



HAL
open science

ELABORATION, ETUDE DES PROPRIETES STRUCTURALES ET MAGNETIQUES DE COUCHES ET RESEAUX DE PLOTS SUBMICRONIQUES A BASE DE COBALT

Michel Hehn

► **To cite this version:**

Michel Hehn. ELABORATION, ETUDE DES PROPRIETES STRUCTURALES ET MAGNETIQUES DE COUCHES ET RESEAUX DE PLOTS SUBMICRONIQUES A BASE DE COBALT. Matière Condensée [cond-mat]. Université Louis Pasteur - Strasbourg I, 1997. Français. NNT : . tel-00002760

HAL Id: tel-00002760

<https://theses.hal.science/tel-00002760>

Submitted on 24 Apr 2003

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.

THESE

présentée pour l'obtention du titre de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE LOUIS PASTEUR DE STRASBOURG

(Domaine : Physique de la matière condensée)

par

MICHEL HEHN

***ELABORATION, ETUDE DES PROPRIETES STRUCTURALES ET
MAGNETIQUES DE COUCHES ET RESEAUX DE PLOTS
SUBMICRONIQUES A BASE DE COBALT***

Soutenue le 24 Janvier 1997 devant la commission d'examen :

MM.	H. van den Berg	Invité
	C. Chappert	Invité
	J. Ferré	Rapporteur externe
	F. Gautier	Rapporteur interne
	J. Miltat	Rapporteur externe
	K. Ounadjela	Directeur de thèse
Mme	F. Rousseaux	Examinatrice

A mes parents,
A Alain, Valérie, Coline et Lison

*« La Recherche, c'est comme une boîte de chocolats, on ne
sait jamais sur quoi on va tomber ! »
Adapté de Forrest Gump*

REMERCIEMENTS

OUF !!!! Me voici au terme de la rédaction de cette thèse et vous voici, pauvres malheureux, au début de sa lecture !.... Ces quelques lignes constituent, comme de coutume, les remerciements de la thèse. Pour la majorité des lecteurs, elles représentent la seule partie de la thèse qu'ils vont lire et pour les plus téméraires, elles permettent de faire une douce transition entre la lecture de *Gala* ou de *L'équipe* et le coeur des problèmes qui ont hantés mes nuits durant ces deux années de thèse passées au sein de l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg.

Dans l'ordre chronologique d'apparition dans ma thèse et plus généralement dans ma vie, je voudrai remercier

Jacqueline et Jean, mes parents

Je dirai simplement et en quelques mots que *tout a débuté grâce à eux, tout s'est développé grâce à leurs efforts, tout s'est épanoui à côté d'eux et tout a abouti pour eux...*ma contribution est bien maigre par rapport à la leur et j'espère qu'un jour mes enfants pourront être aussi fier de moi que je le suis d'eux.

Alain, mon Grand Frère, Valérie, ma belle soeur et Coline, ma filleule

Que serais-je devenu sans mon Grand Frère qui m'a si souvent ouvert la voie dans bien des domaines, qui a toujours su trouver les mots qu'il fallait au moment qu'il fallait, sans Valérie la soeur que je n'ai jamais eu et que j'aurai même dû être (!!!) et sans Coline qui, par sa présence, ma redonné un peu d'espoir alors que tout s'était effondré ?

Mes professeurs

Finalement, c'est également un peu grâce à eux que je suis devenu ce que je suis. Ce sont eux qui m'ont donné foi en la science et qui m'ont montré combien elle pouvait être belle si l'on se posait les bonnes questions. Je pense tout particulièrement à **J.-P. Peyrade** et **A. R. Fert** chez qui j'ai fait mes premiers pas d'expérimentateur et **S. Askénazy** pour qui j'ai un profond respect et une grande admiration.

F. Gautier et K. Ounadjela

N'avez-vous jamais rêvé d'explorer des terres inconnues, de trouver la solution d'une énigme excitante,.....Moi oui ! J'en ai rêvé et F. Gautier et K. Ounadjela l'ont fait.....en m'accueillant respectivement dans leur Institut et Groupe de recherche. Qu'ils soient ici remerciés pour l'intérêt qu'ils ont portés au projet de recherche et à son suivi au cours de ces deux années d'exploration. Merci de m'avoir fait *vivre* au rythme de la recherche, de ses joies et de ses peines. Cela n'a pas toujours été facile mais le jeu en a valu la chandelle !

Comme vous pourrez le constater, cette thèse est le résultat du travail commun d'un ensemble d'équipes françaises rassemblées dans le cadre du Groupement De Recherche *Nanostructure Magnétique*. J'ai choisi de leur rendre hommage en suivant le plan de la thèse et en commençant par la croissance des couches de cobalt et l'étude de leur structure.

J. Arabski et M. Acosta qui ont partagé leur science de la MBE, du dépôt sous ultraviolet, les millions de tours de clefs de 13. Je n'oublierai jamais les discussions que nous avons eu tout au long de ces dépôts et les rendez-vous nocturnes pour s'occuper de la Belle.

Y. Henry, pape du RHEED, qui a su me donner les bases de l'interprétation des diagrammes mais surtout le courage de la commencer cette thèse.

K. Chérifi-Khodjaoui, M. Maret et V. Pierron-Bohnes qui, par leur science de la diffraction de rayons X, ont permis de montrer aux incrédules que la structure du cobalt était hexagonale compacte.

V. Da Costa, C. Arnault et J.-P. Bucher qui m'ont formés à la science de la microscopie en champ proche, qu'elle soit atomique ou magnétique

Puis, il a fallu réaliser les réseaux de plots à partir des couches de cobalt à coup de rayons X et burin microscopique....

D. Decanini, F. Rousseaux et H. Launois qui m'ont permis de profiter du développement de la ligne de lithographie X du L2M au LURE. Je les remercie de la patience qu'elles ont manifesté à mon égard ainsi qu'à l'intérêt pour mes travaux.

L'équipe MMS de l'IEF pour son très chaleureux accueil malgré une réputation usurpée qui a précédé mon arrivée lors de mon stage de DEA (je le répète, ai-je vraiment une tête de doryphore ?) et plus particulièrement **N. Bardou, B. Bartenlian et C. Chappert** qui m'ont fait partager leur expérience de la gravure ionique.

Je crois que cette thèse perdrait de son charme si nous n'avions pas pu visualiser ces magnifiques structures en domaines. C'est pourquoi je remercie vivement **S. Padovani**, initiateur de la technique du MFM au laboratoire, pour m'avoir formé à la technique et **J.-P. Bucher** pour avoir suivi et supporté ce travail dès son commencement.

Pour finir, il a fallu étudier les propriétés magnétiques de ces deux systèmes. Pour cela, j'ai quelque fois eu recours aux spécialistes du froid, **R. Poinot et A. Herr**, pour les mesures au SQUID à basses températures, à mes *esclaves* de DEA, **M. Demand et W. Grange**, qui sont depuis devenus des amis et thésards dans le même bureau et celui d'à côté (bonne chance les gars....), aux lumières des Kerrmen, **E. Beaurepaire et G. Garreau** (Léééooooooooon !!!), aux spécialistes de la mesure de couple, **H. Danan et Y. Henry** et aux électrons de **W. Allen et J. Gregg**. La compréhension du magnétisme des couches et plots cobalt n'a pas été une mince affaire. Elle doit beaucoup à **R. Allenspach et H. van den Berg** qui ont été les premiers à m'aiguiller sur le bon chemin, à me donner les bonnes références de travail. A partir de là, les discussions successives avec **P. Panissod, J. Ferré et J. Miltat** m'ont permis de proposer les premières ébauches d'explication *avec les mains* du comportement magnétique des couches et des plots.

C'est alors que **R. Ferré** est arrivé au laboratoire, comme une cerise sur un gâteau. En empilant ses petits cubes et en améliorant continuellement son code dont il a le secret, il est parvenu à reproduire les images MFM mesurées expérimentalement donnant ainsi une base solide à leurs interprétations. Grâce à lui, je pense que cette thèse a pu prendre une dimension supplémentaire, celle de l'accord quasi parfait entre la simulation et l'expérience.

En avant première, **P. Panissod** s'est chargé d'une lecture critique du manuscrit. Ses commentaires ont toujours donné lieu à des discussions très intéressantes et ont permis

d'améliorer grandement la compréhension du sujet. Qu'il soit remercié de son intérêt pour mon travail par ces quelques lignes.

Et puis, nous avons trouvé un jury pour apprécier ce travail. Je tiens à remercier **J. Ferré, F. Gautier et J. Miltat** d'avoir bien voulu accepter de juger cette thèse, **F. Rousseaux et H. van den Berg** d'avoir bien voulu faire partie de son jury et **C. Chappert** d'avoir eu la gentillesse de se joindre au jury en temps qu'invité.

Je ne voudrai pas oublier tous les « thésards » et permanents avec lesquels j'ai fait un bout de chemin. Mes pensées vont en particulier à **l'Equipe de Nuit** dont les membres sauront se reconnaître et à **Dâââny** pour sa confiance et nos discussions extraterrestres....

J'ai aussi compris, après une année de thèse, qu'il y avait une vie après le labo et c'est grâce à **Pascal, Alain S., Laure et Gilles, Alex et Nico** que j'ai pu la découvrir. Ils ont toujours été là dans les moments les plus difficiles. Que cette petite pensée soit le témoignage de mon amitié à leur égard.

L'ensemble des résultats, qui sont présentés dans ce manuscrit, a pu être obtenu grâce à l'aide du CNRS qui m'a attribué une Bourse de Docteur Ingénieur sur le thème des systèmes magnétiques de dimensions latérales réduites.

SOMMAIRE

CHAPITRE I

Introduction

	1
<i>Références chapitre I</i>	7

CHAPITRE II

Croissance et caractérisation structurale des couches de cobalt

<i>A. METHODES EXPERIMENTALES D'ELABORATION ET DE CARACTERISATION DES COUCHES DE COBALT</i>	11
1. Epitaxie par Jet Moléculaire (EJM)	11
1.1. Sas d'introduction	11
1.2. Chambre d'évaporation	13
1.3. Chambre d'analyse	15
2 Diffraction d'électrons rapides en incidence rasante (RHEED)	15
2.1. Description du dispositif	15
2.2. Théorie cinématique	15
2.3. Différents cas rencontrés	19
2.4. Interprétation des diagrammes RHEED	21
3. Diffraction de rayons X	23
3.1. Réflectivité en géométrie θ - 2θ	23
3.2. Rocking curve en géométrie symétrique	24
3.3. Rocking curve en géométrie asymétrique	24
4. Microscopie à force atomique (AFM)	24
<i>B. CROISSANCE ET CARACTERISATION STRUCTURALE DES COUCHES DE COBALT</i>	25
1. Travail déjà réalisé dans le sujet	27
1.1. Nettoyage du substrat	27
1.2. Croissance de la couche tampon de ruthénium	27
1.3. Croissance de la couche de cobalt	28

2. Structure et élaboration des échantillons	28
2.1. Le substrat : un monocristal de saphir orienté $[1,1,\bar{2},0]$	28
2.1.1. Structure cristallographique du saphir	28
2.1.2. Nettoyage du substrat	29
2.2. La couche tampon de ruthénium.	32
2.2.1. Optimisation du dépôt	32
2.2.2. Analyse RHEED	32
2.2.3. Analyse aux rayons X	33
2.2.4. Couche tampon de ruthénium après optimisation des conditions de croissance	36
2.3. La couche de cobalt	37
2.2.1. Analyse RHEED	37
2.2.2. Analyse aux rayons X	39
2.2.3. Analyse de la topographie	44
Références chapitre II	45

CHAPITRE III

Fabrication des microstructures

A. METHODES EXPERIMENTALES D'ELABORATION ET DE CARACTERISATION DES PLOTS DE COBALT.	48
1. La lithographie par rayons X	48
1.1. Principe de la lithographie	48
1.1.1. L'enrésinement	48
1.1.2. L'insolation	49
1.1.3. La révélation	49
1.2. Problèmes généraux de la lithographie	51
1.2.1. L'enrésinement	51
1.2.2. L'exposition et le développement de la résine : problème de diffraction	51
1.3. Le lift-off	53
1.3.1. Le principe	53
1.4. Vers les motifs submicroniques	53
1.4.1. Le rayonnement synchrotron	54
1.4.2. Les masques pour la lithographie X	55
1.4.3. La station de lithographie X au LURE	56

1.5. Réalisation pratique	57
2. La gravure ionique sèche	59
2.1. Présentation	59
2.2. Aspect physique de la gravure	59
2.2.1. Régimes de collision	59
2.2.2. Dépendance de la vitesse de gravure avec l'angle d'incidence du faisceau d'ions	60
2.2.3. Le taux de pulvérisation est fonction de la place de l'élément dans le tableau périodique	61
2.3. Les problèmes rencontrés dus à la gravure	61
2.3.1. Atomes redéposés après éjection	61
2.3.2. Effets combinés de l'angle d'attaque et de la redéposition	62
2.3.3. Défauts induits par la gravure ionique : modification des propriétés électroniques	65
2.4. Matériel utilisé pour la gravure	65
3. Spectroscopie Auger	66
3.1. Effet Auger	66
3.2. Utilisation de l'effet Auger	67
<i>B. CARACTERISATION DES PLOTS DE COBALT.</i>	67
1. Etalonnage des vitesses de gravure	67
1.1. Vitesse de gravure de l'aluminium	68
1.2. Vitesse de gravure de la multicouche Co/Ru	70
2. Optimisation des conditions de gravure : réseaux de plots circulaires (IEF3)	71
2.1. Problème des vitesses de gravure	71
2.2. Problème des redépôts	73
2.2.1. Quel est l'origine du redépôt ?	74
2.2.2. Pourquoi le redépôt est-il asymétrique ?	77
2.2.3. Pourquoi le diamètre intérieur des plots est-il plus petit que 1µm ?	78
2.3. Solutions au problème des redépôts	79
3. Qualité des échantillons : réseaux de plots carrés (IEF5)	83
3.1. Evolution de la forme des plots en fonction de l'épaisseur	83
3.2. Evolution des dimensions des plots en fonction de l'épaisseur	88
3.3. Evolution de la structure cristalline des plots	89
4. Conclusions de ce chapitre	89
<i>Références chapitre III</i>	91

CHAPITRE IV

Mesure des propriétés magnétiques

<i>A. MESURE DU MAGNETISME MICROSCOPIQUE : LA MICROSCOPIE A FORCE MAGNETIQUE</i>	94
1. Introduction	94
2. Principe du Microscope à Force Magnétique (mfm)	95
3. Technique de mesure	97
3.1. Caractéristiques d'un microscope à force magnétique	97
3.1.1. Elément de mesure de la flexion du cantilever	97
3.1.2. Déplacement de l'échantillon	98
3.1.3. Elément de détection des champs de fuite : le système pointe + cantilever	98
3.2. Modes de fonctionnement	100
3.2.1. Détection de force	100
3.2.2. Détection de gradient de force	100
4. Théorie de la réponse MFM	106
4.1. Champs de fuite d'une structure en domaines	106
4.1.1. Média à aimantation planaire	106
4.1.2. Média à aimantation perpendiculaire	107
4.2. Dérivées secondes du champ de fuite d'une structure en domaines	109
4.2.1. Expressions mathématiques	109
4.2.2. Effet de la taille des domaines sur le profil de la dérivée seconde : cas d'une structure en domaines à aimantation perpendiculaire.	111
4.3. Interaction entre la pointe et l'échantillon	112
4.3.1. Cas général en l'absence d'influence mutuelle	112
4.3.2. Effet de la forme de la pointe sur le signal mesuré en l'absence d'influence mutuelle	113
4.3.3. Effet de l'influence mutuelle entre la pointe et l'échantillon	116
4.3.4. Cas de l'approximation du dipôle	116
<i>B. MESURE DU MAGNETISME MACROSCOPIQUE</i>	118
1. Magnétomètre a gradient de champ (AGFM)	118
2. Magnétomètre a SQUID	118
3. Le pendule de torsion	119
<i>Références chapitre IV</i>	121

CHAPITRE V

Magnétisme des couches de cobalt

<i>A. BIBLIOGRAPHIE DU COBALT : DE LA COUCHE ATOMIQUE AU MICROMETRE</i>	125
<i>B. MAGNETISME MACROSCOPIQUE DES COUCHES DE COBALT</i>	127
1. Paramètres intrinsèques du matériau	127
1.1. Variation de l'aimantation à saturation, M_s	127
1.2. Variation des constantes d'anisotropie	128
1.3. Constante d'échange	133
2. De 10 a 50 nm : transition d'une aimantation planaire a perpendiculaire	135
3. De 50 a 500 nm : structure en domaine a aimantation perpendiculaire	136
3.1. Variation de l'aimantation avec le champ appliqué perpendiculairement à la couche	136
3.1.1. Variation du champ de saturation perpendiculaire	141
3.1.2. Variation du champ de nucléation perpendiculaire	142
3.1.3. Variation de l'aimantation rémanente perpendiculaire	143
3.2. Variation de l'aimantation avec le champ appliqué parallèlement à la couche	144
3.2.1. Variation du champ de saturation planaire	146
3.2.2. Variation de l'aimantation rémanente parallèle, M_r	147
3.3. Variation de l'aimantation avec le champ appliqué en fonction de la température	149
<i>C. MAGNETISME MICROSCOPIQUE DES COUCHES DE COBALT : LA STRUCTURE EN DOMAINES</i>	153
1. Les différents états magnétiques	153
1.1. Présentation des états	153
1.2. Passage d'un état à l'autre	154
1.3. Variation de la taille des domaines avec l'épaisseur du film	157
1.4. Variation de l'énergie de paroi avec le champ magnétique	159
2. Première aimantation : instabilité des domaines	161
2.1. Expérimentation	161
2.2. Interprétations	161
3. Application d'un champ perpendiculaire in-situ : structure autour du champ coercitif	165
4. Influence de la température sur la structure en domaines	169
5. Conséquences et utilisation de la structure en domaines	170
5.1. Effets de la nanostructuration sur la distribution des domaines	171
5.2. Mise en évidence de la magnétorésistance dépendante du spin	171

5.3. Mise en évidence d'une résonance de parois	175
Références chapitre V	176

CHAPITRE VI

Magnétisme des plots de cobalt

A. MOTIVATION DE CETTE ETUDE	180
B. MAGNETISME MACROSCOPIQUE DES PLOTS DE COBALT	180
1. Paramètres intrinsèques du matériau	180
1.1. Variation de l'aimantation à saturation, M_s	180
1.2. Variation des constantes d'anisotropie	181
2. De 10 a 50 nm : transition d'une aimantation planaire a perpendiculaire	185
2.1. Plots de 10 nm d'épaisseur	185
2.2. Plots de 25 nm d'épaisseur	187
2.3. Plots de 50 nm d'épaisseur	189
3. De 50 a 200 nm : structure en domaines a aimantation perpendiculaire	191
3.1. Variation de l'aimantation avec le champ appliqué perpendiculairement à la base du plot	191
3.1.1. Variation du champ de saturation perpendiculaire	194
3.1.2. Variation du champ de nucléation perpendiculaire	197
3.1.3. Variation de l'aimantation rémanente, M_r	198
3.2. Variation de l'aimantation avec le champ appliqué parallèlement à la couche	200
3.2.1. Variation du champ de saturation planaire	201
3.2.2. Variation de l'aimantation rémanente planaire, M_r	202
3.3. Variation de l'aimantation avec le champ appliqué en fonction de la température	203
C. MAGNETISME MICROSCOPIQUE DES PLOTS DE COBALT : LA STRUCTURE EN DOMAINES	205
1. Les différents états magnétiques	205
1.1. Description des différents états magnétiques	205
1.1.1. Structures en domaines résultantes d'un champ magnétique perpendiculaire	205
1.1.2. Structures en domaines résultantes d'un champ magnétique planaire	207
1.2. Variation de la taille des domaines avec l'épaisseur des plots	211
2. Interaction magnétique entre les plots	212

D. LE RESEAU DE PLOTS DE 25 NM : UN ECHANTILLON TRES PARTICULIER	214
1. Courbe de première aimantation sur la structure vortex	214
2. Réorientation d'aimantation en fonction de la température	217
2.1. Réseau de plots de 25 nm d'épaisseur	217
2.2. Réseaux de plots de 50 et 10 nm d'épaisseur	221
<i>Références chapitre VI</i>	222

CHAPITRE VII

Conclusion générale

A. LES COUCHES DE COBALT	224
B. LES RESEAUX DE PLOTS DE COBALT	226
C. EXTENSIONS FUTURES DE CE TRAVAIL	227
<i>Références chapitre VII</i>	229

ANNEXE A

Les équations de Maxwell et l'analogie magnétostatique-électrostatique

231

ANNEXE B

Modèles micromagnétiques de domaines magnétiques

1. MODELE DE STONER-WOLHFARTH : LE MODELE DE BASE POUR UNE CONFIGURATION MONODOMAINE	234
1.1. Courbe d'aimantation avec le champ parallèle à l'axe d'anisotropie ($\varphi=0$)	235
1.2. Courbe d'aimantation avec le champ perpendiculaire à l'axe d'anisotropie ($\varphi=\pi/2$)	235
2. MODELE DE KITTEL : LE MODELE DE BASE AVEC UNE STRUCTURE EN DOMAINES	236
2.1. Modèle standard	236
2.2. Modèle tenant compte d'autres termes d'anisotropie	237
2.3. Modèle tenant compte de l'extension d'une paroi	239
2.4. Limite du modèle de Kittel	240
3. LE MODELE DE KOOY ET ENZ	240
4. LE MODELE DE THIELE	242
5. LE MODELE DE SAITO : LES « WEAK » STRIPES	245
6. LE MODELE DE MULLER : ETUDE DE LA SATURATION PLANAIRE	246
7. LE MODELE DE RHODES ET ROWLAND	248
Références annexe B	250

ANNEXE C

Les facteurs de forme pour les différentes géométries étudiées

1. THEORIE GENERALE DU CHAMP DEMAGNETISANT	252
2. CAS D'UN PLOT MONODOMAIN	253
2.1. Plot à base carrée	253
2.1.1. Composante selon l'axe du plot	254
2.1.2. Composante dans le plan de base du plot	254
2.1.3. Détermination et calcul de la fonction $\xi(\alpha, \beta)$	255
2.1.4. Calcul des facteurs de champ démagnétisant	256
2.2. Plot à base circulaire	259
2. CAS D'UNE COUCHE AVEC UNE STRUCTURE EN DOMAINES A AIMANTATION PERPENDICULAIRE	260
3. CAS D'UN PLOT AVEC UNE STRUCTURE EN DOMAINES	261
Références annexe C	262

ANNEXE D

Introduction au micromagnétisme

	263
Références annexe D	265

CHAPITRE I

Introduction

Dans la nature, il existe de nombreuses situations où la matière forme à l'équilibre thermodynamique des motifs bien définis et délimités. Ces derniers, de taille variant de quelques nanomètres à quelques centimètres, résultent de la compétition entre une force à courte portée de type attractive et une force à longue portée de type répulsive et sont caractérisés par la variation périodique d'un paramètre d'ordre [Seu 95]. La période de la modulation dépend des intensités respectives des forces mises en jeu et en général de paramètres extérieurs tels que la température, un champ magnétique ou un champ électrique. C'est ainsi que des structures en domaines sous forme de bandes ou de bulles ont été mises en évidence dans les phases smectiques des cristaux liquides [Klé 83], les monocouches de Langmuir [Seu 90], les films ferrofluides [Ros 85] ou encore les films magnétiques [Esc 80].

Dans le cas de films ferromagnétiques, les deux forces en compétition dérivent de l'énergie d'échange, qui a pour origine le principe d'exclusion de Pauli, et de l'énergie de champ démagnétisant, qui est liée à la forme du système étudié [Bro 63]. La force d'échange est une force à courte portée qui tend à aligner les moments magnétiques dans un même sens. La structure résultante est alors dite monodomaine. Cependant, dans le cas des films minces magnétiques pour lesquels l'aimantation s'oriente perpendiculairement à la surface à cause de la forte anisotropie magnétocristalline, l'énergie totale d'une structure monodomaine est très grande due à l'énergie de champ démagnétisant (force à longue portée). Pour minimiser son énergie magnétique, le système préfère alors se découper en domaines magnétiques. Dans chaque domaine, les moments magnétiques restent orientés dans le même sens qui s'inverse de domaine à domaine [Kit 46].

Les premières observations de ces phases modulées ont été réalisées par Kooy et Enz par effet Faraday sur des monocristaux d'orthoferrites [Koo 60]. Dans cette étude à la fois expérimentale et théorique, la structure en domaines a pu être visualisée et calculée en fonction du champ magnétique appliqué. C'est ainsi que l'existence de domaines sous forme de bandes ou de labyrinthe a été mise en évidence en champ nul et qu'une structure sous forme de réseau de bulles a pu être stabilisée à 3.5 kOe. Cette dernière a également été stabilisée quelques années plus tard par Bobeck [Bob 67] et Nemchik [Nem 69] en champ nul.

Cette dernière découverte a suscité un vif intérêt dans l'industrie de l'enregistrement magnétique car elle peut être appliquée au stockage d'informations. Dans ces dispositifs, l'information est stockée sous forme de bulles et, au lieu de déplacer une tête de lecture magnétique pour lire l'information archivée, les domaines sont déplacés à l'aide de gradients de champs locaux [Bob 75]. Ainsi, les dispositifs ne nécessitent plus l'utilisation de pièces mécaniques.

Cependant, avant de commercialiser un tel dispositif, des études fondamentales ont été menées sur la stabilité de ces domaines vis à vis de perturbations extérieures et de défauts du matériaux. Deux

perturbations majeures peuvent altérer une information stockée : un champ magnétique ou une température trop élevée. Lorsqu'un échantillon est placé dans un champ magnétique, sa structure en domaines est soumise à des transitions topologiques pour passer d'une structure à une autre. Des études ont été menées pour comprendre les hystérésis topologiques dans la transformation des bandes vers le labyrinthe [Mol 86] et des bandes vers les bulles [Shi 73] et pour déterminer quelle était la structure la plus stable [Tom 84]. Par la suite, ces mesures ont été rassemblées sur des diagrammes de phase en fonction du champ appliqué et de la température [Mol 87]. Ces effets topologiques ont également été étudiés lorsque la structure en domaines disparaissait totalement à l'approche de la température de Néel dans le cas de matériaux ferrimagnétiques [Szy 79, Szy 82]. L'orientation des domaines, lorsqu'il n'y a pas de perturbations extérieures, dépend également de la structure cristalline des échantillons [Kan 76] ainsi que des défauts du matériau [Koj 65]. Ces études expérimentales ont été épaulées par des calculs théoriques sur des structures en bandes [Cap 71, Coo 73] ou en bulles [Sch 71, Thi 68, Thi 70] en fonction d'un champ magnétique et des structures en bandes en fonction de la température [Sor 87]. Ces calculs ont directement été adaptés pour étudier le comportement des bulles dans des dispositifs de stockage d'informations [Thi 70a, Thi 70b].

Ainsi, des dispositifs ont pu être mis au point et sont encore actuellement utilisés. Ils sont en général mis en fonction lorsque l'utilisation de mémoires à pièces mécaniques n'est pas possible, par exemple pour des applications militaires dans les avions de combat. Le seul inconvénient des matériaux utilisés à l'époque est leur faible aimantation à saturation qui entraîne la formation de bulles de quelques micromètres de diamètre. Cette taille de domaine n'est pas compatible avec la demande toujours croissante de support de stockage à plus haute densité et donc avec la réduction de la taille d'un bit d'information. Pour diminuer cette taille, il faut trouver un matériau dont l'anisotropie magnétocristalline reste du même ordre de grandeur que celle des orthoferrites ou des grenats mais avec une aimantation à saturation beaucoup plus élevée. Des résultats publiés par Grundy et collaborateurs sur des pastilles de cobalt amincies par abrasion ionique ont montré que la taille des domaines pouvaient être réduite à 100 nm [Gru 72]. Ces résultats n'ont pas pour autant relancé le marché des mémoires à bulles principalement à cause du développement de la technologie des mémoires à semi-conducteurs.

