Synthesis and magnetism of bi-conical Ni nanowire*, **N. Biziere**, R. Lassalle Ballier, M. C. Clochard, M. Viret, T. L. Wade, E. Balanzat, J. E. Wegrowe, Colloque Louis Néel 2011, Brest.
- *Spin wave confinement in a single spin valve sensor*, **N. Biziere**, C. Fermon, Colloque Louis Néel 2005, Dourdan.
- *Lithography-free study of Spin Torque*, E. Murè, **N. Biziere**, J-Ph. Ansermet, IV Joint European Magnetism Symposia, Madrid (SP), 2008.