Actuellement, des densités de stockage de l'ordre de 1 Gbits/in² sont monnaie courante dans les supports magnétiques commercialisés à aimantation planaire (figure 1.1). Cette densité devrait encore augmenter dans les années à venir pour atteindre 10 Gbits/in² comme l'a montré en laboratoire une équipe du NISC [Asw 95]. Cependant, pour des domaines de si petite dimension, l'information stockée devient très sensible à la température. En effet, étant donné que les parois oscillent autour de leur position d'équilibre, que l'amplitude des oscillations augmente avec la température et que les largeurs des domaines et des parois sont comparables, deux parois peuvent se

confondre et faire disparaître le domaine qui les séparait entraînant une perte d'information. C'est pourquoi, une solution alternative consiste à remplacer les parois par « du vide » c'est à dire à séparer physiquement chaque bit d'information. C'est ainsi qu'à l'heure actuelle, des densités de stockage de l'ordre de 65 Gbits/in² ont pu être atteintes par électrodéposition de nickel dans un support de PMMA insolé par lithographie électronique [Kra 94, Cho 94]. Aujourd'hui, l'industrie de l'enregistrement magnétique à travers le monde rapporte plus de 100 milliards de dollars par an et elle est en expansion constante comme le montre la figure 1.1. L'appât du gain a motivé la floraison d'une grande quantité d'études grâce aux développements de technologies d'élaboration de micro et nanostructures ainsi que de techniques de mesure d'une particule unique nécessaires à la fabrication et à l'étude de ces petites particules. Tout comme dans le cas des supports de stockage à base de bulles magnétiques, l'intégration de ces petites structures dans les supports d'enregistrement magnétiques passe par une étape d'étude en laboratoire.

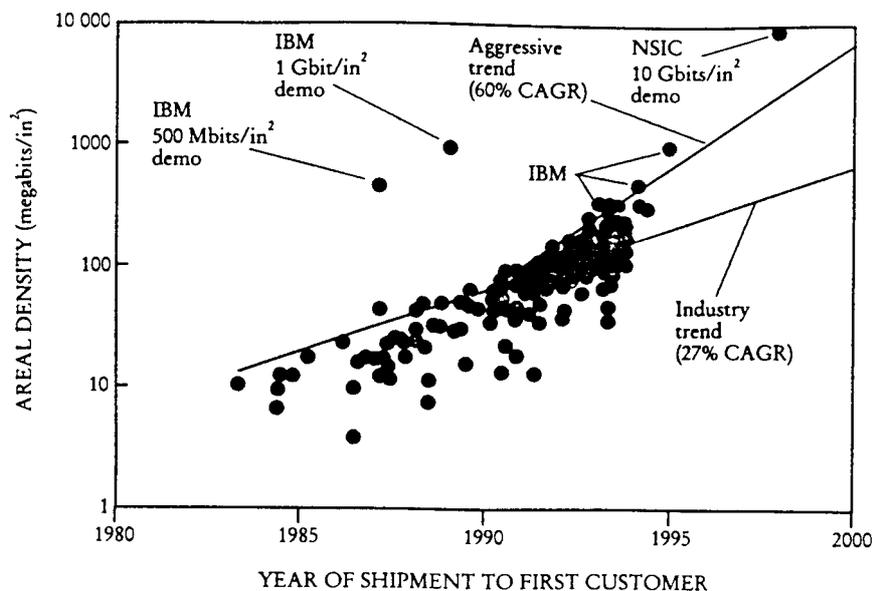


figure 1.1 : évolution de la densité de stockage en fonction des années [Sim 95]

L'une des conditions nécessaire pour pouvoir stocker des données est l'obtention d'une orientation d'un moment magnétique ne changeant plus après inscription de l'information. Pour cela, il faut soit que l'anisotropie magnétocristalline soit grande et non aléatoire [New 95], soit que l'anisotropie de forme soit non négligeable [Wer 96]. Dans ce cas, les cycles d'aimantation des particules s'ouvrent à bas champ et présentent un hystérésis. D'autre part, il est important de caractériser le retournement de cette aimantation en fonction d'un champ appliqué pour optimiser la stabilité de l'information stockée et le processus d'écriture. Ce dernier dépend du matériau utilisé [Wer 95], de la taille de la particule [Smy 91] et de sa forme [Rüh 96]. La densité d'informations pourra alors être augmentée

en diminuant la taille des particules tout en les rapprochant. Cependant, deux effets magnétiques limitent cette réduction. Tout d'abord, des particules magnétiques très proches les unes des autres interagissent par le biais d'interactions dipolaires. Ce champ d'interaction a une influence sur le champ de retournement des particules [Wei 94, Mae 94]. Puis, lorsque la taille des particules est inférieure à une taille critique, le comportement magnétique des particules change puisqu'elles deviennent superparamagnétiques.

Dans certains cas, une structure en domaines subsiste lorsque la taille latérale des domaines est plus petite que la taille latérale de la particule. Il est alors possible de comparer les mécanismes de renversement de l'aimantation dans une couche et dans une particule en fonction du champ magnétique appliqué et d'en déduire les effets de la réduction de la taille latérale de la couche dans le domaine des microstructures [Ker 94] et nanostructures [Run 96, Hef 91] à aimantation planaire. L'ajustement de la taille latérale des particules à la taille latérale des domaines permet de changer la structure en domaines et donc les mécanismes de nucléation [Mir 97]. L'interprétation des mesures d'aimantation dans ces petites structures est difficile car les effets du champ démagnétisant sont tridimensionnels et leur modélisation nécessite en général des calculs de micromagnétisme [Fre 91, Koe 91, Fer 96].

Dans ce mémoire, nous avons choisi d'adapter la taille des domaines à la taille latérale des particules qui a été fixée à 0.5 μm . Pour cela, nous sommes partis d'une couche de cobalt d'épaisseur comprise entre 10 et 500 nm dont nous avons optimisé les conditions de croissance pour obtenir une phase cristalline hexagonale compacte. Cette couche de cobalt a été gravée à l'aide de la lithographie X et de la gravure ionique sèche sous forme de réseaux de 1 μm de périodicité constitués de plots de 0.5 μm de côté. L'optimisation des conditions de lithographie et de gravure nous a permis d'étudier le magnétisme de réseaux de plots submicroniques et de le comparer à celui des couches de cobalt qui s'est déjà révélé riche en propriétés spectaculaires.

Ce mémoire est organisé de la manière suivante.

Dans le **chapitre II**, après avoir présenté une revue des méthodes expérimentales qui ont été utilisées pour l'élaboration et la caractérisation structurale des échantillons, nous décrivons la croissance des couches de Ru/Co/Ru et nous donnerons les résultats des investigations menées sur les propriétés structurales obtenues *in situ* par diffraction d'électrons rapides en incidence rasante (RHEED), *ex situ* par diffraction de rayons X et microscopie à force atomique.

Le **chapitre III** est, quant à lui, consacré à la présentation de la lithographie par rayons X et de la gravure ionique sèche qui sont les outils de fabrication des nanostructures magnétiques. Cette

présentation est suivie de caractérisations structurale et topographique des réseaux qui soulignent les difficultés technologiques qu'il faut surmonter pour obtenir des plots de bonne qualité.

Au **chapitre IV**, nous décrirons les techniques expérimentales de mesure des propriétés magnétiques des échantillons. La caractérisation magnétique macroscopique a été réalisée à l'aide d'un magnétomètre à gradient de champ (AGFM), d'un magnétomètre à SQUID et d'un pendule de torsion alors que la microscopie à force magnétique (MFM) a été utilisée pour accéder aux propriétés magnétiques microscopiques. Dans le cas du MFM, nous mettrons l'accent sur l'interprétation des images mesurées en adaptant les calculs réalisés pour des structures en domaines à aimantation planaire.

Le **chapitre V** est consacré à l'étude des propriétés magnétiques des couches de cobalt. Après une brève revue des travaux réalisés sur le sujet, nous passerons tout d'abord à l'étude des propriétés magnétiques macroscopiques puis à celle des propriétés magnétiques microscopiques. Il apparaîtra que les couches de cobalt forment un système idéal pour des études de magnétorésistance de parois, de résonance de parois qui seront présentées en guise de conclusion du chapitre.

Puis, les propriétés magnétiques des réseaux de plots de cobalt seront présentées au **chapitre VI**. Etant donné que l'interprétation des résultats expérimentaux ne peut plus être obtenue de manière simple à l'aide des modèles développés pour les couches infinies, les études expérimentales des propriétés macroscopiques puis microscopiques sont menées conjointement avec celles obtenues à l'aide de calculs micromagnétiques tridimensionnels pour des plots indépendants.

Le **chapitre VII** présente les principales conclusions de ce travail et en donne les prolongements souhaitables.

Enfin, nous avons rassemblé dans les annexes les équations de Maxwell ainsi que l'analogie entre les équations de l'électrostatique et de la magnétostatique (**Annexe A**), les modèles micromagnétiques de domaines magnétiques (**Annexe B**), les facteurs de forme pour les différentes géométries étudiées au cours de ce mémoire (**Annexe C**) et une très brève introduction aux calculs de micromagnétisme (**Annexe D**) pour alléger le contenu du mémoire. Le lecteur pourra s'y reporter si cela lui semble nécessaire.

Références chapitre I

- [Aws 95] D. D. Awschalom, D. P. DiVincenzo, *Physics Today* **43** (1995).
- [Bob 75] A. H. Bobeck et E. Della Torre, *Magnetic Bubbles*, North-Holland Publishing Compagny, Amsterdam (1975).
- [Bob 67] A. H. Bobeck, *Bell Syst. tech. J.* **46**, 1901 (1967).
- [Bro 63] W. F. Brown, Jr, *Micromagnetics*, Ed. Wiley&Sons (1963).
- [Cap 71] J. A. Cape et G. W. Lehman, *J. Appl. Phys.* **42**, 5732 (1971).
- [Cho 94] S. Y. Chou, M. S. Wei, P. R. Krauss et P. B. Fischer, *J. Appl. Phys.* **76**, 6673 (1994).
- [Coo 73] P. V. Cooper et D. J. Craik, *J. Phys. D : Appl. Phys.* **6**, 1393 (1973).
- [Cra 95] D. Craik, *Magnetism, principles and applications*, Ed. Wiley&Sons (1995).
- [Esc 80] A. H. Eschenfelder, *Magnetic bubble technology*, Ed. Springer-Verlag, Berlin (1980).
- [Fer 96] R. Ferré, M. Hehn et K. Ounadjela, accepté pour publication dans *J. Mag. Mag. Mat.* (1997).
- [Fre 91] D. R. Fredkin, T. R. Koehler, J. F. Smyth et S. Schultz, *J. Appl. Phys.* **69**, 5276 (1991).
- [Gru 72] P. J. Grundy, D. C. Hothersall, G. A. Jones, B. K. Middleton, R. S. Tebble, *Phys. Stat. Sol. (a)* **9**, 79 (1972).
- [Hef 91] S. J. Hefferman, J. N. Chapman et S. Mc Vitie, *J. Mag. Mag. Mat.* **95**, 76 (1991).
- [Kan 76] G. S. Kandaurova et Y. V. Ivanov, *Sov. Phys. - JETP* **43**, 343 (1976).
- [Ker 94] R. Kergoat, thèse de doctorat, Université Paris VII (1994).
- [Kit 46] C. Kittel, *Phys. Rev.* **70**, 965 (1946).
- [Klé 83] M. Kléman, *Points, lines and Walls*, Ed. Wiley, New York (1983).
- [Koe 91] T. R. Koehler et D. R. Fredkin, *IEEE Trans. Mag.* **27**, 4763 (1991).
- [Koj 65] H. Kojima et K. Goto, *J. Appl. Phys.* **36**, 538 (1965).
- [Koo 60] C. Kooy et U. Enz, *Philips Res. Repts* **15**, 7 (1960).
- [Kra 94] P. R. Krauss, P. B. Fischer et S. Chou, *J. Vac. Sci. Technol. B* **12**, 3639 (1994).
- [Mae 94] A. Maeda, M. Kume, T. Ogura, K. Kuroki, T. Yamada, M. Nishikawa et Y. Harada, *J. Appl. Phys.* **76**, 6667 (1994).
- [Mir 97] C. Miramond, thèse de doctorat (1997).
- [Mol 86] P. Molho, J. Gouzerh, J. C. S. Levy et J. L. Porteseil, *J. Mag. Mag. Mat.* **54-57**, 857 (1986).
- [Mol 87] P. Molho, J. L. Porteseil, Y. Souche, J. Gouzerh, J. C. S. Levy, *J. Appl. Phys.* **61**, 4188 (1987).
- [Nem 69] J. M. Nemchik, *J. Appl. Phys.* **40**, 1086 (1969).
- [New 95] R. M. New, R. F. W. Pease et R. L. White, *IEEE Trans. Mag.* **31**, 3805 (1995).
- [Ros 85] R. E. Rosensweig, *Ferrohydrodynamics*, Ed. Cambridge University Press, Cambridge (1985), Chapitre 7.

- [Rüh 96] M. Rührig, B. Khamsehpour, K. J. Kirk, J. N. Chapman, P. Aitchison, S. Mc Vitie et C. D. W. Wilkinson, accepté pour publication dans IEEE Trans. Mag. (1996).
- [Run 96] K. Runge, Y. Nozaki, Y. Otani, H. Miyajima, B. Pannetier, T. Matsuda et A. Tonomura, J. Appl. Phys. **79**, 5075 (1996).
- [Sch 71] S. Schuldt et D. Chen, J. Appl. Phys. **42**, 1970 (1971).
- [Seu 90] M. Seul et M. J. Sammon, Phys. Rev. Lett. **64**, 1903 (1990).
- [Seu 95] M. Seul et D. Andelman, Science **267**, 476 (1995).
- [Shi 73] Y. Shimada et H. Kojima, J. Appl. Phys. **44**, 5125 (1973).
- [Sim 95] J. L. Simonds, Physics Today, page 29, Avril 1995.
- [Smy 91] J. F. Smyth, S. Schultz, D. R. Fredkin, D. P. Kern, S. A. Rishton, H. Schmid, M. Cali et T. R. Koehler, J. Appl. Phys. **69**, 5262 (1991).
- [Sor 87] D. Sornette, J. Physique **48**, 151 (1987).
- [Szy 82] R. Szymczak, K. Piotrowski et A. Szewczyk, Physica **113B**, 113 (1982).
- [Szy 79] R. Szymczak, A. Maziewski et K. Piotrowski, J. Mag. Mag. Mat. **12**, 227 (1979).
- [Thi 68] A. A. Thiele, Bell Sys. tech. J. **48**, 3287 (1968).
- [Thi 70] A. A. Thiele, J. Appl. Phys. **41**, 1139 (1970).
- [Thi 70a] A. A. Thiele, Bell Sys. tech. J. **50**, 711 (1970).
- [Thi 70b] A. A. Thiele, Bell Sys. tech. J. **50**, 725 (1970).
- [Tom 84] I. Tomas, G. Vertesy et M. Balasko, J. Mag. Mag. Mat. **43**, 287 (1984).
- [Wei 94] M. S. Wei et S. Y. Chou, J. Appl. Phys. **76**, 6679 (1994).
- [Wer 95] W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, D. Mailly, B. Barbara, A. Benoit, L. Thomas et G. Suran, J. Mag. Mag. Mat. **145**, 33 (1995).
- [Wer 96] W. Wernsdorfer, B. Doudin, D. Mailly, K. Hasselbach, A. Benoit, J. Meier, J.-Ph. Ansermet et B. Barbara, Phys. Rev. Lett. **77**, 1873 (1996).

CHAPITRE II
Croissance et caractérisation structurale des
couches de cobalt

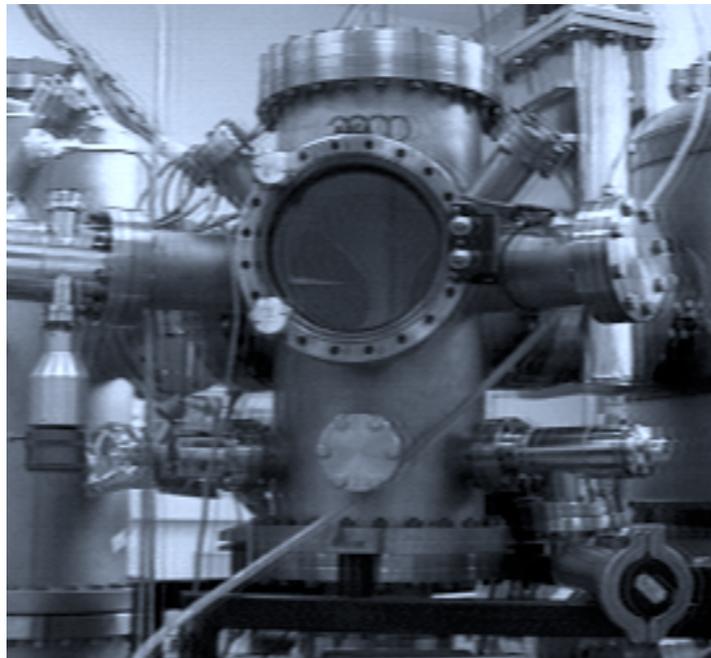


figure 2.1 : sas d'introduction des échantillons dans le bâti d'EJM

A. METHODES EXPERIMENTALES D'ELABORATION ET DE CARACTERISATION DES COUCHES DE COBALT

L'ensemble des couches de cobalt a été élaboré par évaporation par bombardement électronique de cibles métalliques sous ultravide au laboratoire par J. Arabski, K. Ounadjela et moi même. Le premier paragraphe de cette section est entièrement consacré à la description de l'outil et à son fonctionnement.

Puis, sachant que les propriétés électroniques, et donc optiques et magnétiques, des structures étudiées en physique du solide dépendent de leur cristallinité, composition..., il est très important d'en faire une caractérisation complète avant d'entreprendre une quelconque analyse dont l'interprétation et la compréhension seraient hasardeuses. C'est pourquoi, j'exposerai le principe des méthodes de caractérisation structurale utilisées pour l'étude des couches de cobalt. Elles sont au nombre de trois : la diffraction d'électrons rapides en incidence rasante (RHEED) permet d'étudier la surface libre d'un échantillon pendant la croissance, la diffraction de rayons X permet d'obtenir des renseignements sur sa structure cristalline et enfin, la microscopie à force atomique donne accès à la rugosité de surface après le recouvrement de l'échantillon par sa couche de protection.

1. EPITAXIE PAR JET MOLECULAIRE (EJM)

Le bâti d'épitaxie disponible à l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg est constitué de deux chambres de volume différent, les chambres d'évaporation et d'analyse, reliées entre elles par un sas d'introduction.

1.1. Sas d'introduction

Cette chambre permet d'introduire par le hublot le porte échantillon dans l'enceinte et de le retirer à la fin du dépôt sans mise à l'air de la chambre de dépôt. Il est souhaitable d'éviter des entrées d'air trop fréquentes dans l'enceinte de dépôt, car l'obtention de pressions résiduelles, notées P , inférieures à 10^{-10} Torr nécessite toute une semaine de pompage et d'étuvage. Elle peut être isolée des deux autres chambres par deux vannes pneumatiques et, de part son petit volume, elle nécessite un temps de pompage beaucoup plus court.

Le « vide » dans cette partie du bâti est assuré par une pompe turbomoléculaire de 300 l/s couplée à une pompe à palettes. La pression, mesurée à l'aide d'une jauge à thermocouple ($760 \leq P \leq 10^{-3}$ Torr) et d'une jauge de type Penning ($10^{-3} \leq P \leq 5.10^{-9}$ Torr), atteint facilement 10^{-7} Torr après quelques minutes de pompage pour saturer à quelques 10^{-9} Torr après quelques heures de pompage.

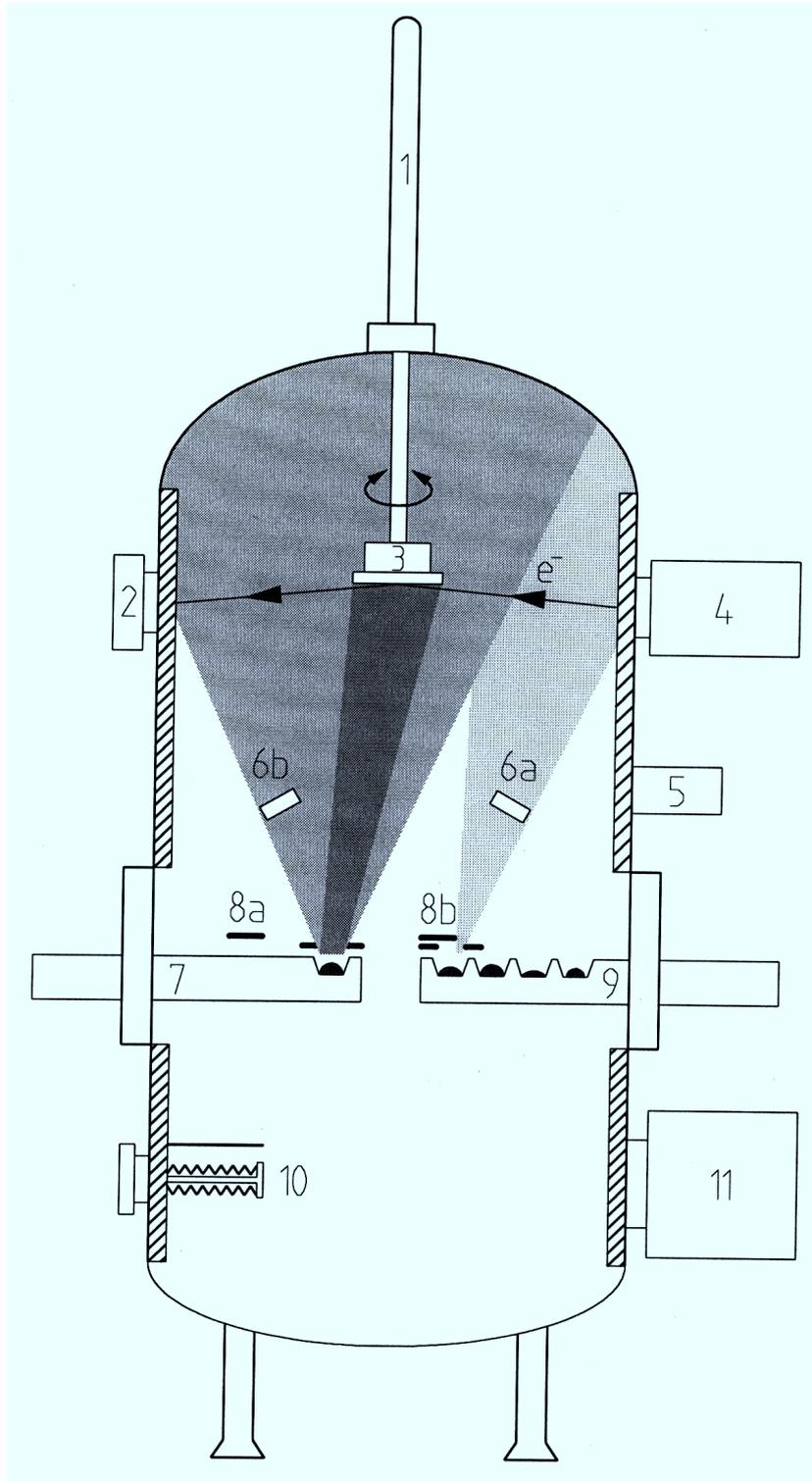


figure 2.2 : schéma fonctionnel de la chambre d'évaporation tiré de [Hen 95].

(1) Canne de transfert (2) Ecran fluorescent (3) Four et porte échantillon (4) Canon à électrons RHEED (5) Mesure de pression (6) Balances à quartz (7) Canon à électrons monocreuset (8) Caches mobiles (9) Canon à électrons quadricreuset (10) Sublimateur de titane (11) Pompe ionique.

1.2. Chambre d'évaporation

La chambre d'évaporation, dont le schéma de principe est donné sur la figure 2.2, est une enceinte «ultravide» dans laquelle les pressions résiduelles peuvent atteindre quelques 10^{-11} Torr. Pour obtenir de telles pressions, il faut utiliser un système de pompage efficace en associant une pompe ionique (11) de 400 l/s, un sublimateur de titane (10) et un panneau cryogénique refroidi à l'azote liquide (surface hachurée sur la figure 2.2). De telles pressions sont mesurées à l'aide d'une jauge Bayart-Alpert (5) dont la gamme de pressions mesurables s'étend de $2 \cdot 10^{-3}$ à $2 \cdot 10^{-11}$ Torr.

Afin de faire croître des dépôts en couches minces, l'enceinte est pourvue de deux canons à électrons destinés à chauffer les matériaux à évaporer. L'un des canons possède un seul creuset contenant le cobalt (7) alors que l'autre en possède quatre (9) qui contiennent les matériaux non magnétiques. Cette technique d'évaporation évite toute contamination du métal à évaporer et permet de travailler avec des flux très faibles de l'ordre de 0.05 \AA/s .

Les électrons, créés par un filament de tungstène, sont accélérés par un champ électrique puis déviés par un champ magnétique sur le métal à évaporer. Ce dernier résulte de la superposition d'un champ magnétique statique qui focalise le faisceau et d'un autre alternatif qui permet le balayage d'une partie de la surface de la cible. Les tensions d'accélération utilisées sont typiquement de l'ordre de 10 KV et les courants d'émission de l'ordre de 100 mA.

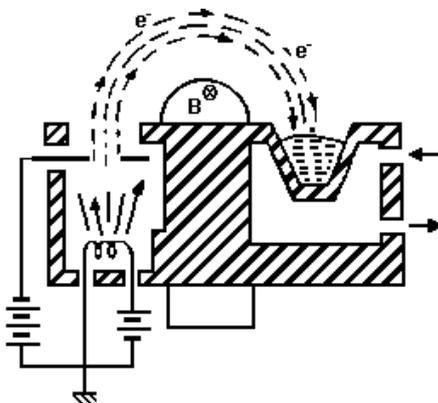


figure 2.3 : principe du canon à électrons

Les deux sources possèdent un cache mobile (8a) et (8b) qui permet d'interrompre brutalement les flux des atomes dans la direction du substrat. L'épaisseur déposée est déduite de la fréquence d'oscillation d'un quartz (6a) et (6b), qui dépend de la masse du métal déposé, monté dans un circuit oscillant. Une boucle de régulation entre l'alimentation des canons et les quartz assure la stabilité du

flux et l'ouverture automatique alternée des deux caches lorsque l'épaisseur programmée est atteinte.

Six substrats sont fixés à l'aide de pattes en tungstène sur une plaque circulaire en molybdène avant d'être transférés dans le sas (figure 2.4). Un cache tournant permet soit de déposer une couche unique sur tous les échantillons, soit de déposer des couches différentes sur chaque substrat par rotation du cache.

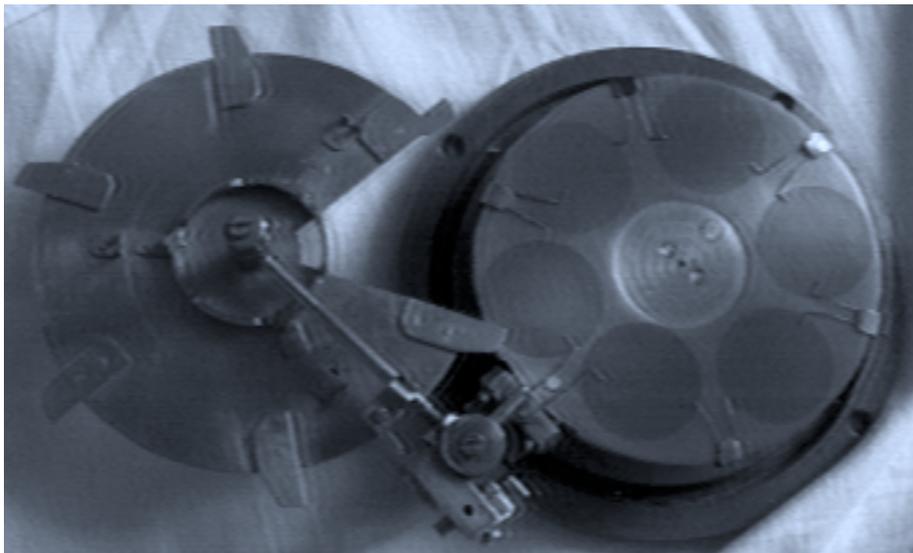


figure 2.4 : porte échantillon utilisé pour les dépôts. Mise en place de substrats de mica

Lorsque le porte échantillon est transféré dans la chambre d'évaporation, il est mis en contact avec un four (3) constitué d'un écran en molybdène et d'un fil de tantale bobiné sur une céramique de manière à minimiser le champ magnétique produit par la circulation du courant. Le tout est suspendu à une canne (1) dont la rotation pendant le dépôt est un gage d'une bonne homogénéité du dépôt. Une étude par diffraction de rayons X a montré que l'épaisseur des couches déposées varie de moins de 5% sur 2 cm de taille latérale. La température sur le substrat est mesurée par un thermocouple de type K. Elle peut être ajustée de 1000°C lorsque le four est alimenté en courant à -30°C sans chauffage et lorsque le panneau cryogénique est rempli avec de l'azote liquide.

Cette chambre contient également un canon à électrons (4) de haute énergie et un écran fluorescent (2) permettant de visualiser la figure de diffraction du faisceau d'électrons rasant sur l'échantillon. Cette technique permet de suivre en temps réel la croissance des multicouches (caractéristiques structurales, calculs des périodes par oscillation de l'intensité des raies, coefficient de diffusion ...). Les diagrammes de diffraction RHEED peuvent être sauvegardés soit par l'utilisation d'un appareil

photographique, soit par un système d'acquisition d'images. Un analyseur de gaz mesure à tout moment les pressions partielles des gaz résiduels dans la chambre de dépôt.

1.3. Chambre d'analyse

Cette chambre du bâti d'EJM n'a pas été utilisée pendant la durée de ma thèse. Elle comporte un spectromètre Auger à balayage et un canon à ions.

2 DIFFRACTION D'ELECTRONS RAPIDES EN INCIDENCE RASANTE (RHEED)

2.1. Description du dispositif

L'échantillon étudié est irradié par un faisceau d'électrons monochromatique dont l'énergie est de l'ordre de 20 KeV avec un très petit angle d'incidence compris entre 1 et 5 degrés. Les électrons, réfléchis par l'échantillon, viennent frapper l'écran pour former l'image RHEED. Grâce à son petit angle d'incidence, le RHEED est une technique bien adaptée à l'analyse de surface [Cha 90].

2.2. Théorie cinématique

On se propose de calculer l'intensité diffusée par un cristal dans une direction quelconque de l'espace pour une onde incidente plane et monochromatique dans le cadre de l'approximation de la théorie cinématique. Dans les hypothèses de la théorie cinématique, la diffusion doit être élastique c'est à dire que la fréquence de l'onde diffusée est identique à celle de l'onde incidente et l'amplitude de l'onde associée aux électrons est la même en tout point du volume diffusant. Cependant, cette théorie ne reflète pas exactement la réalité car les électrons interagissent fortement avec la matière entraînant de l'absorption et des diffusions multiples, mais elle décrit bien les figures de diffraction obtenues au RHEED.

Soit un cristal dont les dimensions sont $N_1\vec{a}$, $N_2\vec{b}$, $N_3\vec{c}$ où \vec{a} , \vec{b} , \vec{c} est une base du cristal. Un atome de ce cristal peut alors être repéré par le vecteur

$$\vec{R}_{u,r} = \vec{T}_u + \vec{\rho}_r \quad (2.1)$$

avec

$\vec{T}_u = u\vec{a} + v\vec{b} + w\vec{c}$, $0 \leq u \leq N_1-1$, $0 \leq v \leq N_2-1$ et $0 \leq w \leq N_3-1$ est une translation du réseau.

$\vec{\rho}_r = x_r\vec{a} + y_r\vec{b} + z_r\vec{c}$ est le vecteur position de l'atome considéré dans la maille.

Considérons un électron à la position \vec{r} , de vecteur d'onde incident \vec{k}_0 et de vecteur d'onde diffusé \vec{k} . Sa fonction d'onde avant interaction s'écrit

$$\Psi_i = A \exp(i \vec{k}_0 \cdot \vec{r}) \quad (2.2)$$

Il s'agit de résoudre l'équation de Klein-Gordon [Lan] en présence d'un champ électromagnétique représenté par un quadrivecteur champ A_i . Dans la suite du calcul, je me limiterai à la résolution de l'équation spectrale

$$(\Delta + k_0^2)\Psi(\vec{r}) = \frac{2m}{\hbar^2} U^*(\vec{r})\Psi(\vec{r}) \quad (2.3)$$

où $U^*(\vec{r})$ est le potentiel effectif de l'atome

Pour résoudre cette équation, l'utilisation du formalisme des fonctions de Green, solutions de l'équation $(\Delta + k_0^2)g(\vec{r} - \vec{r}') = \delta(\vec{r} - \vec{r}')$, facilite grandement les calculs. La fonction de Green peut être calculée par la méthode des résidus et, après calcul, la fonction d'onde totale après diffusion peut s'écrire

$$\Psi(\vec{r}) = \Psi_i(\vec{r}) + \iiint g^{(d)}(\vec{r} - \vec{r}') U^*(\vec{r}') \Psi(\vec{r}') d^3 \vec{r}' \quad (2.4)$$

avec $g^{(d)}(\vec{r} - \vec{r}') = -\frac{2m}{4\pi\hbar^2} \frac{\exp(ik_0|\vec{r} - \vec{r}'|)}{|\vec{r} - \vec{r}'|}$

Lorsque l'onde diffusée est observée à l'infini ($|\vec{r}| \gg |\vec{r}'|$), l'approximation suivante est justifiée

$$\begin{aligned} k_0|\vec{r} - \vec{r}'| &= \vec{k}_0 \cdot (\vec{r} - \vec{r}') \\ \Psi(\vec{r}) &= \Psi_i(\vec{r}) + \Psi_d(\vec{r}) \\ &= A(\exp(i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}) + f_r(\vec{k}, \vec{k}_0) \frac{\exp(i\vec{k} \cdot \vec{r})}{r}) \end{aligned} \quad (2.5)$$

Deux nouveaux paramètres peuvent alors être introduits : le facteur de diffusion f_r qui dépend de la nature de l'atome localisé à \vec{r} et qui est égal à l'amplitude diffusée en \vec{r} par unité de volume et dans l'unité d'angle solide sous l'effet d'un rayonnement incident d'amplitude unité et du vecteur de diffusion. Le vecteur de diffusion égal à $\vec{G} = \vec{k} - \vec{k}_0$.

L'amplitude de l'onde diffusée au point \vec{R} par l'ensemble des atomes peut se mettre sous la forme $(|\vec{R}\rangle\rangle|_{\vec{R}_{u,r}}$

$$\Psi_d = A \frac{1}{|\vec{R}|} \sum_{\text{atomes}} f_r \exp(i \vec{k}_0 \cdot \vec{R}_{u,r}) \exp(i \vec{k} \cdot (\vec{R} - \vec{R}_{u,r}))$$

$$\Psi_d = A \frac{\exp(i \vec{k} \cdot \vec{R})}{|\vec{R}|} \sum_{\text{atome \setminus maille}} f_r \exp(-i \vec{G} \cdot \vec{\rho}_r) \sum_{\text{mailles}} \exp(-i \vec{G} \cdot \vec{T}_u)$$

$$\Psi_d = A \frac{\exp(i \vec{k} \cdot \vec{R})}{|\vec{R}|} G(\vec{G}) F(\vec{G})$$

$$I_d(\vec{k}) \propto |G(\vec{G})|^2 \cdot |F(\vec{G})|^2$$

où

$I_d(\vec{k})$ est l'intensité diffusée dans la direction \vec{k} .

$G(\vec{G})$ dépend de la forme du cristal. C'est le facteur de forme.

$F(\vec{G})$ dépend des atomes de la maille. C'est le facteur de structure.

Pour expliquer la forme des diagrammes de diffraction RHEED, nous allons essentiellement nous intéresser au facteur de forme. Celui-ci s'écrit

$$G(\vec{G}) = \sum_{u=0}^{N_1-1} \exp(-i \vec{G} \cdot u \vec{a}) \sum_{v=0}^{N_2-1} \exp(-i \vec{G} \cdot v \vec{b}) \sum_{w=0}^{N_3-1} \exp(-i \vec{G} \cdot w \vec{c})$$

En effectuant la somme et en prenant le module de l'expression au carré, l'équation (2.7) devient finalement

$$|G(\vec{G})|^2 = \left(\frac{\sin(\frac{N_1 \vec{G} \cdot \vec{a}}{2})}{\sin(\frac{\vec{G} \cdot \vec{a}}{2})} \right)^2 \left(\frac{\sin(\frac{N_2 \vec{G} \cdot \vec{b}}{2})}{\sin(\frac{\vec{G} \cdot \vec{b}}{2})} \right)^2 \left(\frac{\sin(\frac{N_3 \vec{G} \cdot \vec{c}}{2})}{\sin(\frac{\vec{G} \cdot \vec{c}}{2})} \right)^2$$

L'allure de la courbe est donnée sur la figure 2.5.

Comme nous pouvons le voir sur cette figure, cette fonction est caractérisée par des maxima principaux de hauteur $(N_1 N_2 N_3)^2$ situés à $\vec{G} \cdot \vec{a} = 2\pi h$, $\vec{G} \cdot \vec{b} = 2\pi k$, $\vec{G} \cdot \vec{c} = 2\pi l$, des maxima secondaires et des minima situés à $\vec{G} \cdot \vec{a} = 2\pi (h + 1/N_1)$, $\vec{G} \cdot \vec{b} = 2\pi (k + 1/N_2)$, $\vec{G} \cdot \vec{c} = 2\pi (l + 1/N_3)$.

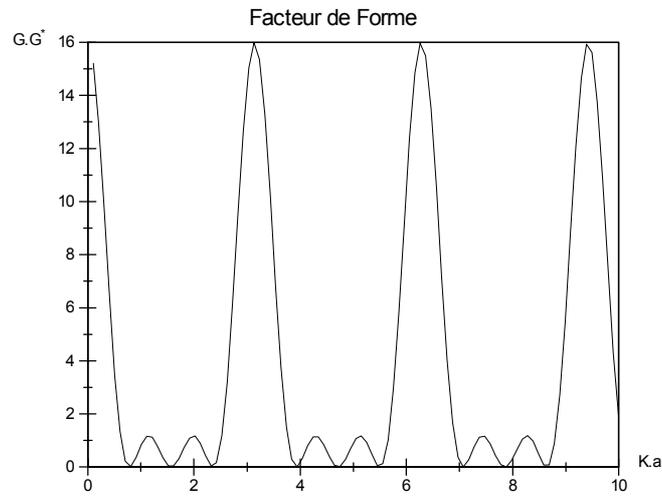


figure 2.5 : facteur de forme à une dimension

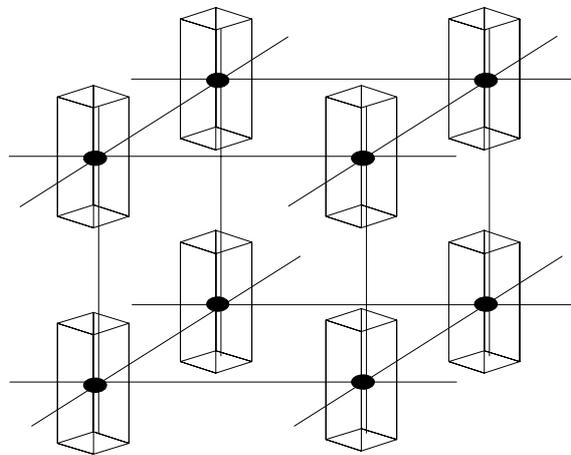


figure 2.6 : domaines de diffraction dans le cas du RHEED

2.3. Différents cas rencontrés

Expérimentalement, deux cas peuvent être rencontrés. Tout d'abord, dans le cas d'un échantillon massif, nous pouvons considérer que N_1, N_2, N_3 sont infinis et donc $|G(\vec{G})|^2$ a l'allure d'un peigne de Dirac bidimensionnel. Les relations de la diffraction classique sont alors retrouvées c'est à dire

$$\vec{G} \cdot \vec{a} = 2\pi h, \vec{G} \cdot \vec{b} = 2\pi k, \vec{G} \cdot \vec{c} = 2\pi l \text{ avec } (h, k, l) \text{ entiers} \quad (2.9)$$

Nous pouvons conclure des équations (2.9) que \vec{G} est un vecteur du réseau réciproque. Il peut donc se mettre sous la forme

$$\begin{aligned} \frac{\vec{G}}{2\pi} &= h\vec{a}^* + k\vec{b}^* + l\vec{c}^* \\ \text{avec } \vec{a} \cdot \vec{a}^* &= 1; \vec{a} \cdot \vec{b}^* = 0; \vec{a} \cdot \vec{c}^* = 0 \\ &(+ \text{permutation circulaire}) \end{aligned} \quad (2.10)$$

Dans le cas du RHEED, seuls quelques plans atomiques de surface sont analysés par le faisceau électronique rasant. Si la surface de l'échantillon est orthogonale à \vec{c} , le nombre d'atome effectif analysé suivant l'axe \vec{c} , N_3^{eff} , est très petit devant N_1 et N_2 . On peut alors considérer que N_1 et N_2 tendent vers l'infini et que N_3 devient N_3^{eff} , qui ne peut plus être considéré comme infini.

Comme nous l'avons vu précédemment, la fonction $|G(\vec{G})|^2$ présente des maxima principaux non nuls de largeur égale à $4\pi/N_1, 4\pi/N_2, 4\pi/N_3^{\text{eff}}$. Dans l'espace réciproque, le facteur de forme sera représenté par une distribution périodique de volumes, appelés domaines de diffraction, centrés sur les noeuds du réseau réciproque. On dit qu'il y a relâchement des conditions de diffraction. Le domaine de diffraction sera donc très allongé suivant \vec{c}^* .

Ces volumes sont définis par

$$\frac{\vec{G}}{2\pi} = \vec{a}^* \left(h \pm \frac{1}{N_1} \right) + \vec{b}^* \left(k \pm \frac{1}{N_2} \right) + \vec{c}^* \left(l \pm \frac{1}{N_3^{\text{eff}}} \right) \quad (2.11)$$

et leurs dimensions suivant les axes du réseau réciproque sont respectivement

$$\frac{2\vec{a}^*}{N_1}, \frac{2\vec{b}^*}{N_2}, \frac{2\vec{c}^*}{N_3^{\text{eff}}}.$$

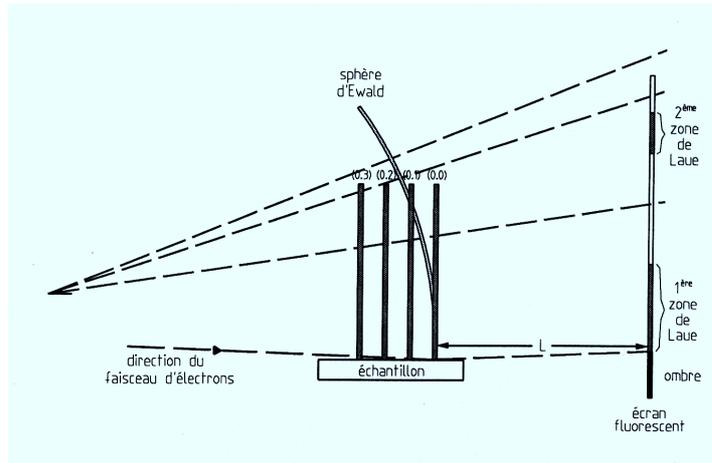


figure 2.7 : interprétation schématique de l'origine des barres sur les diagrammes de diffraction RHEED (d'après [Cho 85] et [Hen 95]).

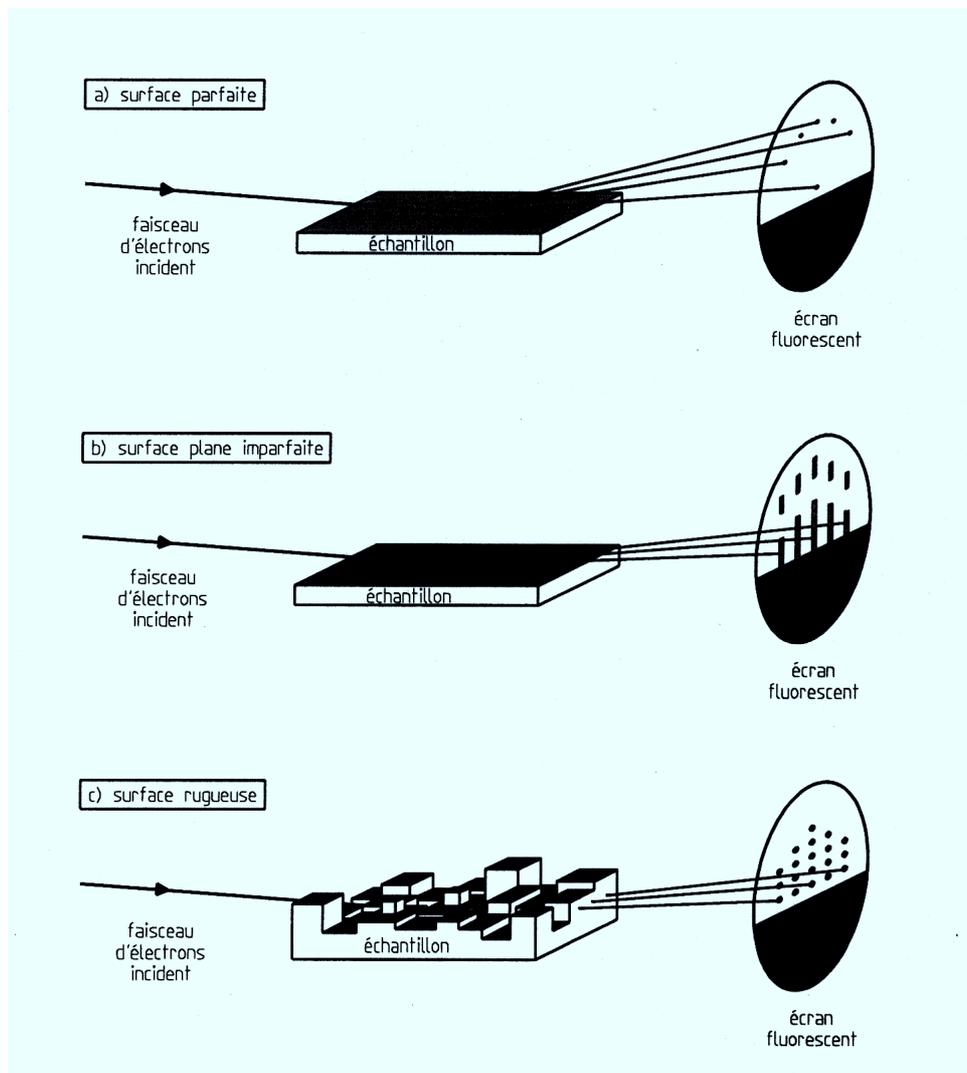


figure 2.8 : diagrammes de diffraction RHEED attendus pour (a) une surface parfaite (b) une surface plane imparfaite et (c) une surface rugueuse d'après [Hen 95].

Pour obtenir un faisceau diffracté non nul dans une direction, il faut que l'extrémité du vecteur de diffusion se trouve à l'intérieur d'un domaine de diffraction. Dans les conditions de la diffusion élastique, le diagramme RHEED résulte de l'intersection de la sphère d'Ewald avec les domaines de diffraction qui ont la forme de bâtonnets (figure 2.7) [Cho 85].

2.4. Interprétation des diagrammes RHEED

Lorsque la surface de l'échantillon est extrêmement plane et que le faisceau est suffisamment rasant, le système peut être considéré comme bidimensionnel. Les volumes diffractants sont alors très allongés suivant l'axe orthogonal à la surface. L'intersection avec la sphère d'Ewald ne se fait alors qu'en un seul point et le diagramme est constitué de points répartis sur un arc de cercle (figure 2.8a).

Ce type de diagramme n'est que rarement obtenu à cause de l'épaississement de la sphère d'Ewald car le faisceau est divergent et n'est pas parfaitement monochromatique et parce que les atomes oscillent autour de leur position d'équilibre aux températures de croissance. C'est pourquoi, en général, les diagrammes RHEED sont constitués de barres (figure 2.8b).

Les diagrammes RHEED peuvent également être composés à la fois de barres et de surintensités sous forme de points (figure 2.8c). C'est là le gage d'une croissance tridimensionnelle car les tâches qui apparaissent sur les barres proviennent d'une diffraction tridimensionnelle. Certes, la couche déposée ne sera pas d'une qualité structurale exceptionnelle mais, lorsque l'observation de deux azimuts différents est possible, nous pouvons déduire la structure cristalline de surface et donc caractériser la croissance *in situ*. En effet, la visualisation de deux azimuts différents est quelque fois nécessaire car il arrive que deux structures cristallines différentes donnent le même diagramme de points dans un azimut donné. La structure dans laquelle s'est faite la croissance peut être retrouvée par des simulations à l'aide de l'ensemble des programmes EMS développé par P. Stadelmann [Sta 87].

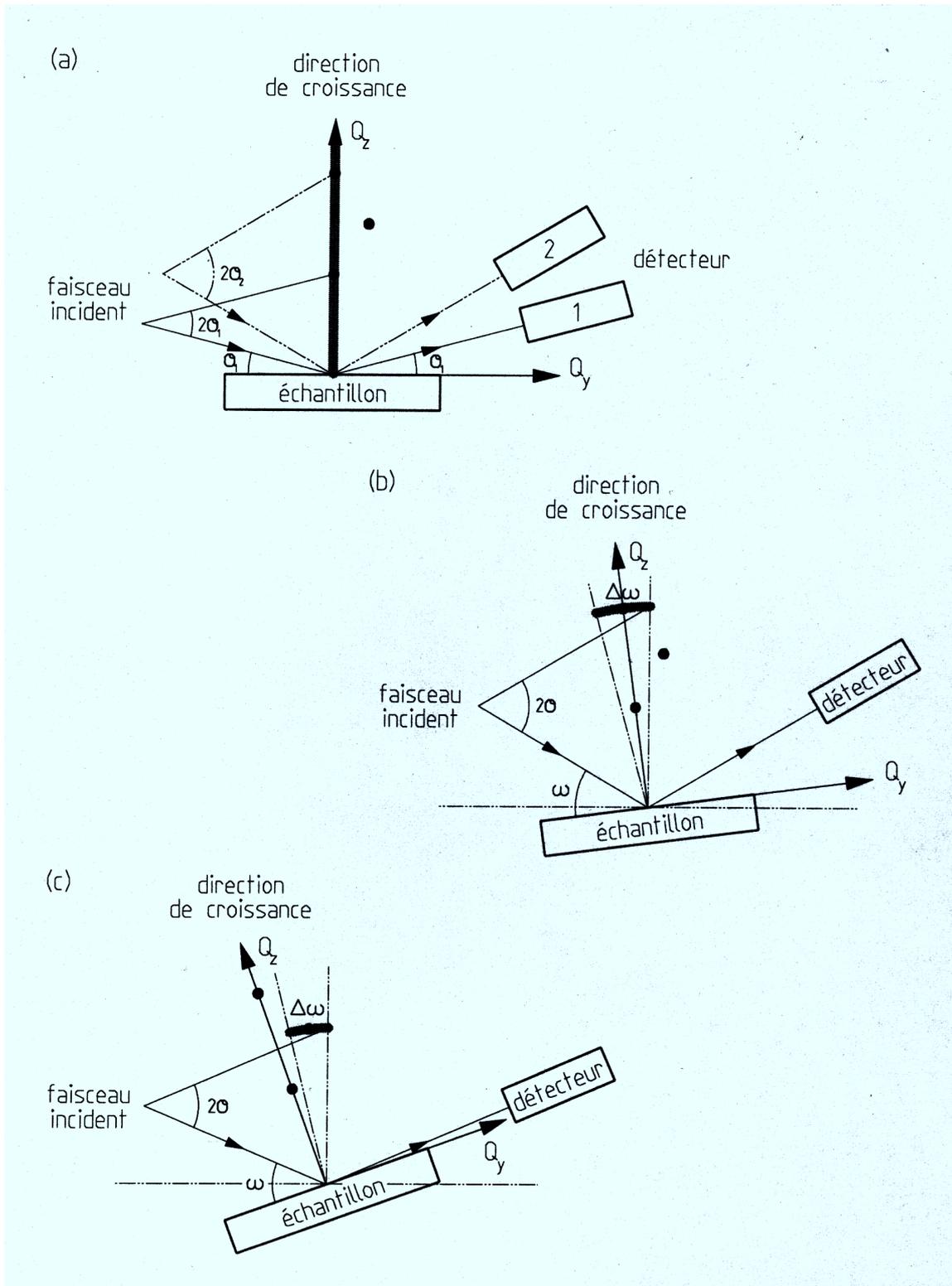


figure 2.9 : géométries associées aux différents types d'expériences réalisés en diffraction de rayons X. (a) Spectres $\theta/2\theta$ (b) « rocking curves » en géométrie symétrique ($\omega/2\theta$) et (c) « rocking curves » en géométrie asymétrique.

3. DIFFRACTION DE RAYONS X

La technique de diffraction de rayons X est un outil de caractérisation privilégié pour l'étude de dépôts de couches sur substrat. En effet, grâce à cette technique non destructive, nous pouvons contrôler la qualité cristalline et l'épaisseur de nos dépôts.

Les expériences ont été réalisées par M. Maret sur les couches tampon de ruthénium et K. Cherifi-Khodjaoui sur les couches de cobalt à l'aide d'un diffractomètre Philips haute résolution de longueur d'onde $\lambda(K\alpha1Cu)=1.54 \text{ \AA}$ équipé d'un monochromateur quatre cristaux (Ge). De par sa conception, seules des expériences en réflexion sont possibles avec ce diffractomètre. Néanmoins, trois types de mesure peuvent être réalisés

3.1. Réflectivité en géométrie θ - 2θ

Dans cette géométrie, représentée sur la figure 2.9a, le vecteur de diffusion \vec{Q} est toujours perpendiculaire au plan de la couche. Lorsque θ varie, le dispositif permet de sonder Q_z et donc

- la distance inter réticulaire D des constituants (pics de Bragg)

$$D = \frac{\lambda}{2 \sin \theta} \quad (2.12)$$

- les pics de la surstructure d'une multicouche (superpériode) de période Λ

$$\Lambda = \frac{\lambda}{2} (\sin \theta_{i+1} - \sin \theta_i) \quad (2.13)$$

où

θ_{i+1} et θ_i sont les angles de deux pics satellites consécutifs.

- la longueur de cohérence selon l'axe de croissance, L_{\perp}

Elle représente l'épaisseur sur laquelle la cohérence cristalline est perdue. La relation générale qui lie la largeur à mi-hauteur du pic $\Delta(2\theta)$ et la longueur de cohérence du cristal L_{\perp} est donnée par [Gui 64, pp 464]

$$L_{\perp} = \frac{180}{\pi} \frac{K \lambda}{\Delta(2\theta) \cos \theta} \quad (2.14)$$

où

K est un facteur variant suivant les références entre 0.8 et 1.

3.2. Rocking curve en géométrie symétrique

Dans cette technique (figure 2.9b), le détecteur est fixé à un certain angle 2θ et l'échantillon effectue une rotation entre les angles $\theta-\Delta\omega/2$ et $\theta+\Delta\omega/2$ autour de l'axe ω . La largeur à mi-hauteur de la rocking curve donne des renseignements sur la longueur de cohérence dans le plan et sur la désorientation de l'axe de croissance. En effet, la largeur du pic est reliée à l'existence d'une mosaïcité qui provient d'une légère désorientation de l'axe \bar{c} par rapport à la normale à la surface de la couche représentée par un angle η et à la longueur de cohérence latérale des grains, $L_{//}$. Les deux termes peuvent en principe être déterminés par deux mesures faites autour de pics de Bragg d'ordres différents [Mic 95].

La largeur à mi-hauteur du pic est alors égale à

$$\Delta\omega = \frac{180}{\pi} \left(\eta + \frac{K\lambda}{2L_{//} \sin\theta} \right) \quad (2.15)$$

3.3. Rocking curve en géométrie asymétrique

Dans ce type d'expérience, l'échantillon effectue une rotation entre $\omega-\Delta\omega/2$ et $\omega+\Delta\omega/2$ dans une direction centrée en dehors de la direction de croissance, la position angulaire du détecteur étant fixée (2θ). Nous verrons dans la section II.B de ce chapitre que le choix judicieux d'une région de l'espace réciproque permet de séparer les réflexions des phases hexagonales compactes et cubiques à faces centrées et d'en déduire leur paramètre de maille selon l'axe de croissance et dans une direction du plan de croissance.

4. MICROSCOPIE A FORCE ATOMIQUE (AFM)

Afin de simplifier la lecture de ce manuscrit, j'ai décidé de rassembler toutes les informations sur les techniques de microscopie à champ proche dans le chapitre relatif à la microscopie à force magnétique puisqu'elles utilisent le même dispositif expérimental (voir chapitre IV.A).

B. CROISSANCE ET CARACTERISATION STRUCTURALE DES COUCHES DE COBALT

Depuis quelques années, le laboratoire s'est spécialisé dans la croissance de multicouches Ru/Co/Ru déposées sur substrat de mica. Le dépôt de la couche tampon de ruthénium est réalisé à 600°C pour éviter la déshydratation du mica alors que le restant de la couche est déposé à une température beaucoup plus basse, inférieure à 100°C, pour éviter toute interdiffusion aux interfaces [Arb 93]. Les différentes études menées au laboratoire ont montré que la structure cristalline de la couche tampon de ruthénium était hexagonale compacte et que celle de la couche de cobalt était hexagonale compacte avec beaucoup de fautes d'empilement [Mul 92].

Dans la continuité de ce travail, nous avons décidé de conserver les matériaux constitutifs des échantillons c'est à dire le ruthénium pour la couche tampon et le cobalt pour la couche active. Cependant, pour répondre à nos exigences, nous avons changé les conditions de croissance de ces couches ainsi que le substrat sur lequel le dépôt est réalisé. Le choix d'un monocristal de saphir d'orientation $[1,1,\bar{2},0]$ s'est avéré nécessaire. En effet, le saphir est un matériau très rigide et plat qui s'impose pour toutes les étapes de lithographie X afin d'éviter la détérioration du masque. De plus, le signal magnétique du saphir à basse température, de l'ordre de 10^{-5} emu pour les volumes étudiés, est bien plus petit que celui du mica. Le dépouillement des mesures magnétiques s'en trouve ainsi grandement simplifié. Nous avons optimisé les conditions de croissance de la couche tampon de ruthénium afin qu'elle soit la plus plate possible et que sa qualité cristalline soit la meilleure possible. Puis, nous avons optimisé la croissance du cobalt dans sa structure hexagonale compacte sur le ruthénium. Cette étape, nécessaire pour les études magnétiques futures, est d'une importance capitale. En effet, le but de nos travaux est d'étudier la réorientation de l'aimantation du plan de la couche vers la direction perpendiculaire à la couche (Voir chapitre V). Pour cela, il est impératif que l'anisotropie magnétocristalline soit la plus grande possible. Dans le cas du cobalt, elle est maximale lorsque la structure cristalline est hexagonale compacte.

Après un bref état des lieux de la croissance du ruthénium sur le saphir et du cobalt sur le ruthénium, je décrirai plus en détail les différents constituants du système étudié et je donnerai les données expérimentales recueillies au cours de l'élaboration des différentes couches.

références	technique utilisée
[Far 93]	NH ₄ OH:H ₂ O ₂ :H ₂ O (1:1:100) pendant 2 minutes séchage à l'azote Insertion dans la MBE et recuit à 600°C pendant 20 minutes
[Böd 93, Met]	recuit à 500°C pendant une heure rinçage à l'acétone et à l'isopropanol bombardement avec Ar ⁺ (600 eV, 1 µA/cm ²) pendant 30 minutes recuit à 1100°C
[And 92]	H ₂ SO ₄ :H ₂ O ₂ pendant une heure rinçage H ₂ O recuit à 850°C pendant une heure.
[Mor 94]	nettoyage ultrasons dans de l'acétone et de l'éthanol recuit à 500°C et bombardement ionique

tableau 2.1 : méthodes utilisées pour le nettoyage de la surface du saphir.

élément	référence	température	épaisseur	flux
Ru	[Mau 91]	500°C	20 nm	0.5 Å/s
	[And 92]	600°C	20 nm	0.5 Å/s
Pt	[Far 93]	600°C	3 nm	0.2 Å/s
		>650°C	film non continu	
		<550°C	films continus, mauvaise cohérence dans le plan	
Nb	[Brö 93]	900°C recuit à 950°C	10 nm	0.5 Å/s

tableau 2.2 : conditions de croissance pour différentes couches tampon.

1. TRAVAIL DEJA REALISE DANS LE SUJET

Lors de mon arrivée à l'IPCMS, les équipes du laboratoire n'avaient aucune expérience dans la croissance du ruthénium sur une surface de saphir d'orientation $[1,1,\bar{2},0]$. Il était donc important d'obtenir des informations sur le nettoyage de la surface du substrat ainsi que des meilleures conditions de croissance pour les différentes couches.

1.1. Nettoyage du substrat

Plusieurs solutions sont proposées dans la littérature pour obtenir une surface de saphir propre. Elles sont essentiellement composées de deux techniques qui peuvent être utilisées seules ou en complément l'une de l'autre.

Le nettoyage chimique consiste à simplement dégraisser à l'aide de solvants ou à attaquer par le biais de solutions à base d'acides la surface du saphir. Cette méthode est facile à mettre en oeuvre mais, étant donné que le nettoyage s'effectue sous une hotte, les échantillons sont en contact avec l'air ambiant avant d'être introduits dans la chambre de croissance.

Le nettoyage physique par bombardement ionique sous atmosphère contrôlée suivi d'un recuit à haute température est une autre solution beaucoup plus coûteuse mais néanmoins meilleure. D'une part, la surface des échantillons, une fois nettoyée, n'est plus en contact avec l'atmosphère et, d'autre part, grâce à la pulvérisation physique des espèces présentes en surface, la surface est propre et ne comporte plus de résidus pouvant provenir d'un processus chimique ou d'un polissage mécanique (Si, F, ...).

1.2. Croissance de la couche tampon de ruthénium

Dans l'ensemble, les équipes ayant choisi le saphir comme substrat n'utilisent pas la même couche tampon. Nous n'avons trouvé qu'une seule équipe utilisant le ruthénium [Mau 91, And 92]. Nous avons choisi de maintenir notre choix car le ruthénium est un élément très peu sensible à toute attaque chimique et aux problèmes d'oxydation [Pas 58]. D'autres tampons sont utilisés soit pour leur propriété de transport car, par exemple, le niobium est supraconducteur à basse température, soit pour induire d'autres axes de croissance.

Dans la littérature, les meilleures conditions de croissance sur substrat de saphir ont été obtenues pour des températures de croissance comprises entre 500 et 600°C, avec un flux de 0.5 Å/s et une épaisseur de film de 20 nm (voir tableau 2.2).

1.3. Croissance de la couche de cobalt

Ce dernier paragraphe regroupe l'ensemble des résultats obtenus sur la croissance du cobalt soit sur un tampon de ruthénium, soit directement sur un substrat saphir ou autre. En général, ces publications contiennent un ensemble de résultats sur des tests de croissance en fonction du flux et de la température de dépôt. Dans le tableau 2.3, nous rassemblons les paramètres qui ont permis la croissance de la phase cristalline hexagonale compacte la plus pure.

substrat	référence	technique	température	épaisseur	flux
mica	[Gro 94]	MBE	500°C	100 nm	0.3 Å/s
Ru/mica	[Kri 94] [Kri 94b]	évaporation par canon à électrons	200°C	30 nm	5 à 6 Å/s
saphir	[Brö 93]	MBE	450°C	> 40 nm	0.5 Å/s
saphir	[Mor 91]	sputtering	300°C	120-230 nm	0.5 Å/s
saphir	[Met 93]	MBE	400°C	10-40 nm	0.3 Å/s

tableau 2.3 : conditions de croissance pour la couche de cobalt.

2. STRUCTURE ET ELABORATION DES ECHANTILLONS

2.1. Le substrat : un monocristal de saphir orienté $[1,1,\bar{2},0]$

Les substrats que nous avons utilisés pour le dépôt des tricouches Ru/Co/Ru sont des monocristaux de saphir orientés $[1,1,\bar{2},0]$ provenant de chez INSACO. Ils ont préalablement subi un polissage mécanique et une découpe en carré de $15 \times 15 \text{ mm}^2$ de surface pour une épaisseur de 0.2 mm avec une scie diamantée.

2.1.1. Structure cristallographique du saphir

Le saphir, de composition chimique Al_2O_3 , a une structure rhomboédrique décrite en hexagonal avec pour paramètres de maille $c_0=12.9 \text{ \AA}$ et $a_0=4.76 \text{ \AA}$. Son groupe d'espace est $R\bar{3}c$ et sa cellule élémentaire est représentée dans le figure 2.10.

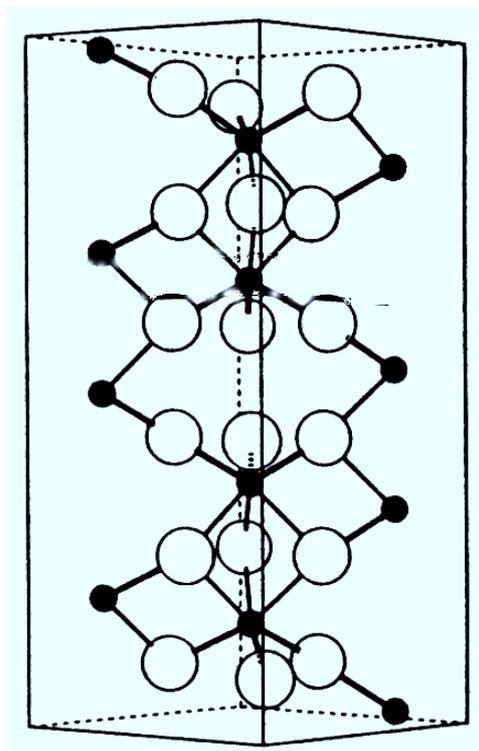


figure 2.10 : cellule élémentaire du saphir. Les disques noirs représentent les atomes d'aluminium et les blancs les atomes d'oxygène. Tiré de [Guo 92].

Dans notre cas, nous avons choisi de déposer le ruthénium sur la surface du saphir orthogonale à la direction $[1,1,\bar{2},0]$ dont les trois derniers plans atomiques ont été représentés dans la figure 2.11. En surface, les deux derniers plans atomiques d'oxygène forment un hexagone qui va initier la croissance du ruthénium dans la structure cristalline hexagonale compacte (0,0,0,1) ou cubique à faces centrées (1,1,1). Cet hexagone est légèrement déformé car les deux plans d'oxygène sont distants de 0.8 Å.

2.1.2. Nettoyage du substrat

Avant tout dépôt, il est nécessaire de nettoyer méticuleusement les saphirs car une surface polluée à l'échelle atomique peut empêcher une croissance épitaxiale ou introduire des défauts d'empilements. Nous avons choisi de nous orienter vers un nettoyage chimique même s'il est moins bien reproductible qu'un nettoyage ionique [Met] qui nécessite un investissement matériel supplémentaire.

Il s'agit d'enlever les impuretés de surface sans altérer le substrat ce qui entraînerait l'apparition d'une rugosité d'interface. La procédure de nettoyage, qui se déroule entièrement sous une hotte à flux laminaire, doit tout d'abord assurer un nettoyage grossier de la surface pour éliminer les résidus de colle, les poussières ..., puis la dissolution de toutes les graisses et autres impuretés. Certains

tests comportent également une attaque chimique de la surface car elle est utilisée par d'autres laboratoires [Gon 94].

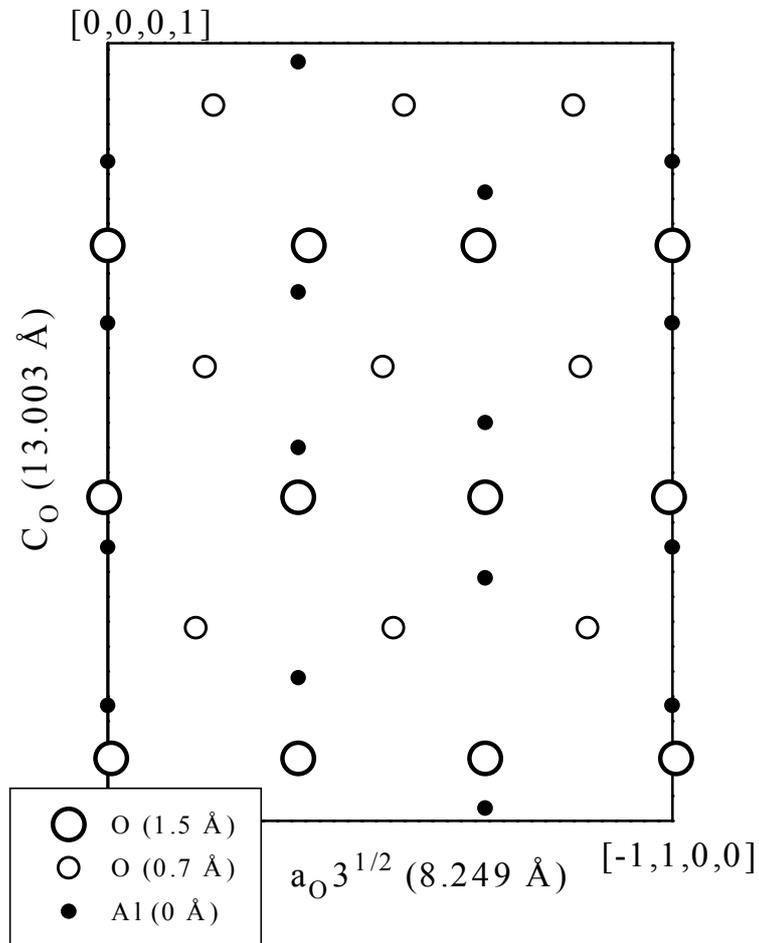


figure 2.11 : les trois derniers plans atomiques de la surface du saphir orthogonale à la direction $[1,1,\bar{2},0]$. Si l'on place le plan des atomes d'aluminium à 0 Å, les deux derniers plans d'oxygène se trouvent à 0.7 et 1.5 Å. On remarque la présence d'un hexagone déformé en surface. Les disques noirs représentent les atomes d'aluminium et les blancs les atomes d'oxygène.

PROCEDURE DE NETTOYAGE DES SUBSTRATS DE SAPHIR

Nettoyage préliminaire

RBS (1/3) + eau distillée ou millipore (2/3)
 passage aux ultrasons pendant 90 mn

Nettoyage

1,1,1 - Trichloroethane bouillant pendant 5 mn - premier bain

1,1,1 - Trichloroethane bouillant pendant 5 mn - second bain

Passage aux ultrasons pendant 20 mn dans le bain

Propan-2-ol rinçage à froid pendant 5 mn

Propan-2-ol bouillant pendant 5 mn - premier bain

Propan-2-ol bouillant pendant 5 mn - second bain

Passage aux ultrasons pendant 20 mn dans le bain

Méthanol rinçage à froid pendant 5 mn

Méthanol bouillant pendant 5 mn - premier bain

Méthanol bouillant pendant 5 mn - second bain

Passage aux ultrasons pendant 20 mn dans le bain

Rinçage

Rinçage à l'eau distillée

Changement de l'eau et passage aux ultrasons pendant 10 mn

Changement de l'eau et passage aux ultrasons pendant 15 mn

Changement de l'eau et passage aux ultrasons pendant 15 mn

Changement de l'eau et passage aux ultrasons pendant 20 mn

rem : attaque avec un mélange acide

Il faut prendre la procédure de nettoyage normale et y adjoindre

H_2SO_4 (25%) + H_2O_2 (25%) + H_2O (50%)

passage aux ultrasons dans le bain pendant 15 mn

rinçage à l'eau distillée

changement d'eau et passage aux ultrasons 10 mn

figure 2.12 : procédure de nettoyage à suivre pour des saphirs d'orientation $[1,1,\bar{2},0]$.

La procédure de nettoyage actuelle des substrats repose essentiellement sur l'utilisation d'ultrasons de forte puissance afin de décoller efficacement les résidus de colle et de l'alternance de température et de solvants pour dégraisser efficacement la surface. L'ensemble des étapes est rassemblé dans la figure 2.12.

Lorsque les saphirs sont propres, ils sont placés sur le porte échantillon qui sera alors transféré dans la chambre de dépôt. Sa mise en température se déroule en deux étapes. Tout d'abord un palier à 400°C pendant 2 heures entraîne l'évaporation de l'eau accumulée à la surface des substrats, puis, un palier à 900°C permet d'évacuer les dernières molécules adsorbées.

2.2. La couche tampon de ruthénium.

Nous savons qu'il est possible de faire croître le cobalt directement sur saphir [Brö 93] mais l'adjonction d'une couche tampon de ruthénium rend possible la gravure de toute la couche de cobalt sans altérer le substrat de saphir. De plus, le dépôt d'autres multicouches étudiées au laboratoire nécessitant une couche tampon devrait se généraliser sur saphir car, comme nous allons le voir, les caractéristiques des tampons sont bien meilleures que celles obtenues sur mica, substrat utilisé jusqu'à présent au laboratoire.

2.2.1. Optimisation du dépôt

Parmi tous les paramètres ajustables pour des tests de dépôt, nous avons choisi d'en faire varier et d'en optimiser trois. Tout d'abord, nous avons choisi de nettoyer les saphirs avec ou sans attaque chimique car, dans la littérature, elle est ou n'est pas utilisée. Puis, nous avons également changé le flux des atomes incidents pour des valeurs égales à 0.05 Å/s utilisée couramment au laboratoire pour les dépôts ou à 0.5 Å/s obtenue par lecture de différentes publications. Pour finir, la gamme des températures de croissance testées s'étend de 600°C à 1035°C.

2.2.2. Analyse RHEED

L'étude qualitative des diagrammes RHEED pour chaque dépôt a révélé des conditions optimales de croissance pour une température de dépôt proche de 900°C avec un flux égal à 0.05 Å/s pour un échantillon qui n'a pas été attaqué chimiquement.

Les autres ensembles de paramètres ne conviennent pas et des tendances ont pu être déduites. Tout d'abord, lorsque les échantillons ont subi une attaque chimique, les diagrammes RHEED obtenus après dépôt à 600°C sont composés d'une superposition de deux réseaux de barres pointées caractéristiques d'une croissance tridimensionnelle. La coexistence de deux azimuts différents et d'anneaux est caractéristique d'une forte mosaïcité planaire. Lorsque la température de croissance augmente, la structure en anneaux disparaît mais la coexistence des deux azimuts est maintenue (figure 2.13a). La couche est alors composée de grains texturés selon l'axe de croissance mais

désorientés les uns par rapport aux autres dans le plan de la couche. Lorsque les saphirs ne subissent pas d'attaque chimique, les diagrammes RHEED sont composés d'un réseau de barres pointées après un dépôt à 600°C (figure 2.13b). La croissance tridimensionnelle se transforme peu à peu en une croissance bidimensionnelle lorsque la température est amenée à 900°C. Alors, avec un flux de 0.05 Å/s, le diagramme RHEED est composé de barres intenses sur toute leur longueur (figure 2.13c). Pour des températures encore plus élevées, deux réseaux de barres réapparaissent signe de la coexistence de deux azimuts.

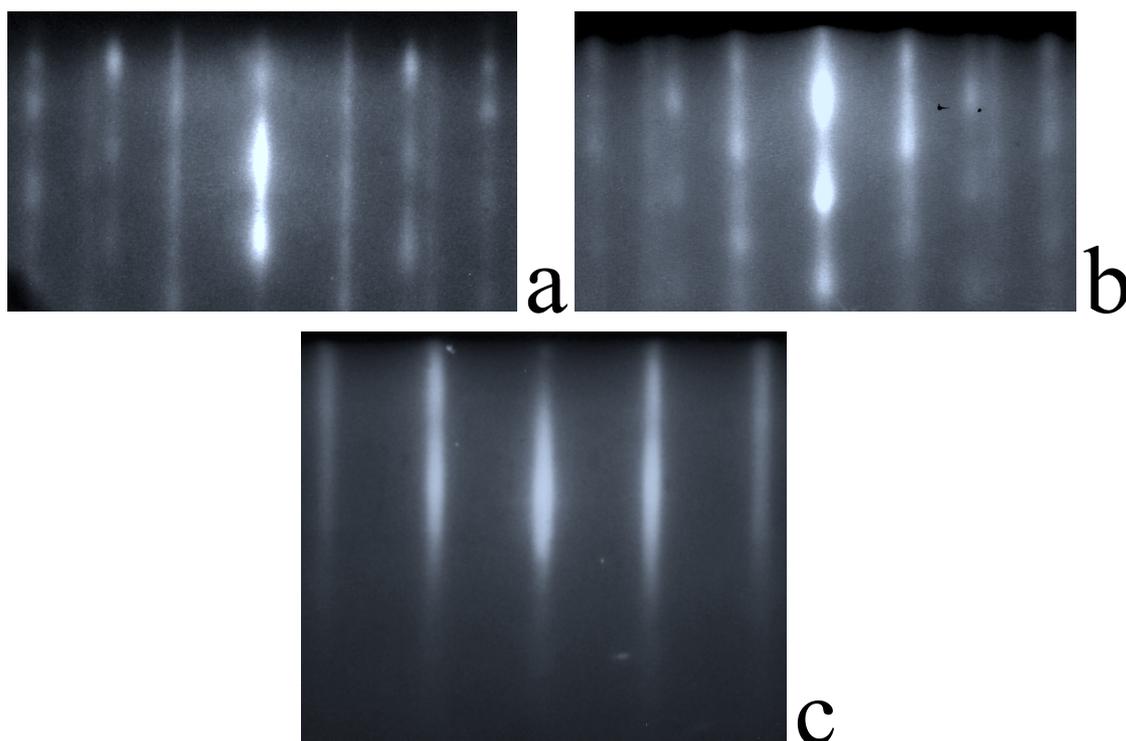


figure 2.13 : diagramme RHEED de la couche tampon de ruthénium dans la direction $[1,1,\bar{2},0]$ pour (a) un échantillon attaqué chimiquement, un flux de dépôt de 0.05 Å/s et une température de croissance de 900°C, (b) un échantillon qui n'a pas été attaqué chimiquement, un flux de dépôt de 0.05 Å/s et une température de croissance de 600°C et (c) un échantillon qui n'a pas été attaqué chimiquement, un flux de dépôt de 0.05 Å/s et une température de croissance de 900°C.

2.2.3. Analyse aux rayons X

L'étude des couches de ruthénium aux rayons X a fourni de précieux renseignements sur la qualité de ces échantillons et a confirmé l'analyse qualitative des diagrammes RHEED. Les résultats de ces mesures sont reportés sur la figure 2.14 qui trace l'évolution de la largeur à mi-hauteur, FWHM, du pic du ruthénium en rocking curve et en θ -2 θ en fonction de la température du dépôt pour les différents échantillons.

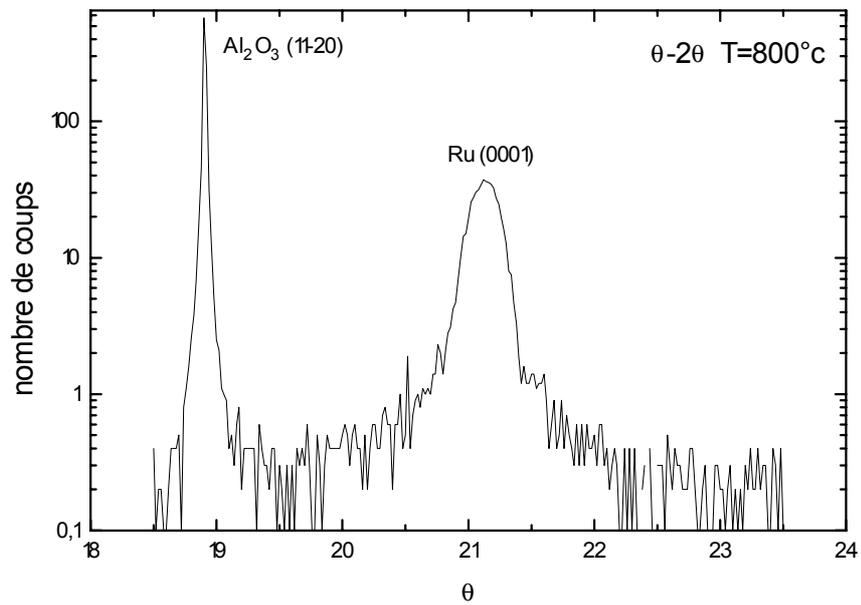


figure 2.15a : diagramme θ - 2θ pour l'échantillon élaboré à 800°C

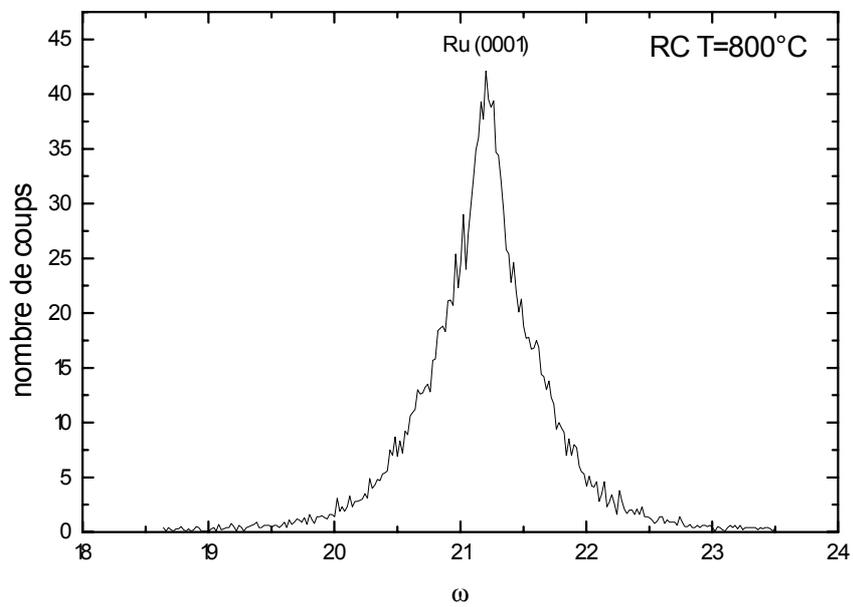


figure 2.15b : rocking curve pour l'échantillon élaboré à 800°C

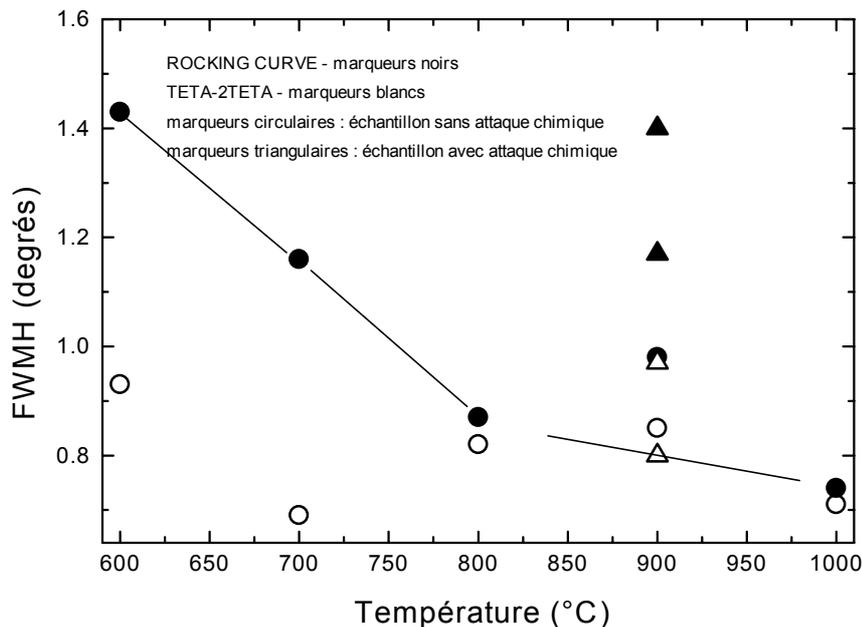


figure 2.14 : évolution des largeurs à mi-hauteur du pic du ruthénium en rocking curve et en θ - 2θ en fonction des différentes conditions de préparation des échantillons. Résultats obtenus avec une longueur d'onde égale à 2.29 Å.

Une analyse rapide de cette figure permet de classer les échantillons en deux catégories distinctes, ceux qui ont été attaqués chimiquement et ceux qui ne l'ont pas été.

Lorsque les échantillons n'ont pas subi d'attaque chimique, la largeur à mi-hauteur du pic de la rocking curve diminue lorsque la température augmente (●). La mosaïcité devient de plus en plus petite et la longueur de cohérence planaire de plus en plus grande. La qualité cristalline de la surface du tampon est donc meilleure à haute température. La FWHM du diagramme θ - 2θ quant à elle fluctue autour de 0.8° (○). Cette valeur est stable et montre que la longueur de cohérence est quasiment égale à l'épaisseur totale de la couche de ruthénium. Les longueurs de cohérence, L , peuvent être déterminées à partir des FWHM du pic de ruthénium sur les rocking curve pour la longueur de cohérence planaire, L_{\parallel} , ou sur les diagrammes θ - 2θ pour la longueur de cohérence perpendiculaire, L_{\perp} . La longueur de cohérence dans le plan pour l'échantillon préparé à 800°C est au moins égale à 81 Å et celle selon l'axe de croissance, égale à 160 Å, est approximativement égale à l'épaisseur de la couche (200 Å). Lorsque la température de croissance augmente, la longueur de cohérence selon l'axe de croissance est toujours égale à l'épaisseur totale de la couche alors que celle dans le plan augmente et est au moins égale à 95 Å.

Il semble donc que la qualité cristalline dans le plan, qui est la plus importante pour le dépôt de la couche de cobalt, soit accrue à haute température. Pour assurer la croissance d'une couche tampon de bonne qualité cristalline, nous avons décidé d'utiliser une température égale à 900°C et un flux égal à 0.05 Å/s comme paramètres de croissance pour des échantillons non attaqués chimiquement.

Lorsque les échantillons sont attaqués chimiquement, les valeurs de FWHM sont plus élevées que pour les échantillons non attaqués surtout dans le cas des rocking curve (▲). La taille des grains dans le plan de la couche est beaucoup plus petite ou la mosaïcité est beaucoup plus grande que pour des échantillons qui n'ont pas été attaqués chimiquement. Dans la suite de cette étude, le nettoyage des substrats sera donc réalisé sans attaque chimique.

2.2.4. Couche tampon de ruthénium après optimisation des conditions de croissance

Suite à ces essais, la température de croissance a été fixée à 900°C, le flux de dépôt à 0.05 Å/s et l'épaisseur de ruthénium à 200 Å. Avant les dépôts, la pression résiduelle était toujours de l'ordre de quelques 10^{-11} Torr.

Les diagrammes RHEED mesurés sont très proches de ceux d'une surface parfaite : les barres sont fines, les points de surintensité sont quasiment inexistantes et répartis suivant un arc de cercle. Nous avons également pu montrer qu'en laissant les substrats pendant quelques heures sans couverture dans le bâti, une reconstruction 2×2 était créée. Cette dernière montre que, d'une part, la surface de la couche tampon est très plane et, d'autre part, qu'il n'y a pas de gaz adsorbé à la surface de l'échantillon avant le dépôt de la couche de cobalt [Gra 70].

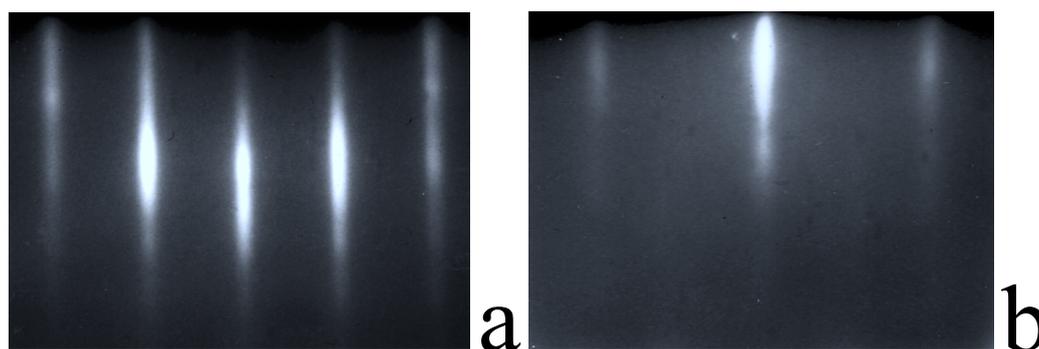


figure 2.16 : diagrammes RHEED obtenus après optimisation des paramètres de croissance de la couche tampon de ruthénium pour (a) l'azimut $[1,1,\bar{2},0]$ et (b) l'azimut $[1,0,\bar{1},0]$.

2.3. La couche de cobalt

Les tests de dépôt ont été menés dans une gamme de températures comprises entre 300 à 500°C pour un flux égal à 0.1 ou 0.2 Å/s. Les meilleurs résultats ont été obtenus pour une température de 400°C et un flux de dépôt égal à 0.2 Å/s.

2.2.1. Analyse RHEED

Les diagrammes RHEED observés selon l'azimut $[1,1,\bar{2},0]$ pour différentes épaisseurs de cobalt ont été reportés sur la figure 2.17. Comme nous pouvons le voir sur les figures 2.17a et 2.17b, la surface du cobalt présente une reconstruction 2×2 pour les échantillons les plus fins. L'azimut $[1,0,\bar{1},0]$ n'a pas été représenté sur cette figure car la reconstruction par 2 n'est pas visible sur les clichés. Bridge et collaborateurs ont montré qu'à partir d'une surface de cobalt massif exempte d'impuretés, qui ne présente pas de reconstruction, la contamination de la surface par du CO entraîne l'apparition de différents types de reconstruction suivant la densité de CO [Brid 77]. Dans la figure 2.17b, les barres qui apparaissent dans la seconde zone de Laue de la surface de cobalt représentent clairement la troisième zone de Laue de la surface reconstruite.

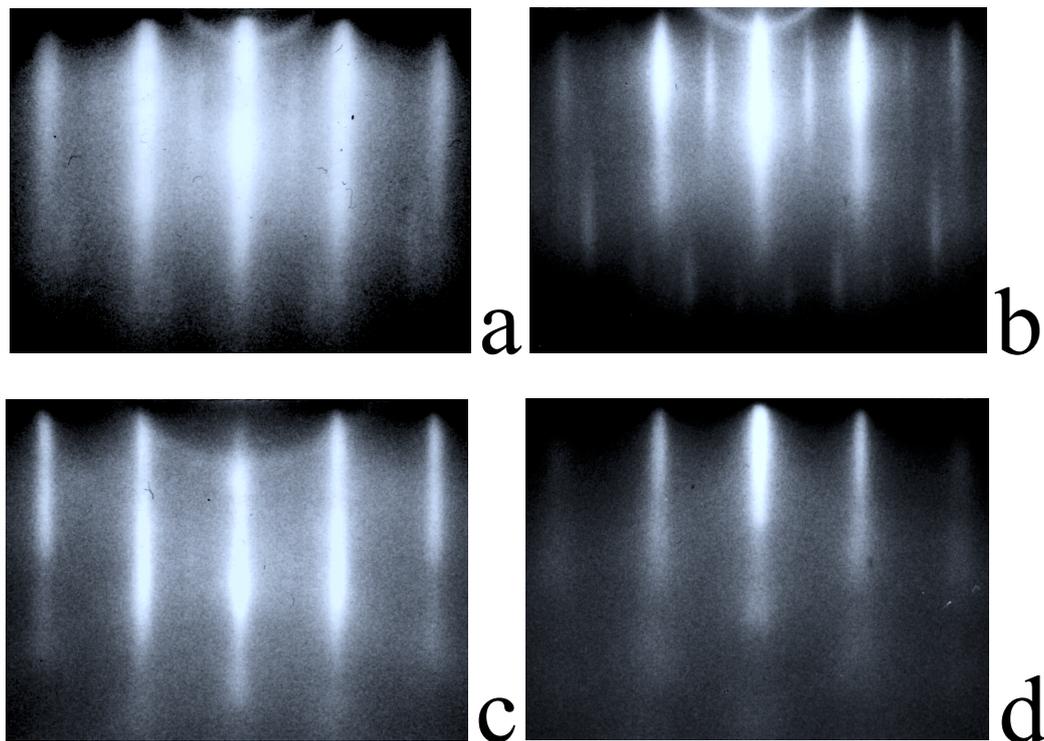


figure 2.17 : diagrammes RHEED selon l'azimut $[1,1,\bar{2},0]$ pour des couches de cobalt de (a) 10 nm (b) 100 nm (c) 150 nm et (d) 300 nm d'épaisseur déposées à 400°C avec un flux de 0.2 Å/s

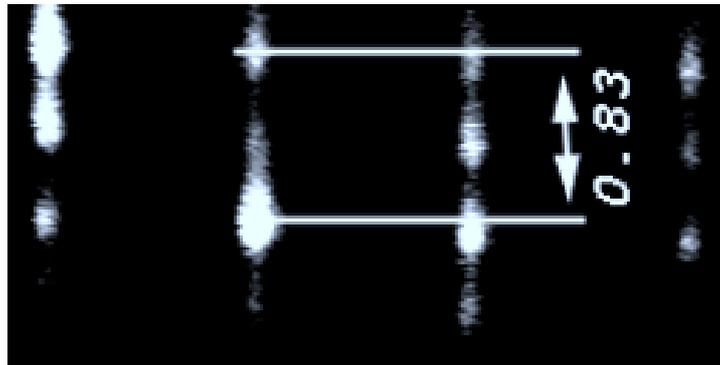


figure 2.18 : diagramme RHEED selon l'azimut $[1,1,\bar{2},0]$ pour une couche de cobalt de 200 nm d'épaisseur déposée à 400°C avec un flux de 0.2 Å/s. L'image a été travaillée numériquement pour augmenter les contrastes.

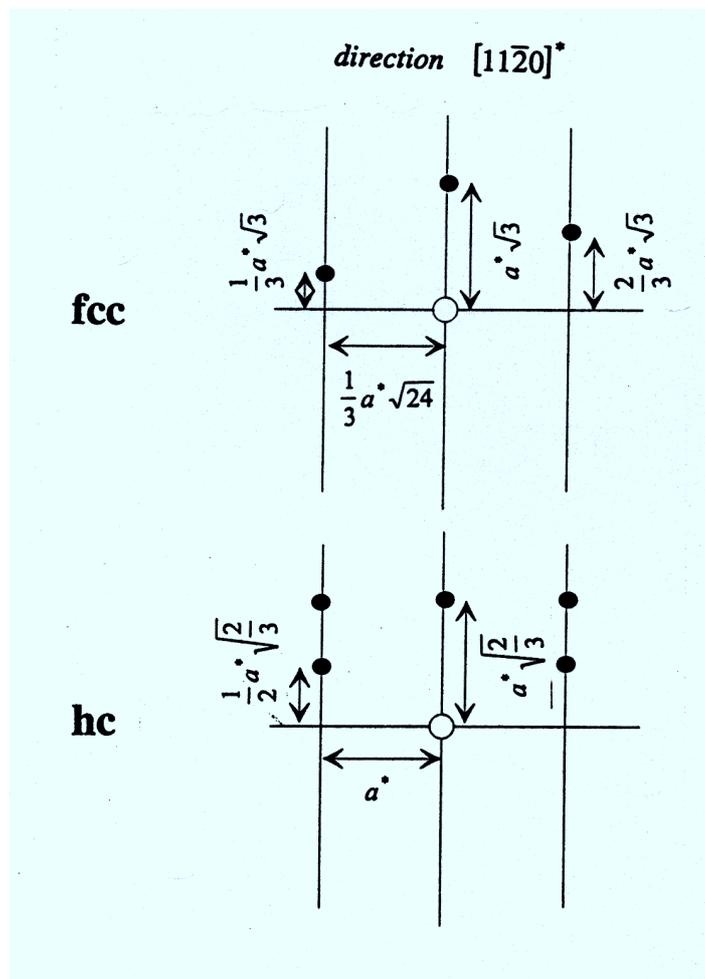


figure 2.19 : diagrammes RHEED selon l'azimut $[1,1,\bar{2},0]$ pour une structure cristalline cubique à faces centrées et hexagonale compacte.

En effet, d'après les conditions d'extinction des taches de diffraction pour les deux structures cristallines possible du cobalt, nous ne devrions pas voir apparaître de barres dans la seconde zone de Laue. Par contre, si la surface est reconstruite, alors le paramètre de maille de la reconstruction est deux fois plus grand que celui de la couche de départ. La troisième zone de Laue de la reconstruction se trouve alors dans la seconde zone de Laue de la couche non reconstruite et les taches de diffraction observées dans le diagramme RHEED proviennent donc de la troisième zone de Laue de la surface reconstruite.

Lorsque l'épaisseur de cobalt augmente, le diagramme devient de plus en plus pointé alors que la reconstruction de surface disparaît. Cette situation est caractéristique de l'augmentation de la rugosité de surface du film. En effet, tout d'abord, l'extension latérale des marches planes décroît ce qui rend le diagramme pointé mais la reconstruction est maintenue. Puis, les marches planes deviennent si petites que le nombre de cellules reconstruites n'est plus suffisant pour créer une figure de diffraction entraînant ainsi la disparition de la figure de diffraction de la reconstruction.

Afin de déterminer la structure cristalline du cobalt en surface avant qu'il ne soit recouvert de sa couche de protection de ruthénium, nous avons réalisé une analyse tridimensionnelle du diagramme RHEED à partir de la position des taches de diffraction sur les barres [Hen 93]. Le diagramme de la figure 2.18 a été obtenu pour une couche de 200 nm d'épaisseur après avoir augmenté le contraste de l'image à l'aide d'un logiciel de traitement d'image pour définir avec précision la position des taches sur chaque barre.

Nous constatons que le rapport des distances entre deux taches consécutives sur la barre du spéculaire et entre deux barres premières voisines est égal à 0.83. Cette valeur est à comparer avec celle des structures hexagonale compacte et cubique à faces centrées. A partir de la figure 2.19 qui rassemble l'ensemble des distances inter-taches, nous obtenons des rapports théoriques égaux à 0.82 et 1.06 pour les structures hexagonale et cubique faces centrées respectivement. Etant donné que la valeur expérimentale et le cliché de diffraction sont très proches de ceux de l'hexagonal compacte, la structure de surface des couches de cobalt est hexagonale compacte.

2.2.2. Analyse aux rayons X

Les couches de cobalt ont été étudiées par diffraction de rayons X en géométrie symétrique pour l'obtention des longueurs de cohérence cristalline et en géométrie asymétrique pour mettre en évidence l'existence d'une phase hexagonale unique.

2.2.2.1. Informations en géométrie symétrique

Dans la géométrie $\theta/2\theta$, nous avons exploré la région du réseau réciproque située autour du pic de diffraction $(2,2,2)$ cfc / $(0,0,0,4)$ hc qui correspond à l'angle double du pic de diffraction $(1,1,1)$ cfc /

(0,0,0,2) hc. Nous avons choisi de nous caler sur cet ordre de diffraction car à l'angle simple, comme nous le voyons sur la figure 2.20, la séparation angulaire des deux maxima est trop petite pour déterminer sans ambiguïté la ou les phases cristallines présentes dans l'échantillon.

Comme nous pouvons le voir sur la figure 2.20 en incrustation, les diagrammes de diffraction ne sont composés que d'un seul pic localisé à la position angulaire attendue pour l'empilement hexagonal. A partir de ces courbes, nous avons pu montrer que la longueur de cohérence des couches de cobalt selon la direction de l'axe de croissance est égale à environ 80% de l'épaisseur totale du film.

Dans le cas des rocking curves, c'est à dire en géométrie $\omega/2\theta$ symétrique, nous nous sommes positionnés autour du pic de Bragg (0,0,0,2) du cobalt hc. A partir de ces mesures, nous obtenons les informations relatives à la mosaïcité et la longueur de cohérence planaire de la couche de cobalt. En négligeant la désorientation de l'axe de croissance, la longueur de cohérence dans le plan de la couche est comprise entre 20 et 30 nm.

2.2.2.2. Informations en géométrie asymétrique

La structure hexagonale compacte du cobalt a également été confirmée par un ensemble de mesures réalisé en dehors de l'axe de croissance. Afin d'obtenir le maximum d'intensité diffractée tout en respectant la géométrie du dispositif expérimental qui ne permet que des expériences en réflexion, nous avons choisi d'étudier la zone représentée dans le rectangle de la figure 2.21. Dans cette fenêtre, nous pouvons distinguer les taches de diffraction (1,1,3) du cfc et $(1,0,\bar{1},3)$ du hc qui peuvent être reliées par une ligne diffuse à Q_y fixe si la structure cristalline contient des fautes d'empilement.

Nous montrons que pour les couches d'épaisseurs égales à 50 et 500 nm, seule la phase cristalline hexagonale est présente dans la couche (figures 2.22 et 2.23). De plus, nous montrons que la position angulaire du maximum du pic de diffraction est légèrement décalée par rapport à celui du cobalt massif dans la direction de balayage planaire. Ce décalage provient de contraintes cristallines planaires qui ont été estimées à environ 1%.

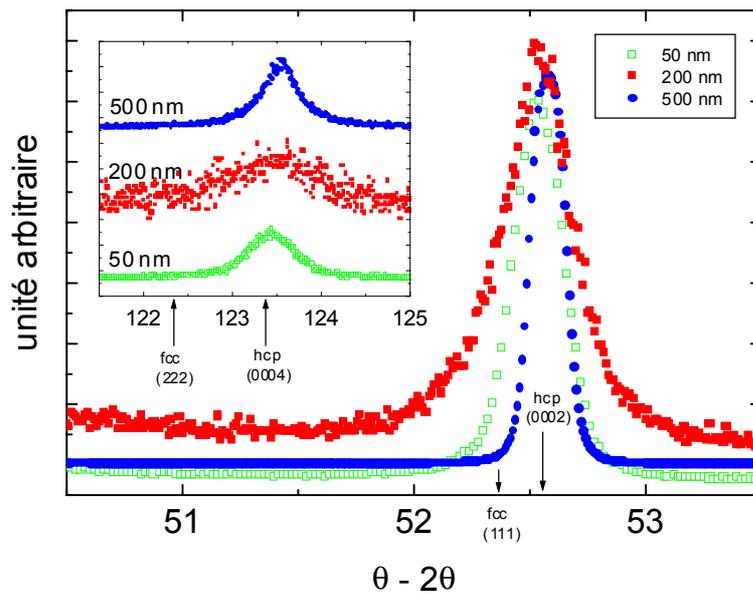


figure 2.20 : diagrammes de diffraction à l'angle simple en géométrie $\theta/2\theta$ pour des couches d'épaisseur égale à (a) 50 nm (b) 200 nm et (c) 500 nm. En incrustation, les diagrammes obtenus à l'angle double.

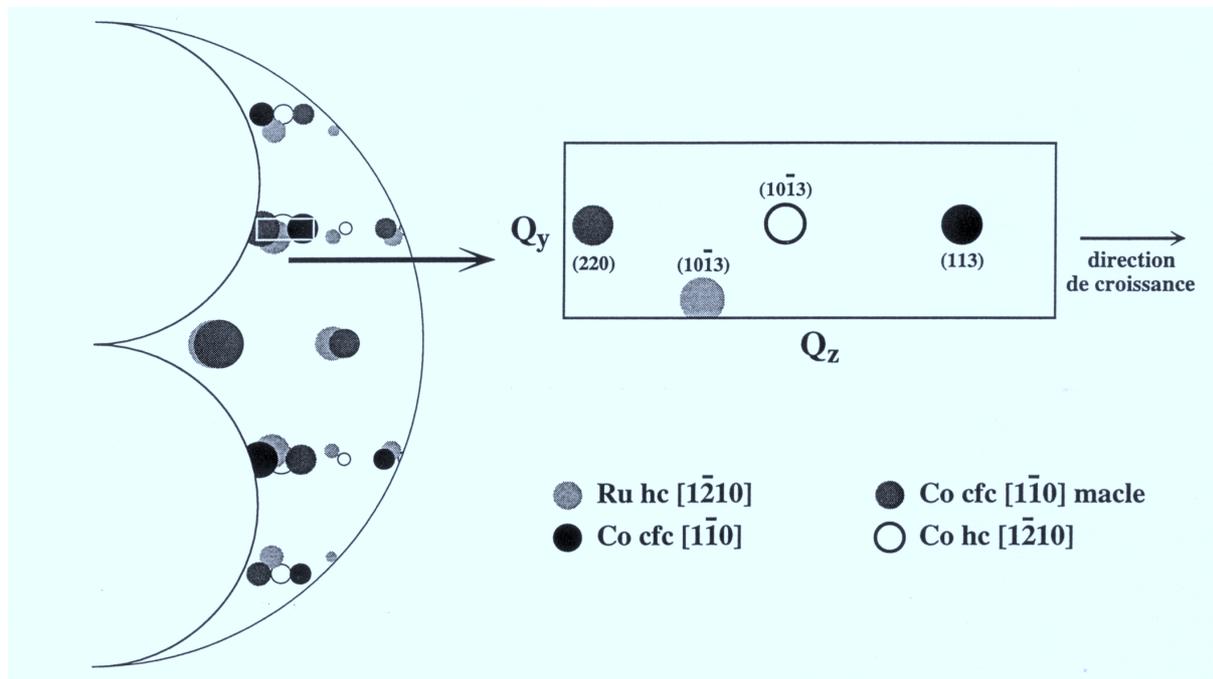


figure 2.21 : diffraction de rayons X. Région du plan $(1, \bar{1}, 0)$ ou $(1, \bar{2}, 1, 0)$ du réseau réciproque du cobalt cfc $(1, 1, 1)$ ou hc $(0, 0, 0, 1)$ pouvant être atteinte expérimentalement avec un faisceau de longueur d'onde égale à 1.5406 \AA et agrandissement de la zone choisie pour être explorée. Tiré de [Hen 95].

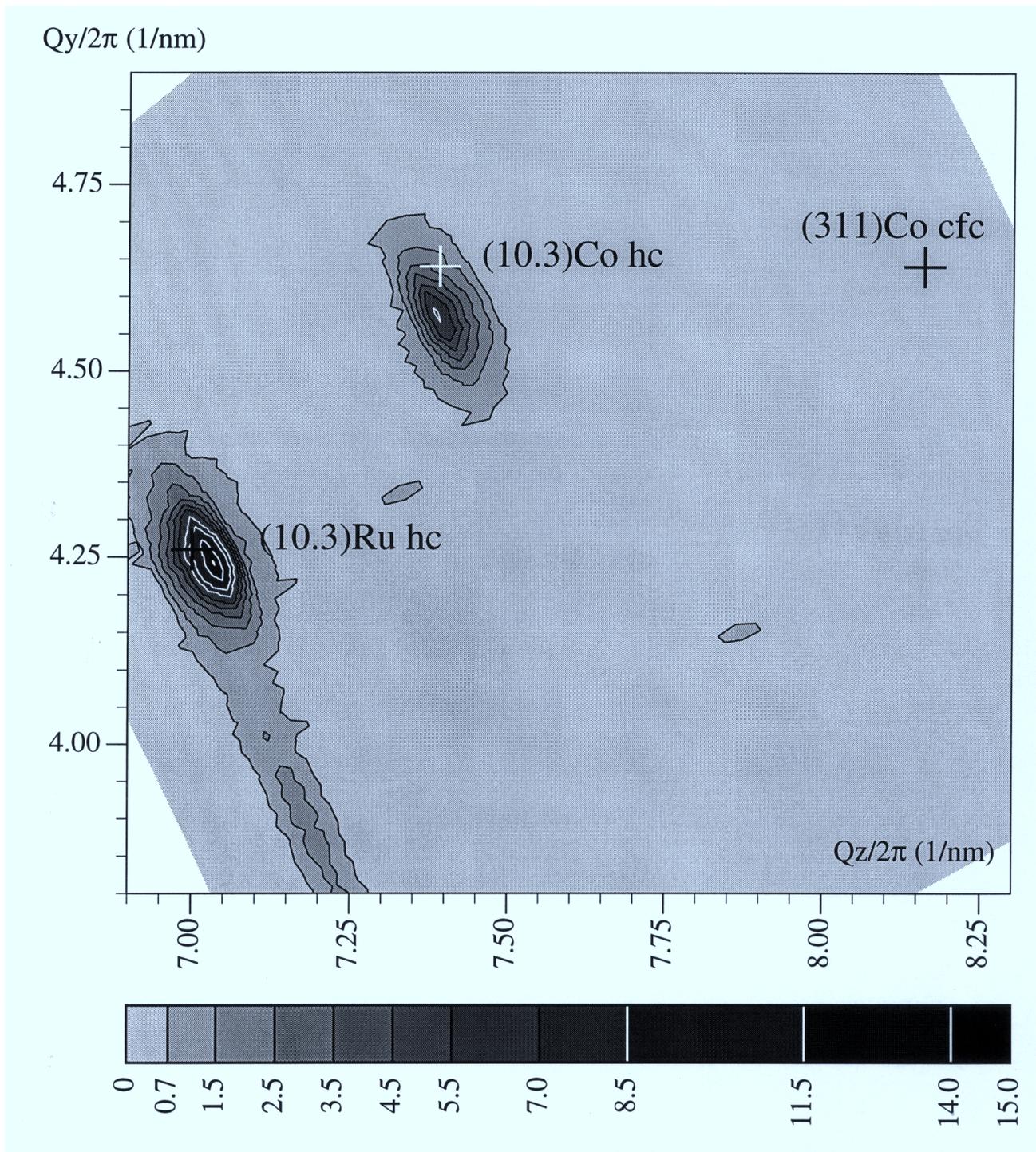


figure 2.22 : intensité mesurée sur la zone représentée en figure 2.21 pour une couche de 50 nm d'épaisseur. Les croix représentent, de gauche à droite, les positions attendues des pics du ruthénium hc, du cobalt hc et du cobalt cfc.

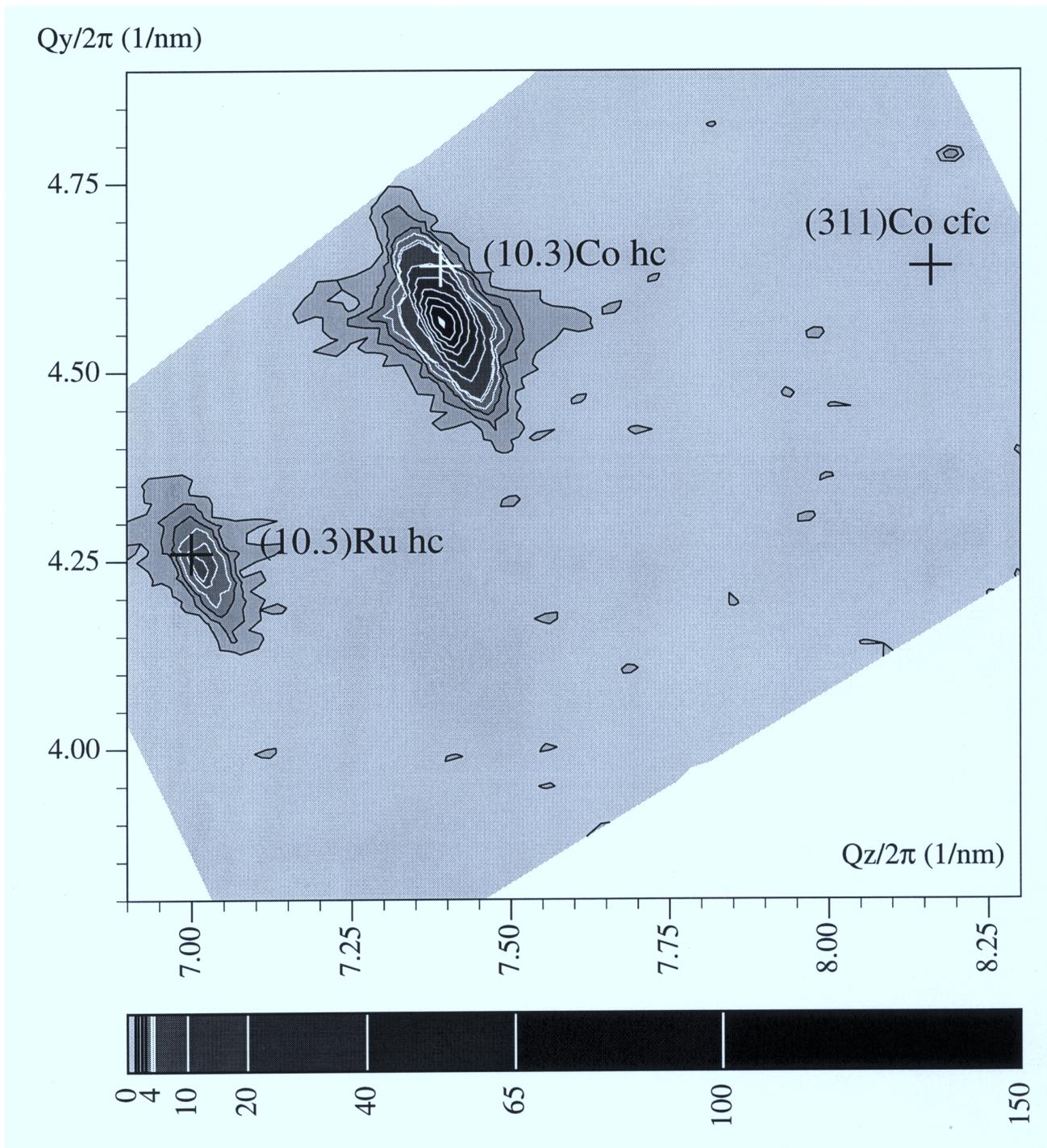


figure 2.23 : intensité mesurée sur la zone représentée en figure 2.21 pour une couche de 500 nm d'épaisseur. Les croix représentent, de gauche à droite, les positions attendues des pics du ruthénium hc, du cobalt hc et du cobalt cfc.

2.2.3. Analyse de la topographie

Pour finir, la congruence de la surface a été mesurée par microscopie de force atomique. Dans la figure 2.24, nous donnons les images obtenues pour les échantillons de 25 et 500 nm d'épaisseur. Lors de l'interprétation de ces images, nous devons toujours garder à l'esprit que la couche de cobalt a été recouverte par une couche de 5 nm d'épaisseur de ruthénium. La rugosité mesurée est donc différente de celle de la surface libre de cobalt. Cependant, nous savons que le ruthénium ne mouille pas le cobalt [Sto 92] ainsi, la rugosité du système doit augmenter après le dépôt de la couche de ruthénium. Les valeurs mesurées donnent donc certainement une limite supérieure de la rugosité de la couche de cobalt nue.

Malgré le dépôt de cette couche et de la difficulté de l'interprétation des images, des tendances ont pu être mises à jour. Alors que la rugosité pic à pic est quasiment indépendante de l'épaisseur du film, la taille latérale des grains augmente avec l'épaisseur du film de cobalt de 0.1 μm pour l'échantillon le plus fin à 0.5 μm pour la couche de 500 nm d'épaisseur. Il n'y a pas d'évolution claire de la rugosité avec l'épaisseur mais la rugosité moyenne et la valeur RMS de la rugosité sont égales et augmentent avec l'épaisseur du film de 0.5 nm à 3.5 nm. Ainsi, l'étude AFM confirme l'interprétation de la dégradation des diagrammes RHEED avec l'épaisseur du film.

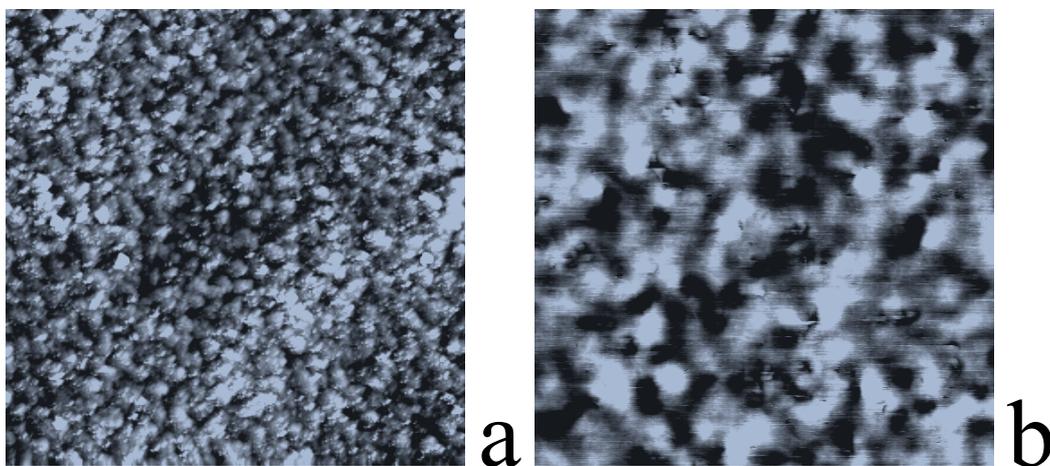


figure 2.24 : images obtenues à l'aide d'un microscope à force atomique pour des couches de (a) 25 et (b) 500 nm d'épaisseur. La taille des images est égale à $5 \times 5 \mu\text{m}$ □

Références chapitre II

- [And 92] S. Andrieu, M. Piecuch et J. F. Bobo, *Phys. Rev. B* **46** (1992), 4909
- [Arb 93] A. Arbaoui, thèse de doctorat, Université Strasbourg I (1993).
- [Böd 93] P. Bödeker, A. Abromeit, K. Bröhl, P. Sonnetag, N. Metoki et H. Zabel, *Phys. Rev. B* **47** (1993), 2353.
- [Bri 77] M. E. Bridge, C. M. Comrie et R. M. Lambert, *Surface Science* **67**, 393 (1977).
- [Brö 93] K. Bröhl, P. Bödeker, N. Metoki, A. Stierle et H. Zabel, *J. of crystal growth*, **127** (1993) 682-685.
- [Cha 90] C. Chatillon et J. Massies, dans *Metallic Multilayers*, édité par A. Chamberod et J. Hillairet, *Materials Science Forum Vols 59 & 60* (Trans Tech Publications, 1990), pp 229-286.
- [Cho 85] A. Y. Cho, *the technology and physics of molecular beam epitaxy*, édition Parker E. H. C., Plenum 1985.
- [Far 93] R. F. C. Farrow, G. R. Harp, R. F. Marks, T. A. Rabedeau, M. F. Toney, D. Weller, S S. P. Parkin, *J. of crystal growth*, **133** (1993) 47-58.
- [Gon 94] H. A. M. de Gonckel, P. J. H. Bloeman, E. A. M. van Alphen and W. J. M. de Jonge, *Phys. Rev. B* **49** (1994)
- [Gra 70] J. T. Grant et T. W. Haas, *Surface Science* **21**, 76 (1970).
- [Gui 64] A. Guinier, *Théorie et technique de la radiocristallographie*, (3ème édition), Dunod, Paris (1964).
- [Guo 92] J. Guo, H. L. M. Chang et D. J. Lam, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 3116 (1992).
- [Hen 93] Y. Henry, C. Mény, A. Dinia et P. Panissod, *Phys. Rev. B* **47**, 15037 (1993).
- [Hen 95] Y. Henry, thèse de doctorat, Université Strasbourg I (1995).
- [Kri 94] K. M. Krishnan, Y. Honda, Y. Hirayama et M. Futamoto, *Appl. Phys. Lett* **64** (1994), 1499.
- [Kri 94b] K. M. Krishnan, T. Takeuchi, D. M. Donnet et K. Tanahashi, *J. Appl. Phys.* **75** (1994), 7579.
- [Lan] L. Landau et E. Lifchitz, *Théorie du champ*, éditions de la paix, Moscou.
- [Mau 91] M.Maurer, M.Piecuch, M.F.Ravet, J.C.Ousset, L.P.Sanchez, C.Aaron, J.Dekoster, D.Raoux, A.De Andres, M.De Santis, A.Fontaine, F.Baudelet, J.L.Rouvière, B.Dieny, *J. of Magnetism and Magnetic Materials* **93** (1991), 15.
- [Met] N.Metoki, W.Donner, H.Zabel, submitted to *Physical Review B*
- [Met 93] N.Metoki, Th. Zeidler, A. Stierle, K. Bröhl et H.Zabel, *J. of Magnetism and Magnetic Materials* **118** (1993), 57.
- [Mic 95] A. Michel, thèse de doctorat, Université Strasbourg I (1995).

- [Mor 91] C. Morawe, A. Stierle, N. Metoki, K. Bröhl et H. Zabel, *J. of Magnetism and Magnetic Materials* **102** (1991), 223.
- [Mor 94] C. Morawe, A. Abromeit, N. Metoki, P. Sonntag et H. Zabel, *J. Mater. Res.* **9** (1994), 570.
- [Mul 92] D. Muller, K. Ounadjela, P. Venegues, V. Pierron-Bohnes, A. Arbaoui, J. P. Jay, A. Dinia et P. Panissod, *J. Mag. Mag. Mat.* **104**, 1873 (1992).
- [Pas 58] P. Pascal, *Nouveau traité de chimie minérale*, Ed. Masson et Cie, tome 19, page 37.
- [Sta 87] P. Stadelmann, *Ultramicroscopy* **21**, 131 (1987).
- [Sto 92] D. Stoeffler et F. Gautier, *Structural and phase stability of alloys*, Ed. Plenum Press, New York (1992), pages 181-197.

CHAPITRE III

Fabrication des microstructures

L'étude de micro ou nanostructures magnétiques passe nécessairement par une étape de fabrication et de caractérisation structurale. Différentes techniques de fabrication ont pu être mises au point suivant les études menées. Pour de petits agrégats, les utilisations d'une diffusion contrôlée de surface [Röd 93], d'une coévaporation de deux matériaux [Azi 95], d'une source de clusters obtenus par vaporisation laser [Dup 94] ou d'un dépôt à partir d'une pointe d'un microscope à force atomique [Hsi 94] permettent d'obtenir des nanostructures contenant de quelques atomes à quelques milliers d'atomes. D'autres méthodes, moins utilisées, ont également été mises au point à partir de zéolites, d'irradiation par faisceau d'ions lourds.... Lorsque le nombre d'atomes mis en jeu devient plus grand, d'autres techniques sont utilisées, en particulier les techniques classiques de lithographie de la micro-électronique. Ces dernières permettent de choisir les tailles et formes des éléments à étudier ainsi que leur répartition avec une très grande précision. Evidemment, ce sont des techniques lourdes mais qui assurent une grande reproductibilité des objets fabriqués. Nous comptons parmi ces techniques la lithographie électronique [Smy 91] ou par faisceau d'ions focalisé [Fis 86, Sud 88] qui permettent d'obtenir des éléments d'une dizaine de nanomètres de côté sur de petites surfaces en raison d'un temps d'écriture très long. La superficie des réseaux de petits éléments peut être accrue au détriment de la taille latérale des petits éléments. Les techniques de lithographie optique et par rayons X permettent d'obtenir des réseaux d'éléments sur de grandes surfaces, typiquement quelques mm², avec des résolutions ultimes de 0.35 μm pour la lithographie optique et de 0.1 μm à 50 nm pour la lithographie X [Rou 92]. Cependant, même dans le cas de la lithographie X, les temps et coût de fabrication restent importants. C'est pourquoi, les recherches s'orientent vers des méthodes d'élaboration plus rapides et moins coûteuses, dont la distribution spatiale est moins régulière, mises au point à partir d'électrodéposition de matériaux magnétiques dans des membranes poreuses [Blo 94] ou de tir d'électrons dans des résines [Mir 97].

Dans le cadre de cette thèse, nous avons pu utiliser la lithographie par rayons X car cette technique nous était ouverte par le Laboratoire de Microstructures et Micro-électronique (L2M) du CNRS à Bagneux dans le cadre du GdR 1163 « Nanostructures Magnétiques ». En effet, ce laboratoire a développé cette technique depuis 1986 et possède un savoir faire pour la réalisation de masques X et

une expérience de lithographie performante installée sur le rayonnement synchrotron délivré par l'anneau de stockage de LURE « Super-ACO ». L'étape de lithographie est suivie d'une étape de gravure ionique sèche réalisée avec le concours de l'Institut d'Electronique Fondamentale (IEF) à Orsay. Après avoir décrit les deux techniques de fabrication ainsi que la technique de caractérisation chimique, le microscope Auger, nous passerons à la présentation des résultats expérimentaux.

A. METHODES EXPERIMENTALES D'ELABORATION ET DE CARACTERISATION DES PLOTS DE COBALT.

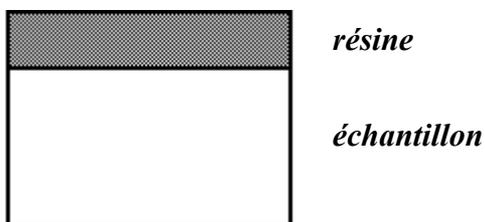
L'objectif de cette partie est la description des différentes techniques de microfabrication utilisées en soulignant leurs avantages et inconvénients. Dans une première partie, j'exposerai les principes généraux de la lithographie en m'étendant davantage sur la lithographie par rayons X et je décrirai ensuite la technique de gravure ionique sèche.

1. LA LITHOGRAPHIE PAR RAYONS X

1.1. Principe de la lithographie

Le principe de la photolithographie est de projeter l'image d'un masque dans un film photosensible qui servira de masque pour des traitements ultérieurs. Ce film est un polymère dont les propriétés physiques sont modifiées en l'éclairant par un rayonnement électromagnétique. Le procédé comprend essentiellement 3 étapes :

1.1.1. L'enrésinement



Cette étape consiste à déposer la résine photosensible sur l'échantillon à lithographier en films minces d'épaisseurs comprises entre 0.2 et 2 μm . L'utilisation d'un plateau, appelé tournette, tournant à grande vitesse permet d'étaler des couches d'épaisseur bien contrôlée.

figure 3.1a : dépôt de la résine sur l'échantillon

1.1.2. L'insolation

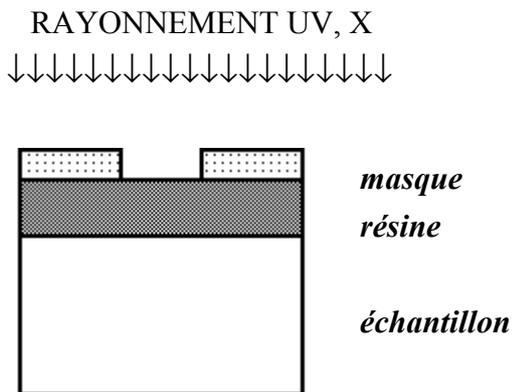


figure 3.1b : mise en place du masque

La résine est positionnée en face d'un masque dont on veut reproduire le motif. Suivant le type de lithographie utilisé, le masque est en contact ou à proximité de la résine. L'image du masque peut également être projetée sur la résine dans le cas de la lithographie optique. Le faisceau irradie préférentiellement les zones non masquées de la résine, celles qui sont masquées le seront aussi dans le cas des rayons X, mais beaucoup moins.

1.1.3. La révélation

Cette dernière étape développe la résine faisant apparaître une image en relief obtenue par les différences de solubilité entre les zones de résine exposées et celles qui ne l'ont pas été. Nous avons utilisé deux types de résine :

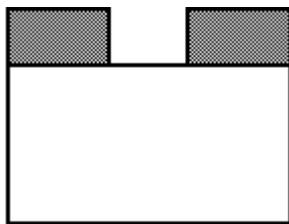


figure 3.1c : profil après révélation pour une résine positive.

la résine positive

les parties insolées sont solubles alors que celles qui ne l'ont pas été sont insolubles. Elle est appelée *positive* car elle reproduit le motif du masque. Dans ce cas, l'énergie absorbée sous l'influence du rayonnement conduit à une dégradation de la chaîne principale du polymère ou à la destruction d'un inhibiteur à la dissolution joint à la résine.

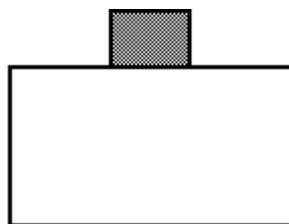


figure 3.1d : profil après révélation pour une résine négative.

la résine négative

les parties non insolées sont solubles alors que les autres ne le sont pas. Elle est appelée *négative* car elle reproduit le motif inverse du masque. Dans ce cas, l'énergie absorbée permet une réticulation entre macromolécules ou favorise la polymérisation du composé, le rendant moins soluble.

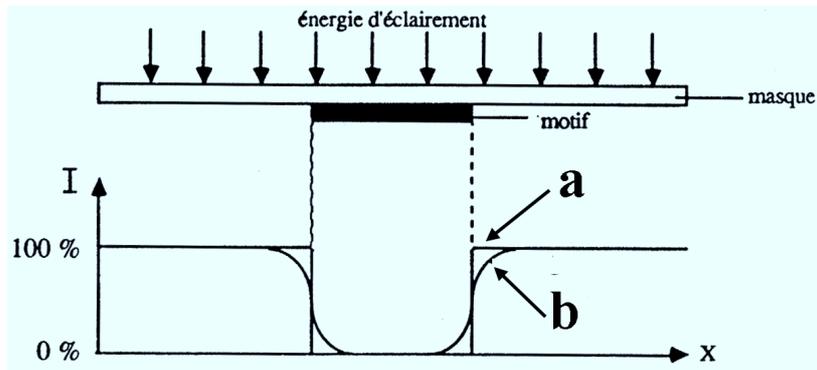


figure 3.2 : profil d'intensité lumineuse dans la résine (a) dans le cas idéal qui ne présente pas de diffraction du rayonnement incident et (b) dans le cas réel [Tre]

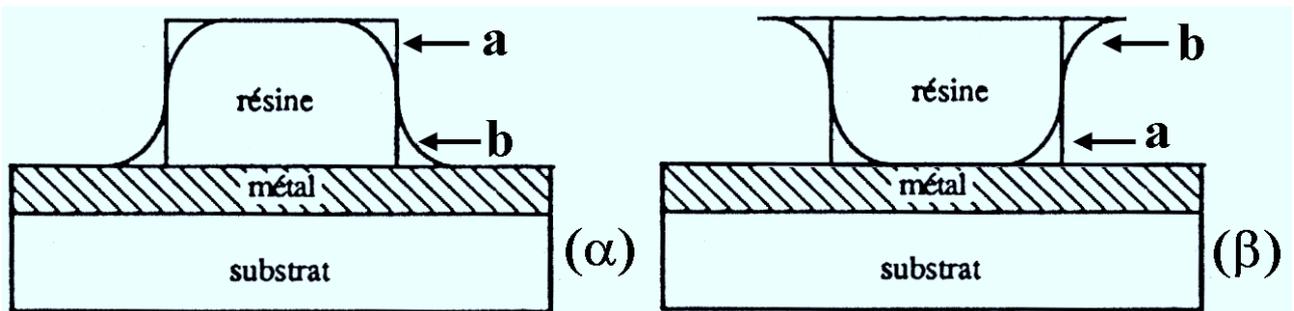


figure 3.3 : profil physique de la résine obtenu après développement dans le cas idéal (courbe (a)) et réel (courbe (b)) pour une résine positive (α) [Tre] et une résine négative (β).

1.2. Problèmes généraux de la lithographie

1.2.1. L'enrésinement

L'enduction de la surface par la résine se fait par centrifugation à partir de quelques gouttes du mélange déposées sur l'échantillon. Les épaisseurs sont calibrées sur des courbes «étalon» en fonction de la viscosité de la solution, de la vitesse de rotation ainsi que l'accélération du plateau tournant qu'il est donc important de maîtriser. Le contrôle de l'épaisseur est d'autant plus difficile que la viscosité de la résine augmente avec le temps. L'épaisseur du film polymère dépend également de la forme de l'échantillon. En effet, la forme rectangulaire de nos échantillons favorise des dépôts non homogènes dus à des effets de bord plus importants que dans le cas d'échantillons circulaires couramment utilisés en micro électronique.

1.2.2. L'exposition et le développement de la résine : problème de diffraction

L'exposition de la résine se fait à travers un masque qui comporte des parties transparentes au rayonnement et des parties absorbantes. S'il n'y avait pas de diffraction, la répartition de l'énergie lumineuse au niveau de la résine suivrait la courbe (a) de la figure 3.2. En réalité, l'énergie lumineuse suit la courbe (b) de la figure 3.2 à cause de la diffraction de la lumière par les bords du motif. Ceci est gênant dans la lithographie classique utilisant une résine positive car les flancs des motifs après développement ne sont pas droits comme on peut le constater sur la figure 3.3.α. La taille latérale des plots de résine est alors plus grande que celle des plots du masque entraînant un pas de réseau plus petit. Par contre, cet effet sera mis à profit pour la technique de lift-off (voir paragraphe 1.3). En effet, si une résine négative est utilisée, nous sommes en mesure d'obtenir un profil en « casquette » qui est représenté sur la figure 3.3.β.

Ce problème de diffraction existe pour toutes les techniques lithographiques nécessitant un masque mais l'effet peut être réduit en diminuant la longueur d'onde du rayonnement utilisé. De plus, des effets de diffraction supplémentaires peuvent apparaître si la longueur d'onde est de l'ordre de grandeur de la taille des motifs du masque [Bar 96]. C'est pourquoi, pour réaliser des structures de plus en plus petites avec une bonne définition, il est souhaitable d'utiliser un rayonnement de courte longueur d'onde dans le domaine des rayons X par exemple. Dans ce cas, la résolution, ζ , est limitée par le type de résine utilisé et par la loi

$$\zeta = \alpha \sqrt{\lambda g} \quad (3.1)$$

où

α dépend du procédé et varie entre 0 et 2.5, λ est la longueur d'onde du rayonnement et g est la distance entre le masque et l'échantillon. Les flancs de résine obtenus en lithographie X sont toujours plus verticaux qu'avec la lithographie optique.

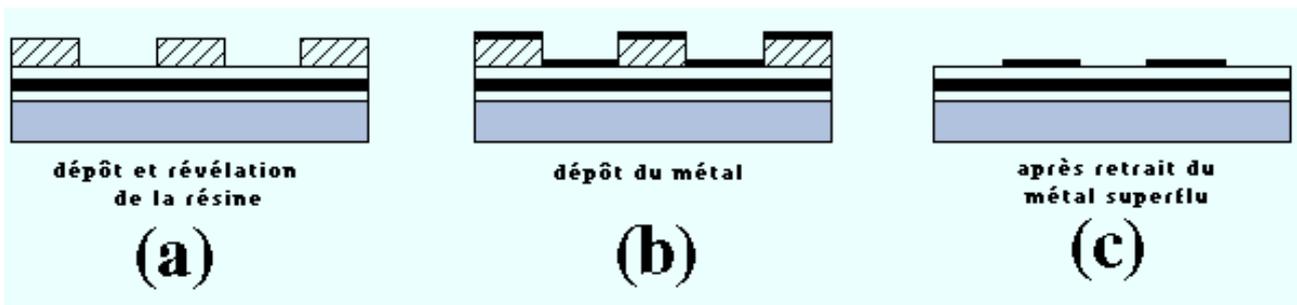


figure 3.4 : principe du lift-off. Après le dépôt et la révélation de la couche de résine (a), le moule obtenu est recouvert d'un matériau métallique (b). Puis, le motif final de gravure est obtenu après le retrait de la résine restante (c).

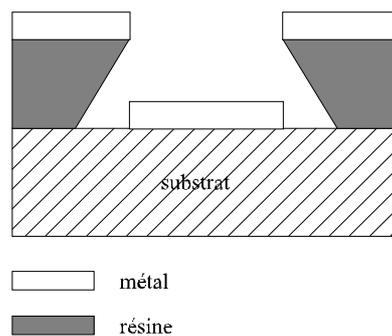


figure 3.5 : réalisation d'un profil inversé pour un meilleur lift-off. Le dépôt discontinu de la couche métallique assure une meilleure solubilité de la résine formant le moule.

1.3. Le lift-off

1.3.1. Le principe

Bien souvent, la gravure ionique nécessite l'utilisation d'un masque de protection qui n'est pas ou peu modifié par les effets thermiques et physiques du bombardement ionique. Comme les résines fluent lorsqu'elles sont chauffées et qu'elles sont fortement abîmées par les impacts des ions, il est parfois préférable que le masque de protection soit composé d'un autre matériau. Dans la technique du lift-off, le motif transféré dans la résine après son insolation et sa révélation constituera un moule (figure 3.4a) pour le dépôt du masque de protection (figure 3.4b). Le retrait de la résine qui n'a pas été dissoute lors de la première étape entraîne la couche protectrice superflue laissant place au motif à graver (figure 3.4c).

Généralement, le lift-off se fait avec une couche protectrice de métal. Dans notre cas, nous avons utilisé de l'aluminium car, d'une part, il est couramment utilisé en micro-électronique et, d'autre part, il s'enlève facilement dans une solution à base de soude (NaOH 1N diluée 5 fois).

Le dépôt de métal dans le cas d'une procédure lift-off est de bonne qualité lorsque le film métallique est discontinu sur le bord de la résine. Cette discontinuité permettra ultérieurement le passage des éléments chimiques qui dissolvent la résine restante révélant ainsi le motif à graver. Pour cela, l'épaisseur de résine doit être plus importante que celle du film métallique. Dans la pratique, elle doit être 3 à 6 fois plus épaisse. La réalisation de profils inversés en forme de « casquette » qui peuvent être obtenus à l'aide d'une résine négative comme cela a été montré sur la figure 3.3.β entraînera une discontinuité du film métallique au niveau de l'ouverture de la résine car le métal n'a pas la possibilité de se déposer sur les flancs du trou (figure 3.5).

1.4. Vers les motifs submicroniques

Par rapport à une technique de lithographie «classique» ($\lambda_{UV} \approx 10^{-7}$ m), la lithographie par rayons X présente de nombreux avantages. Tout d'abord, sa résolution intrinsèque est grande et sa profondeur de champ est excellente. Elle permet ainsi d'insoler de grandes épaisseurs de résine et conduit à des procédés monocouche très simplifiés. L'utilisation d'un rayonnement de longueur d'onde plus courte, typiquement 10^{-9} m, permet de s'affranchir des effets de diffraction pour des motifs de la taille du micron et submicronique. Le transfert des motifs se fait alors avec des rapports de forme excellents et des flancs parfaitement verticaux, rendant la formation de casquettes impossible. Cette technique est également très compétitive par rapport à la lithographie électronique car elle permet d'irradier des masques de quelques mm² de surface en des temps très courts, de quelques secondes à quelques minutes. Le même résultat demanderait des jours d'écriture pour un faisceau d'électrons.

La lithographie X nécessite cependant la fabrication de masques très fragiles qui correspondent à une technologie complexe. Nous avons utilisé ceux préparés par le laboratoire L2M dans le cadre du GdR [Hag 90]. Les insulations ont été réalisées par D. Decanini qui a utilisé le photorécepteur Karl Suss installé sur la ligne SB6 de Super-ACO à Orsay (figure 3.6).

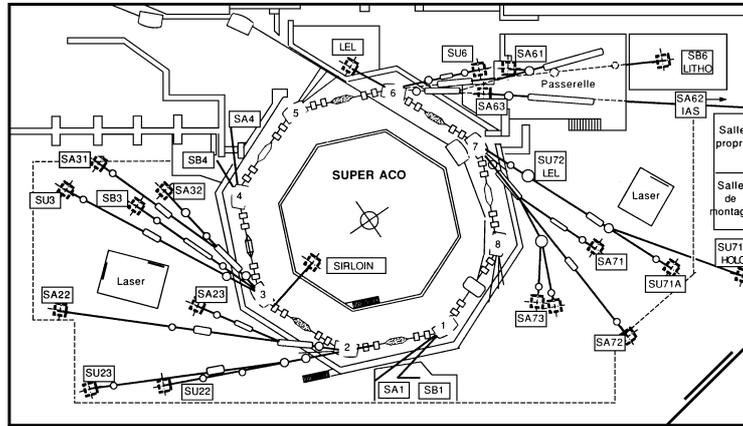


figure 3.6 : Plan de Super-ACO implanté sur le campus d'Orsay à LURE. La salle blanche du L2M est sur la ligne SB6 [Bar 96].

1.4.1. Le rayonnement synchrotron

1.4.1.1. Généralités sur le rayonnement synchrotron [Ell 86, Ebe 89]

Toute particule chargée rayonne un champ électromagnétique lorsqu'elle est accélérée ou décélérée. Tout comme la décélération des électrons dans l'anticathode d'un tube à rayons X, l'accélération centripète de particules dans un anneau de stockage entraîne l'apparition d'un rayonnement polychromatique.

L'arrêt brutal des électrons dans le cas d'un tube à rayons X transforme l'énergie incidente en chaleur et pour moins de 1% en rayonnement électromagnétique. Dans le cas d'un anneau de stockage, le rendement est d'environ 100%. Il permet d'avoir un spectre continu de l'infrarouge jusqu'aux rayons X de puissance moyenne rayonnée de l'ordre de 1.5 MW à comparer à 100 W pour un tube à rayons X de 10 KW.

Le rayonnement synchrotron s'obtient sous forme d'une nappe très fine d'un faisceau polarisé de 0.1 mm de hauteur, de grande brillance et de faible divergence estimée à 0.1 mrd. La longueur d'onde critique, longueur d'onde séparant le spectre en deux parties de puissance rayonnée égale, caractéristique du rayonnement utilisé est donnée par :

$$\lambda_c = 5.6 \frac{R}{E^3} \quad (3.2)$$

où R est le rayon de l'anneau exprimé en mètres et E est l'énergie des électrons ou positrons exprimée en GeV.

$\lambda_c = 1.85 \text{ nm}$ pour Super - ACO.

1.4.1.2. *Eléments constitutifs d'un anneau de stockage*

(i) les aimants

La trajectoire des particules, qui sont des positrons dans le cas de Super-ACO, est incurvée par des aimants appelés dipôles présentant un champ vertical uniforme. Les électrons sont focalisés grâce à des quadrupôles dont les 4 pôles sont alternativement polarisés. Certaines instabilités peuvent être corrigées par des hexapôles, octupôles, décupôles ou dodécupôles.

(ii) la cavité haute fréquence (HF)

Un champ électromagnétique HF réaccélère les particules à chaque tour dans l'anneau par la composante longitudinale du champ électrique. La fréquence de l'onde est un harmonique de la fréquence de révolution des particules dans l'anneau égale à 100 MHz pour Super-ACO. Ainsi, les électrons ou positrons se regroupent longitudinalement en paquets autour des points synchrones où l'énergie reçue compense l'énergie rayonnée.

(iii) la chambre à vide

C'est l'un des éléments essentiels pour un anneau de stockage. Il est nécessaire de maintenir un vide de l'ordre de 10^{-9} à 10^{-10} Torr pour obtenir une bonne durée de vie du faisceau stocké.

1.4.2. Les masques pour la lithographie X (figure 3.7)

Le masque de lithographie est composé d'un support sur lequel est déposé le motif à lithographier. Les matériaux utilisés pour fabriquer ces deux composants sont adaptés au type de rayonnement utilisé. Ainsi, le support, qui doit être transparent aux rayons X et au rayonnement visible pour pouvoir utiliser des méthodes optiques d'alignement, est constitué d'éléments légers tels que le nitrure de bore, le silicium, le nitrure de silicium ou le carbure de silicium. Le motif, quant à lui, est formé à partir d'éléments très absorbants tels que le tungstène ou l'or au numéro atomique plus élevé. Le motif est écrit par lithographie d'électrons dans une résine puis transféré dans l'absorbant.

La figure 3.7 illustre la géométrie d'un masque X élaboré suivant la technologie du L2M. La membrane est en carbure de silicium, obtenue par la technique de PECVD, et le matériau absorbant est soit du tungstène soit de l'or [Hag 90].

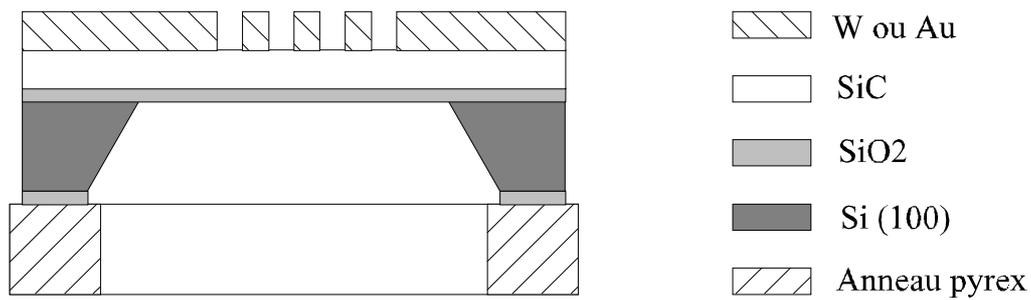


figure 3.7 : schéma d'un masque de lithographie X du L2M.

Les masques que nous avons utilisés sont les masques IEF3 et IEF5. Le masque IEF3 contient 4 réseaux carrés de $800\ \mu\text{m}$ de côté de plots circulaires dont le diamètre et la distance interplot varient. Les réseaux sont constitués de plots de $2\ \mu\text{m}$ de diamètre avec un pas de $4\ \mu\text{m}$ ou de $2.2\ \mu\text{m}$ et de plots de $1\ \mu\text{m}$ de diamètre avec un pas de $2\ \mu\text{m}$ ou de $1.1\ \mu\text{m}$ (figure 3.8a). Le masque IEF5 contient un réseau carré de plots carrés de $0.5\ \mu\text{m}$ de côté espacés de $0.5\ \mu\text{m}$ (figure 3.8b), couvrant une surface de $5\times 5\ \text{mm}^2$.

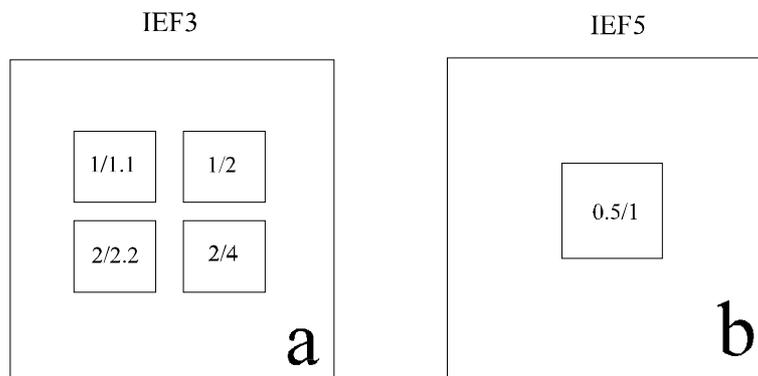


figure 3.8 : représentations schématiques des deux masques utilisés durant la thèse. La notation à deux chiffres x/y est introduite pour décrire le diamètre du plot x et le pas du réseau y en μm . Le masque IEF3 est constitué de quatre réseaux de $800\ \mu\text{m}$ de côté (a) alors que le masque IEF5 est constitué d'un réseau unique de $5\ \text{mm}$ de côté.

1.4.3. La station de lithographie X au LURE

La station de travail développée par le L2M au LURE est composée d'un monochromateur à deux cristaux, d'une chambre à vide d'exposition, d'un stepper XRS 200 Karl Suss et d'une salle blanche de classe 1000. Cet équipement permet de travailler à des longueurs d'onde comprises entre 0.5 et $1.5\ \text{nm}$ et d'exposer des surfaces de $30\times 30\ \text{mm}^2$.

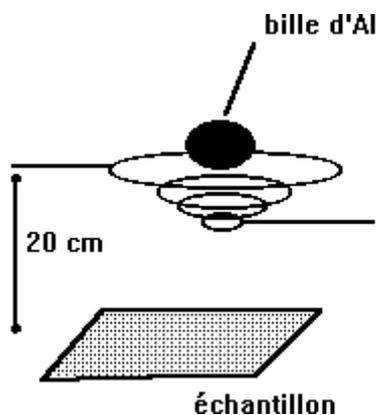
Le stepper, utilisant un système d'alignement très précis, permet d'obtenir des distances entre l'échantillon et le masque comprises entre 30 et 60 μm pour les manipulations courantes et, dans certains cas, des distances aussi faibles que 5 μm . Nous avons toujours travaillé en proche proximité avec une distance masque-échantillon égale à 40 μm .

1.5. Réalisation pratique

J'ai suivi une procédure mise au point au L2M par F. Rousseaux dans le cadre de la thèse de Nathalie Bardou [Bar 96]. Le détail de cette procédure semble être sans intérêt pour le néophyte mais il montre bien sa complexité et son jeu de paramètres expliquant ainsi que la mise au point d'une procédure est longue.

Enduction	utilisation de la résine négative SHIPLEY SAL 601 d'épaisseur 0.65 μm tournette : accélération = 10000 T/mn ² , vitesse = 5000 T/mn, durée 30s
Recuit	recuit 2 mn à 85°C pour évaporer le solvant contenu dans la résine.
Insolation	lithographie par rayons X avec des doses comprises entre 680 et 700mJ/cm ² .

Dépôt d'aluminium



L'aluminium est déposé par évaporation thermique au L2M par D. Arquey dans un bâti où règne un vide secondaire.

Caractéristiques

Intensité du courant # 70 A

creuset en tungstène

vitesse de dépôt # 20 Å/s

pression résiduelle < 2.0 10⁻⁶ Torr

épaisseur des dépôts contrôlée par une balance à quartz

Les épaisseurs d'aluminium ont été calculées en comparant les vitesses de gravure des différents métaux de nos couches (Voir chapitre III, B.1)

Révélation nettoyage de la résine avec un solvant de la résine (« remove ») à 75°C pendant 10 à 15 mn.

Nettoyage après la gravure, le reste d'aluminium est dissout dans une solution à base de soude.

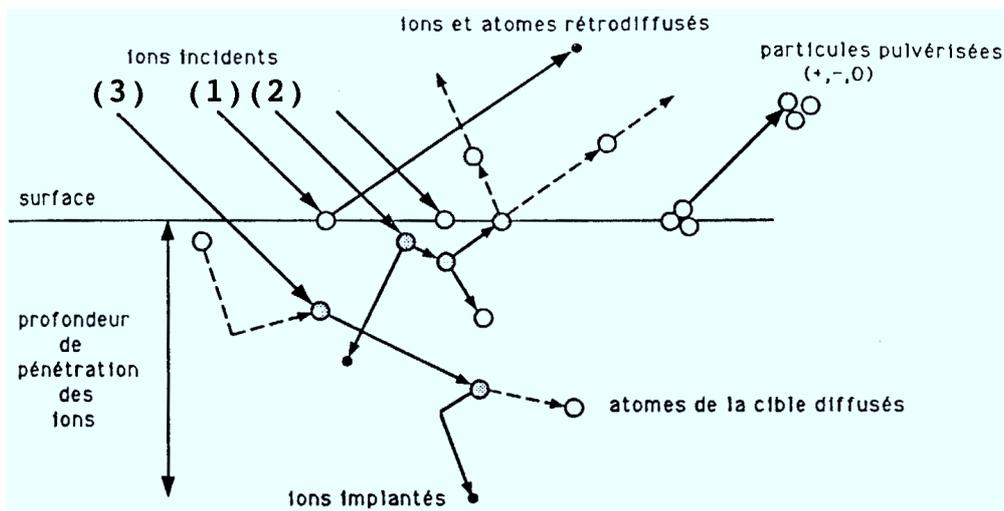


figure 3.9 : différents types de collision suivant l'énergie de l'ion incident [Ber 91]

2. LA GRAVURE IONIQUE SECHE

2.1. Présentation

La gravure ionique sèche, par rapport à d'autres processus de gravure tel que la gravure chimique, est un procédé purement physique qui introduit un minimum de défauts à l'échelle atomique dans les zones voisines de celle de l'exposition. Elle permet la réalisation de motifs submicroniques. L'avantage majeure de cette méthode est sa complète reproductibilité car elle ne dépend que du réglage des paramètres de gravure.

Un faisceau d'ions dont la masse atomique est 3 à 5 fois plus grande que celle de la cible à pulvériser et dont l'énergie cinétique est plus grande de quelques 100 eV que l'énergie de liaison des atomes de la cible peut éjecter des atomes de la surface d'un solide. Pour une gamme d'énergie donnée, l'éjection résulte essentiellement du transfert de quantité de mouvement de l'ion incident à l'atome de surface.

2.2. Aspect physique de la gravure

2.2.1. Régimes de collision [Ber 91] (figure 3.9)

Le processus intervenant lors de la collision de l'ion avec la surface dépend surtout de l'énergie de l'ion incident. On discerne ainsi :

(1) les ions de faible énergie, typiquement inférieure à 1 KeV, peuvent être directement réfléchis par la surface à graver tout en la pulvérisant. La collision est alors essentiellement élastique et un calcul classique permet de déterminer l'énergie T transférée lors du choc

$$T = E_{ion} (4 M_{atom} M_{ion}) / (M_{atom} + M_{ion})^2 \quad (3.3)$$

où

E_{ion} est l'énergie de l'ion incident

M_{atom} est la masse de l'atome pulvérisé

M_{ion} est la masse de l'ion incident

A énergie d'ion incident égale, il est préférable d'utiliser un flux d'argon plutôt qu'un flux d'hydrogène qui sont les deux éléments disponibles dans le bâti de gravure pour graver des couches de cobalt et de ruthénium. En effet, le rapport entre les énergies transférées à un atome par un faisceau d'hydrogène et d'argon est de l'ordre de 10%. Nous utilisons un flux d'argon pour graver les couches de cobalt et de ruthénium.

(2) les ions d'énergie moyenne égale à 10 KeV, entrent dans le matériau, transfèrent une quantité de mouvement assez importante à plusieurs atomes, entraînent un déplacement des atomes en cascade dans une couche proche de la surface et sont rééjectés du matériau.

(3) les ions d'énergie supérieure à 100 KeV s'implantent dans le matériau sans le pulvériser. Le rendement est alors nul.

2.2.2. Dépendance de la vitesse de gravure avec l'angle d'incidence du faisceau d'ions [Auc 81]

Dans le cas général, la vitesse de gravure est une fonction de l'angle α entre la normale à la surface et le faisceau d'ions. Elle augmente tout d'abord avec l'angle, atteint une valeur limite pour α compris entre 30° et 50° pour rechuter vers zéro aux grands angles. L'augmentation de la vitesse de gravure avec l'angle α est due à une augmentation de la probabilité d'induire une direction de pulvérisation hors de la surface lors d'une collision. Puis, la réduction de la vitesse de gravure reflète l'augmentation de la réflexion élastique des ions sur la surface et la diminution du flux d'ions incident. Le seul matériau ne suivant pas cette loi est l'or dont la vitesse de gravure est une fonction décroissante de l'angle d'incidence. Dans notre cas, le cobalt, l'aluminium et le ruthénium suivent tous le comportement décrit ci-dessus mais ne possèdent pas le même angle optimum de gravure.

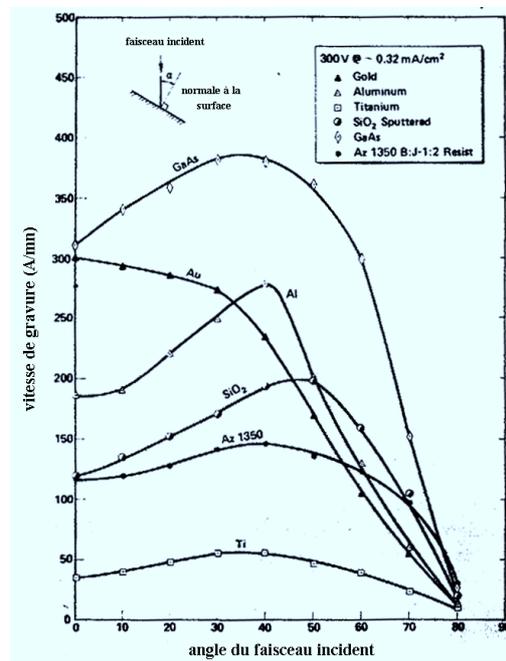


figure 3.10 : variation de la vitesse de gravure avec l'angle d'incidence du faisceau d'ions par rapport à la normale à la surface pour différents matériaux [Auc 81]

2.2.3. Le taux de pulvérisation est fonction de la place de l'élément dans le tableau périodique [Spe 71].

Dans la figure 3.11 sont rassemblés les taux de pulvérisation, S , égaux au nombre d'atomes éjectés par ion incident pour différents éléments du tableau périodique en fonction du nombre atomique de l'élément gravé. Ils sont maxima pour les éléments Cu, Ag, Au qui sont des métaux simples cristallisés dans la phase cfc avec des bandes 3d, 4d ou 5d pleines.

On constate également que l'utilisation d'un faisceau d'ions est tout particulièrement adaptée à la gravure des matériaux métalliques utilisés pour la fabrication des multicouches magnétiques. En effet, ces matériaux possèdent les taux de pulvérisation les plus élevés. Par contre, pour protéger une surface ou dans la conception des machines de gravure, on utilisera plutôt des matériaux qui possèdent un faible S comme le molybdène, le tungstène ou le nobium.

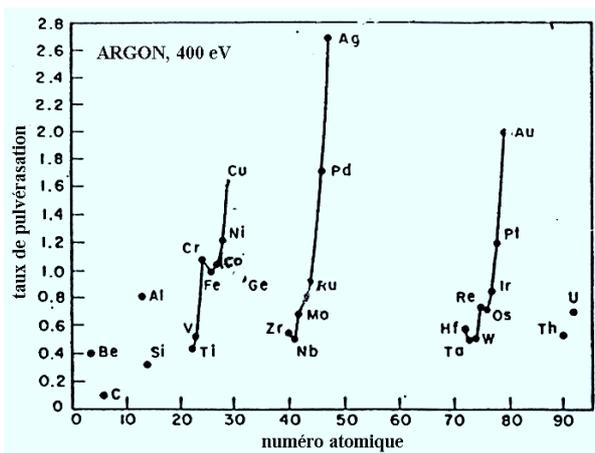


figure 3.11 : variation de S avec le numéro atomique pour un angle d'incidence nul [Spe 71]

2.3. Les problèmes rencontrés dus à la gravure

2.3.1. Atomes redéposés après éjection [Auc 81]

Il arrive que des atomes éjectés de la surface se redéposent le long des structures gravées. Ainsi, des « collerettes » peuvent se former autour des motifs qui protègent la surface et peuvent persister après la dissolution de la protection (figure 3.12, colonne a). Ces redépositions sont nuisibles puisqu'elles peuvent, par exemple, entraîner des interconnexions de régions initialement isolées.

La figure 3.12 illustre la situation exposée ci-dessus et propose deux solutions pour éviter les effets de redépôt sur les parois latérales du masque. Dans le cas d'un masque arrondi (colonne b), les

atomes redéposés sont continuellement gravés. A la fin de la gravure, il ne reste plus qu'une petite collerette mais le motif final est de plus petite taille que le motif souhaité. Dans le cas idéal (colonne c), la composition chimique du masque de protection est telle que sa vitesse de gravure est très faible. Une couche fine de protection est alors suffisante pour protéger le film contre la gravure et éviter la formation d'un redépôt.

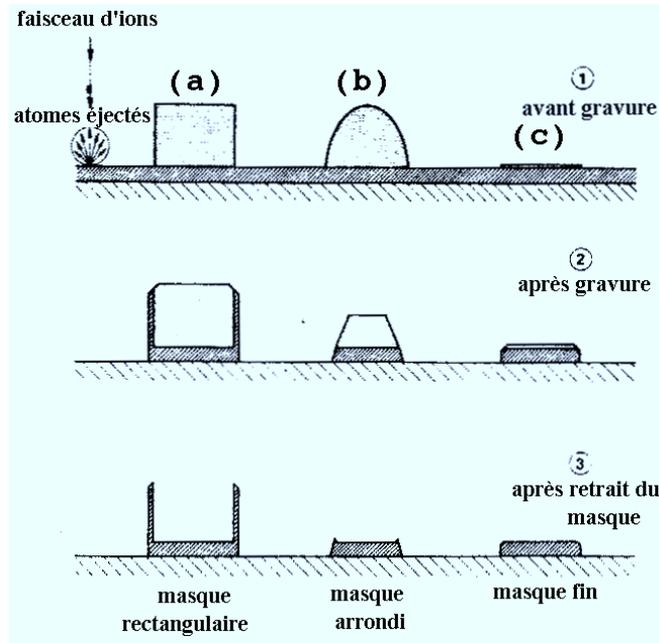


figure 3.12 : géométries de masque permettant de résoudre le problème des redépositions [Auc 81]

2.3.2. Effets combinés de l'angle d'attaque et de la redéposition

Nous savons maintenant que la vitesse de gravure dépend de l'angle d'attaque du faisceau d'ions par rapport à une surface plane. Cependant, dans notre cas, nous voulons graver des réseaux de plots d'aluminium avec des profils en forme de marche. Il faut alors tenir compte à la fois des effets de l'angle d'attaque mais également des effets de redéposition. Des modèles ont été développés par Lee [Lee 79] pour déterminer les profils de gravure de marches formant un angle α avec la surface bombardée.

Un exemple de résultat de calcul est donné dans la figure 3.13 dans le cas de l'aluminium. Ce calcul peut être étendu au cobalt et au ruthénium car lors de la gravure, ils se comportent de manière similaire. Nous voyons que pour un faisceau d'ions perpendiculaire à la surface de l'échantillon, c'est à dire pour $\beta = 0$, la vitesse de gravure du flanc de la marche est plus grande que celle du reste de l'échantillon si l'angle α est compris entre 0 et 50 degrés. Dans ce cas, le profil de la marche à la fin de la gravure (pour $\beta = 0$, figure 3.14b) présente une surgravure générée par les atomes éjectés sur les bords du plot (figure 3.14a). Cette surgravure peut être réduite en augmentant l'angle

d'attaque du faisceau d'ions (figure 3.14c pour $\beta = 10^\circ$) ou même complètement éliminée (figure 3.14d pour $\beta = 20^\circ$).

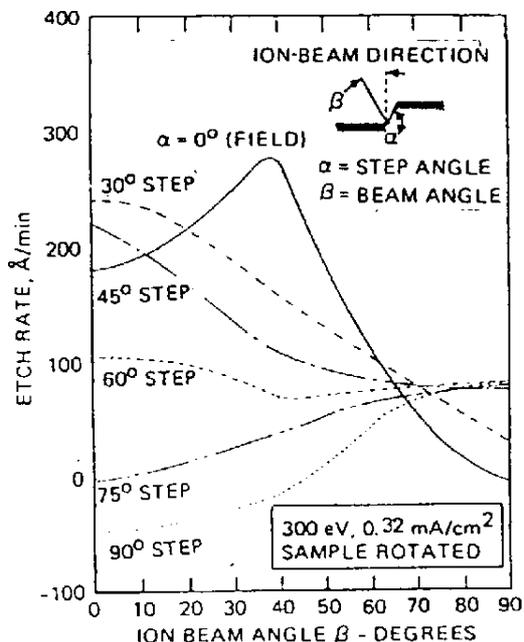


figure 3.13 : calcul de la vitesse de gravure d'une marche d'aluminium faisant un angle α avec la surface de l'échantillon pour un faisceau d'ions faisant un angle β avec la normale à la surface [Lee 79].

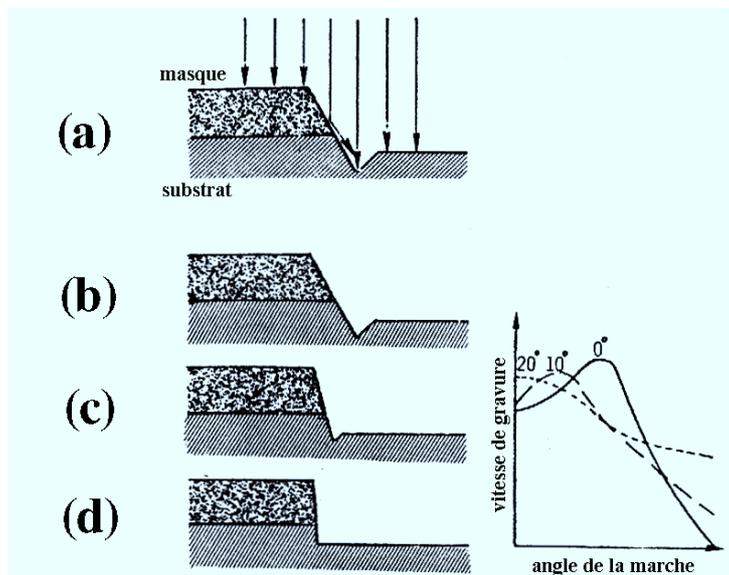


figure 3.14 : calcul du profil de gravure d'une marche d'aluminium (a) phénomène de surgravure (b) $\beta = 0^\circ$ (c) $\beta = 10^\circ$ et (d) $\beta = 20^\circ$ [Lee 79].

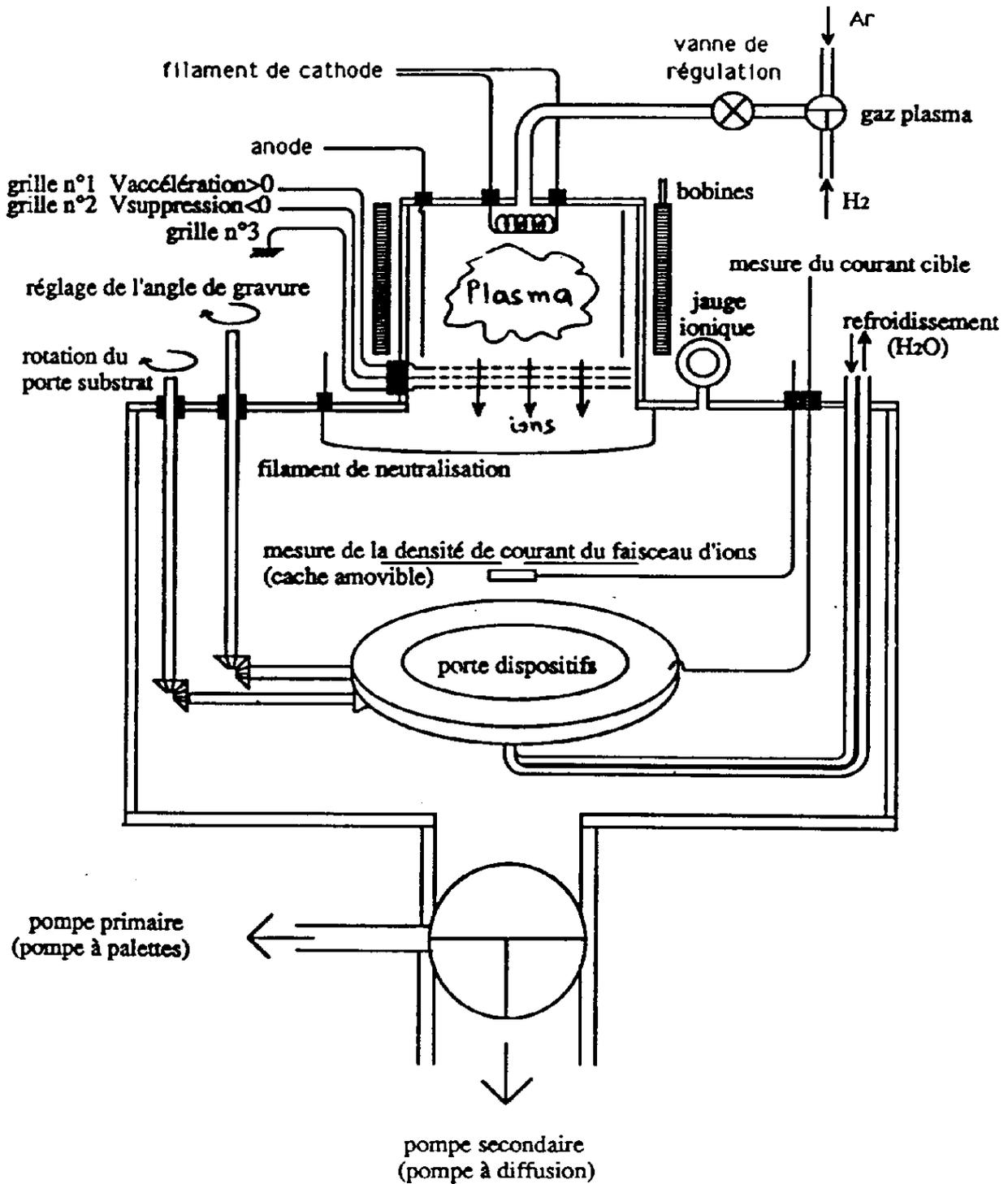


figure 3.15 : Usineur ionique du CEETAM.

2.3.3. Défauts induits par la gravure ionique : modification des propriétés électroniques

La gravure ionique induit des défauts à la surface du matériau gravé qui dégradent fortement les propriétés électroniques et donc magnétiques des dispositifs fabriqués. Les défauts créés sont de trois origines différentes

(i) les impacts (la surface a l'aspect d'une pelure d'orange).

(ii) l'implantation d'ions incidents.

(iii) l'implantation d'impuretés : ces impuretés peuvent provenir des éléments constituant la source d'ions, des gaz résiduels présents dans la chambre de gravure, des particules polluantes adsorbées à la surface du matériau cible, des redépôts des produits pulvérisés ...

2.4. Matériel utilisé pour la gravure [Ber 91]

La machine dont nous disposons à l'Institut d'Electronique Fondamentale a été construite à partir d'une source VEECO microetch 3" (figure 3.15). Les ions argon utilisés pour la gravure sont extraits par une série de grilles polarisées d'un plasma créé par une source de Kauffman. Comme l'échantillon ne se trouve pas directement dans le plasma, l'utilisation de cette machine peut s'étendre à la gravure d'échantillons à bas point de fusion ou de composés organiques.

L'optique d'extraction des ions de l'usineur, de type triode, est composée de 3 grilles percées chacune de 313 trous. Chaque ensemble de 3 trous alignés extrait un faisceau d'ions élémentaire du plasma. L'ensemble des faisceaux élémentaires forme un flux d'ions énergétique et uniforme sur une large surface.

Sur la première grille (électrode écran) est appliquée une tension positive qui impose l'énergie cinétique des ions. Cette première grille focalise le faisceau d'ions dans l'axe des ouvertures d'extraction et confine le plasma. La seconde grille, portée à un potentiel négatif, accélère les ions collimatés par la première grille et repousse les électrons vers la décharge. La troisième et dernière grille, reliée à la masse, focalise le faisceau d'ions à la sortie de l'optique.

Les ions, après neutralisation par un filament, sont envoyés sur la cible placée dans une chambre sous vide. L'échantillon à graver est fixé sur une plaque de cuivre refroidie à l'eau qui tourne autour de l'axe du faisceau incident pour améliorer l'homogénéité de la gravure.

Le gros inconvénient de ce type d'appareillage est le manque de moyens de caractérisation *in situ*. En effet, il n'est pas possible de contrôler l'épaisseur gravée pendant la manipulation. Cette opération serait possible si, par exemple, le bâti était muni d'un spectromètre Auger. En raison du mauvais vide résiduel, sa mise en place n'a pas été possible.

Dans les paragraphes 1 et 2, nous avons présenté les méthodes expérimentales d'élaboration des structures artificielles dont le magnétisme sera présenté au chapitre VI. Avant cette dernière étape, la qualité structurale des échantillons a été déterminée par microscopie électronique à balayage (MEB), microscopie à force atomique (AFM) et microscopie Auger à balayage (MAB). Alors que la MEB n'a plus besoin d'être introduite et que le détail de l'AFM est donné dans le chapitre IV, nous présenterons, dans le paragraphe 3, le principe de fonctionnement de la MAB et nous montrerons que c'est une technique de choix pour déterminer les éléments chimiques en surface de l'échantillon.

3. SPECTROSCOPIE AUGER

3.1. Effet Auger (figure 3.16)

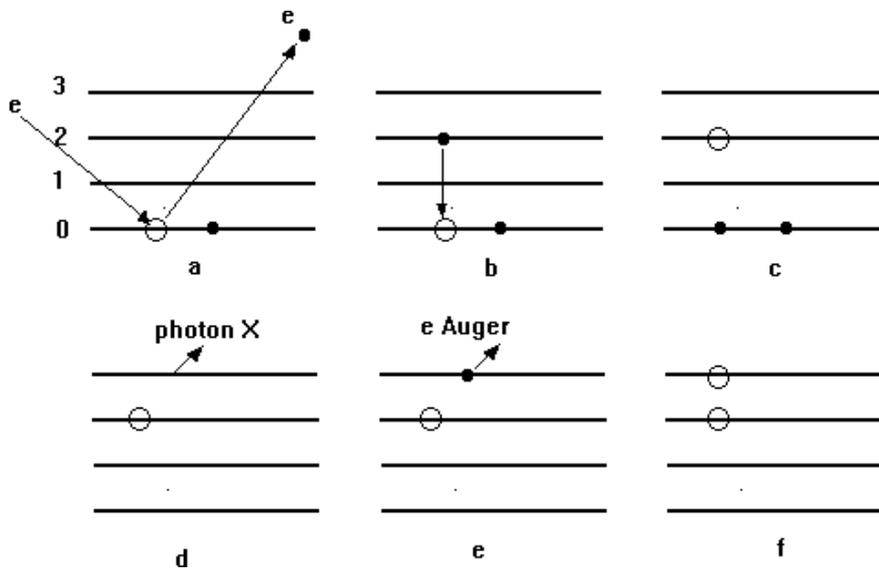


figure 3.16 : effet Auger - description -

La surface de l'échantillon est bombardée avec un faisceau d'électrons monochromatique. Les électrons des couches profondes notées 0 sont expulsés du matériau qui est désormais constitué d'atomes dans un état excité (figure 3.16a).

Afin de minimiser leur énergie, ces derniers vont se désexciter selon le processus de la figure 3.16. Un électron des couches supérieures notées 2, donc d'énergie plus élevée, vient occuper la place de l'électron éjecté minimisant l'énergie totale de l'atome. L'atome se trouve alors dans la configuration de la figure 3.16c. Le gain d'énergie va servir soit à éjecter un électron appelé électron Auger d'une couche encore plus externe notée 3, soit à l'émission d'un photon X. La probabilité d'émission d'un électron Auger ou d'un photon X dépend en fait du numéro atomique de l'élément analysé.

Un bilan énergétique permet d'écrire les relations (3.4a) et (3.4b) et d'en déduire l'énergie cinétique des électrons Auger

$$\text{figure 3.16b} \quad E_{\text{perdu}} = E_{(0)} - E_{(2)} \quad (3.4a)$$

$$\text{figure 3.16e} \quad E_{(0)} - E_{(2)} = E_{(3)} + E_c \quad (3.4b)$$

$$E_c = (E_{(0)} - E_{(2)}) - E_{(3)} \quad (3.4c)$$

3.2. Utilisation de l'effet Auger

L'avantage majeur d'une technique utilisant un faisceau d'électrons, c'est qu'elle permet de déterminer à la fois la carte topographique et chimique de l'échantillon étudié. D'une part, en formant une image avec les électrons secondaires (figure 3.16a), on obtient des informations sur la topographie de la surface de l'échantillon car l'angle d'éjection des électrons dépend des rugosités de la surface. C'est le principe utilisé dans la MEB. D'autre part, en formant une image avec les électrons Auger (figure 3.16e), sélectionnés en énergie, on peut déterminer les éléments chimiques proches de la surface sur une profondeur de 50 Å car cette énergie est caractéristique de l'élément sondé.

B. CARACTERISATION DES PLOTS DE COBALT.

1. ETALONNAGE DES VITESSES DE GRAVURE

Le point de départ de l'étalonnage des vitesses de gravure des divers matériaux constituant nos échantillons est une documentation fournie par le CEETAM [Cee] (Centre d'Etudes et d'Education pour les Techniques Avancées de la Micro-électronique) qui contient les informations de base indispensables sur les vitesses de gravure. Celle-ci indique les vitesses de gravure pour les métaux que nous utilisons (pour un faisceau d'ions d'énergie 500 eV et un flux égal à 1mA/cm²):

$$V_{\text{Ru}} = 580 \text{ \AA/mn}$$

$$V_{\text{Co}} = 510 \text{ \AA/mn}$$

$$V_{\text{Al}} = 520 \text{ \AA/mn}$$

Nous nous sommes basé sur ces données pour effectuer nos premiers tests. Afin d'assurer une bonne reproductibilité des vitesses de gravure, toutes les gravures ont été réalisées dans les mêmes conditions expérimentales : nous avons utilisé une gravure plane dans laquelle le faisceau d'ions est orthogonal à la surface de l'échantillon dont l'homogénéité est obtenue par rotation du porte

échantillon. La pression d'argon pendant la gravure est maintenue constante à 2.0×10^{-4} Torr. Les autres paramètres de la gravure, c'est à dire les tensions et courants appliqués sur les différentes grilles, ont été optimisés par les différents utilisateurs de cette installation et sont rassemblés dans le tableau 3.1

	Arc	Cathode	Magnet	Accel	Suppr
Courant (A)	0.5	18	0.55	32	0.007
tension (V)	20	12	19	500	200

tableau 3.1 : courants et tensions optimum de l'usineur ionique

Cette configuration nous permet de travailler avec un flux de 0.5 mA/cm^2 pour un faisceau d'ions d'énergie égale à 500 eV. Pour éviter un éventuel échauffement de l'échantillon malgré le refroidissement à l'eau, nous avons réparti le temps de gravure suivant la séquence (2' gravure / 2' repos) $\times n + x''$ gravure où n et x sont calculés suivant le temps total de gravure. Pendant chaque période de repos, l'énergie et le flux des ions ont été vérifiés pour maintenir une dose constante tout au long de la gravure.

1.1. Vitesse de gravure de l'aluminium

L'aluminium est l'un des constituants essentiels dans le processus de gravure des nanostructures magnétiques. En effet, puisque nous utilisons une technique de type « lift-off », la couche d'aluminium nous permet de protéger la couche de cobalt sous-jacente contre l'abrasion ionique. L'aluminium n'est pas le candidat idéal pour la réalisation de masque de protection pour la gravure ionique du cobalt ou du ruthénium puisque le rapport entre les vitesses de gravure est proche de 1. Cependant son utilisation intensive en micro-électronique a suscité une bonne maîtrise de son dépôt et de son retrait sans abîmer les microstructures en cours de fabrication.

Il est à noter que l'aluminium est un élément qui s'oxyde facilement au contact de l'air. C'est en fait pour cela qu'il est intéressant de l'utiliser comme masque de protection : la vitesse de gravure de son oxyde Al_2O_3 n'est que de 100 \AA/mn pour un faisceau d'ions d'énergie 500 eV et un flux égal à 1 mA/cm^2 . Le rapport des vitesses de gravure entre masque et couche à graver devient ainsi plus favorable.

Afin de réduire au maximum l'épaisseur de la couche de protection pour éviter la formation de collerettes, il était impératif d'optimiser à la fois ses conditions de croissance et de gravure. Pour

cela, nous avons choisi, d'une part, d'utiliser deux bâtis de dépôt différents, l'un utilisant l'évaporation par effet Joule avec un vide résiduel de 10^{-6} Torr et l'autre l'évaporation à l'aide d'un canon à électrons avec un vide résiduel de 10^{-7} Torr. D'autre part, nous avons effectué la gravure ionique à des pressions résiduelles variant de 10^{-5} à 10^{-6} Torr. Cette étude a pu être menée grâce à l'adjonction d'une vanne microfuite sur le bâti de gravure qui permettait d'introduire soit de l'air dont la composition est contrôlée en salle blanche, soit de l'oxygène pur.

L'ensemble des mesures de l'épaisseur d'aluminium gravée en fonction du temps de gravure est rassemblé sur la figure 3.17. Deux grandes tendances peuvent être dégagées de cette évolution. Tout d'abord, la vitesse de gravure augmente lorsque la pression résiduelle dans le bâti pendant le dépôt d'aluminium diminue (voir sur la figure \square et \blacksquare). Cet effet est dû à une diminution de la proportion d'aluminium oxydé directement pendant le dépôt. Puis, la vitesse de gravure augmente lorsque la pression résiduelle dans le bâti de gravure diminue (voir sur la figure \blacksquare , \blacktriangledown et \bullet). Cet effet peut être expliqué soit par une diminution du libre parcours moyen des ions Ar^+ lorsque la pression résiduelle augmente, soit par l'adsorption d'oxygène à la surface de l'échantillon pendant les périodes de repos qui a pour effet de créer une couche d'oxyde dont la vitesse de gravure est 10 fois plus faible. C'est d'ailleurs pour augmenter cet effet que, dans certains dispositifs, on introduit un mélange ($\text{Ar} + \text{O}_2$) dans le plasma [Glö 75].

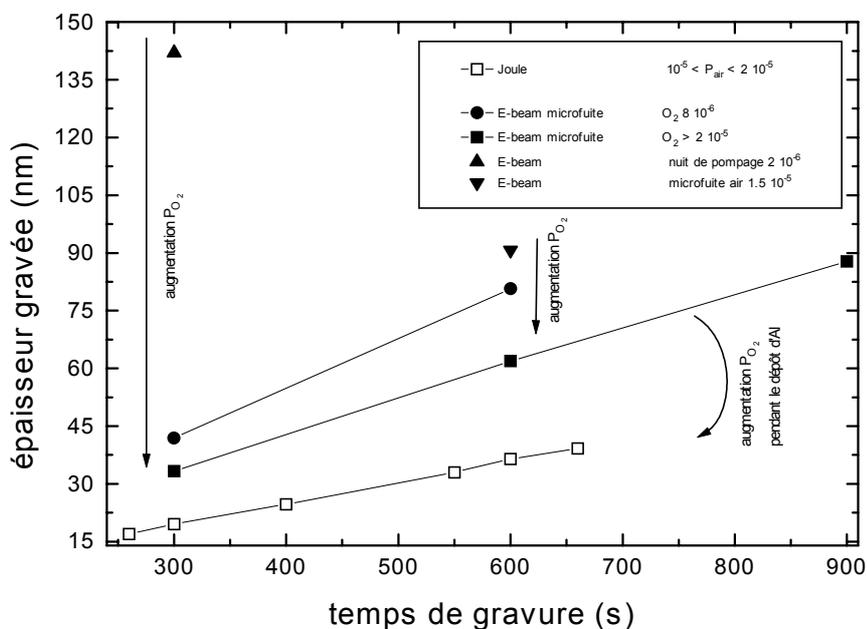


figure 3.17 : évolution de l'épaisseur gravée dans la couche de protection en fonction du temps de gravure et des conditions expérimentales de dépôt de la couche et de pression résiduelle pendant la gravure.

Dans la suite de notre étude, nous avons privilégié les configurations expérimentales qui minimisent le rapport V_{Al} / V_{Co} : dépôt d'aluminium réalisé à 10^{-6} Torr et pression résiduelle d'air dans le bâti maintenue à 1.5×10^{-5} Torr. Dans ces conditions de travail, la vitesse de gravure de la couche de protection est égale à 50 Å/mn contrairement à une couche d'aluminium pur pour laquelle elle est égale à 260 Å/mn.

1.2. Vitesse de gravure de la multicouche Co/Ru

Puisque les conditions de gravure sont maintenant connues avec précision, il ne reste plus qu'à étalonner les vitesses de gravure du couple Co/Ru afin d'arrêter la gravure de l'échantillon dans la couche tampon de ruthénium. Pour cela, l'épaisseur gravée a été mesurée en fonction du temps de gravure. La courbe expérimentale est reproduite sur la figure 3.18. La loi de variation est quasiment linéaire ce qui permet de déduire une vitesse de gravure moyenne égale à 180 Å/mn. La vitesse correspondante à une dose de 1 mA/cm² serait de 360 Å/mn et est inférieure à celle donnée dans la littérature. Cette diminution est probablement liée également à un effet d'oxydation des multicouches pendant la gravure car les oxydes de métaux se gravent généralement moins vite.

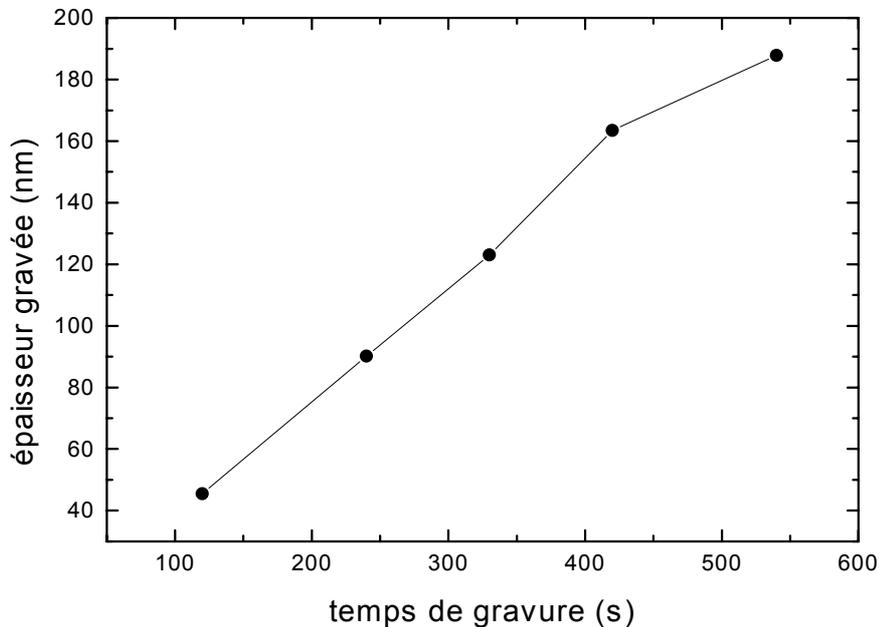


figure 3.18 : évolution de l'épaisseur gravée dans la couche active Co/Ru en fonction du temps de gravure pour les conditions expérimentales optimales.

2. OPTIMISATION DES CONDITIONS DE GRAVURE : RESEAUX DE PLOTS CIRCULAIRES (IEF3)

Dans un premier temps, nous n'avons pas cherché à optimiser l'épaisseur de la couche de protection d'aluminium. Nous connaissons les limites inférieures à ne pas dépasser. C'est pour cela que des couches de protection de 100 nm (respectivement 250 nm) ont été déposées pour des couches de cobalt d'épaisseurs inférieures (respectivement supérieures) à 100 nm.

2.1. Problème des vitesses de gravure

Une première observation au microscope optique a montré que la gravure s'était bien déroulée car la forme circulaire des plots était bien définie et que l'épaisseur de la couche d'aluminium de protection était suffisante car la réflexion sur les plots est identique en intensité et en couleur à celle de l'aluminium protégé de la gravure par la patte de fixation de l'échantillon. La présence probable de collerettes a été mise en évidence au moyen d'un microscope polarisant.

L'observation au microscope électronique à balayage (MEB) a montré que les plots sont entourés d'une forme géométrique noire (voir figure 3.19). De plus, il y a eu formation d'une sorte de dentelle dont la direction de croissance est totalement aléatoire. Ces formes géométriques noires témoignent de la présence de crevasses causées par un temps de gravure trop long. Le corindum pulvérisé a donc très bien pu se redéposer sur la surface en créant ce rideau de dentelle.

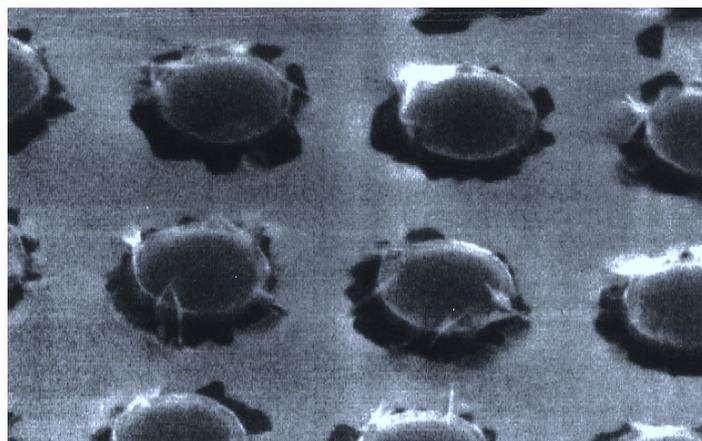


figure 3.19 : image topographique d'un réseau de plots de $1\ \mu\text{m}$ de côté espacés de $1\ \mu\text{m}$ obtenue à l'aide d'un microscope électronique à balayage. Taille de l'image $3\ \mu\text{m} \times 5\ \mu\text{m}$, angle d'observation égal à 45° .

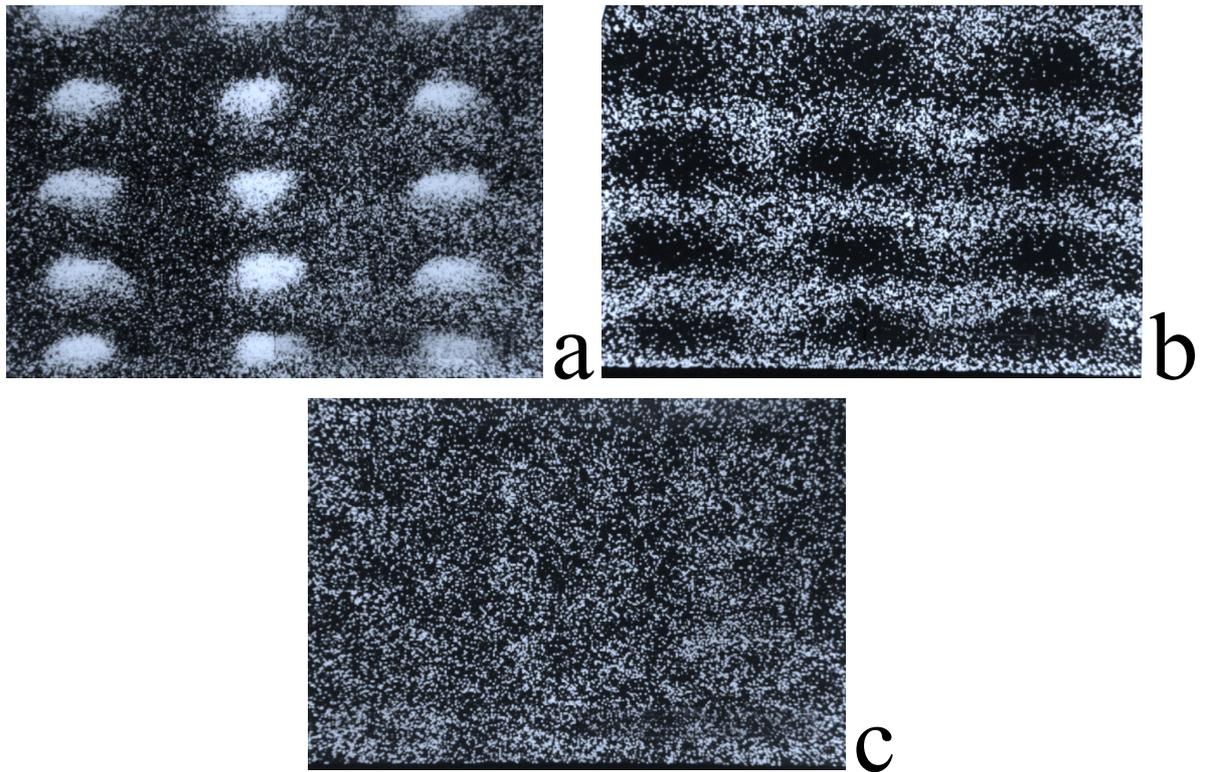


figure 3.20 : images chimiques des éléments présents en surface jusqu'à une profondeur de 5 nm. Les images chimiques du ruthénium (haute énergie)(a), de l'aluminium (b) et du cobalt (c) ont été corrigées des effets de topographie. Taille de l'image $3\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$.

Il semblerait donc que les vitesses de gravure qui ont été estimées à partir de mesure sur des couches continues soient plus petites que sur des réseaux de plots. Cette différence notable entre les vitesses de gravure est due à la géométrie des plots (voir paragraphe A.2.3.2). En effet, il a été montré que l'augmentation du taux de pulvérisation à la base d'un plot, due aux effets combinés du faisceau ionique incident, des ions retrodiffusés et des atomes énergétiques de cobalt éjectés des flancs des plots, entraîne une surgravure de l'échantillon autour des plots.

Afin de confirmer ces observations, nous avons entrepris l'étude des espèces chimiques présentes en surface à l'aide d'un Microscope Auger à Balayage. Ce dernier permet de réaliser une image chimique de la surface. Cette étude nous a apporté une série de résultats forts intéressants (figure 3.20). Sur le dessus des plots, seule une présence de ruthénium dont l'épaisseur est supérieure à 5 nm a été détectée après la dissolution de la couche de protection d'aluminium (figure 3.20a). L'estimation de cette épaisseur provient du fait qu'aucun signal provenant du cobalt n'a pu être mesuré. Cette information capitale montre, d'une part, que l'épaisseur d'aluminium est suffisante pour assurer la protection du cobalt et, d'autre part, qu'après dissolution de la couche de protection, plus aucune trace de sa présence n'est détectable. Entre les plots, la seule espèce chimique observée est l'aluminium qui entre dans la composition du saphir (figure 3.20b). La couche a donc bien été gravée jusqu'au substrat. Une analyse fine du dernier cliché relatif à l'étude du cobalt montre la présence de cercles localisés à la périphérie des plots (figure 3.20c). Ce dernier cliché est une preuve de la pulvérisation et du redépôt du cobalt sur les bords des plots sous forme de collerette.

2.2. Problème des redépôts

Après une étude qualitative du redépôt engendré par la gravure ionique, une étude plus fine a été menée par microscopie à force atomique (AFM). Cette dernière confirme l'existence d'un redépôt sur les flancs des plots tel qu'il apparaît sur la figure 3.21 pour les 4 réseaux. L'ensemble des techniques de caractérisation utilisées nous ont permis de déterminer l'origine des collerettes et de répondre aux questions suivantes :

2.2.1. Quel est l'origine du redépôt ?

Grâce à l'étude chimique menée par spectroscopie Auger, le redépôt s'est révélé être essentiellement composé de cobalt. Cet effet de collerette, bien connu dans le cas de la gravure ionique, a déjà été discuté dans le paragraphe précédent (A.2.3.1) : lorsqu'un atome de cobalt est éjecté de la surface, il tend à se redéposer sur les côtés des aspérités qu'il rencontre sur sa trajectoire. Dans notre cas, ce sont les plots d'aluminium qui constituent ces aspérités. De plus, force est de constater que ce redépôt est asymétrique (figure 3.21c).

Grâce aux mesures d'AFM, la hauteur de ces collerettes a été directement mesurée et estimée à 80% de l'épaisseur de départ de la couche d'aluminium de protection pour tous les échantillons. La hauteur de la collerette est donc directement liée à l'épaisseur de la couche de protection d'aluminium. Même si la couche d'aluminium, tout comme le redépôt sur les flancs des plots, est gravée tout au long du processus de gravure, l'épaisseur finale de la couche d'aluminium est telle que le redépôt reste important. Afin de minimiser ces collerettes, il faudra réduire au maximum l'épaisseur de la couche de protection.

Les effets de redépôt sont critiques lorsque la taille des structures à graver ou la distance entre ces structures deviennent petites par rapport à leur hauteur. Dans notre cas, après gravure ionique, les réseaux de plots les plus serrés sont complètement collés les uns aux autres (figure 3.21b et d). A ma connaissance, seule une gravure chimique ou ionique réactive serait capable de résoudre ce problème car, étant donné que l'angle d'éjection des atomes de cobalt par rapport à la surface de l'échantillon doit être supérieur à 45° pour les géométries de plots que nous utilisons, la variation de l'angle d'incidence du faisceau ionique ne pourra pas améliorer le résultat de la gravure.

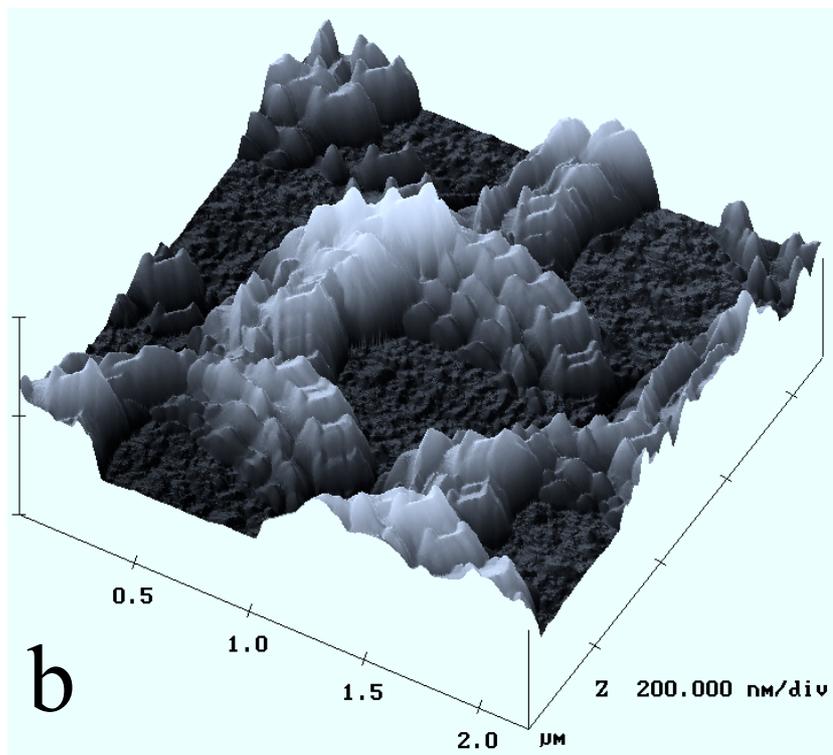
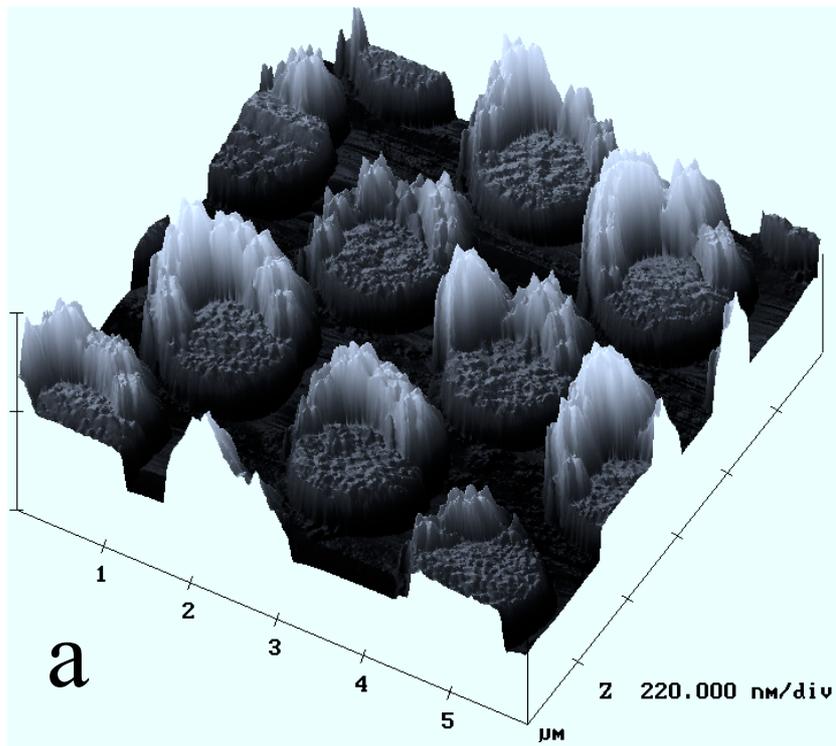


figure 3.21 : images AFM des réseaux de plots de cobalt 1/2 (a), 1/1.1 (b) gravés dans une couche de cobalt de 40 nm d'épaisseur.

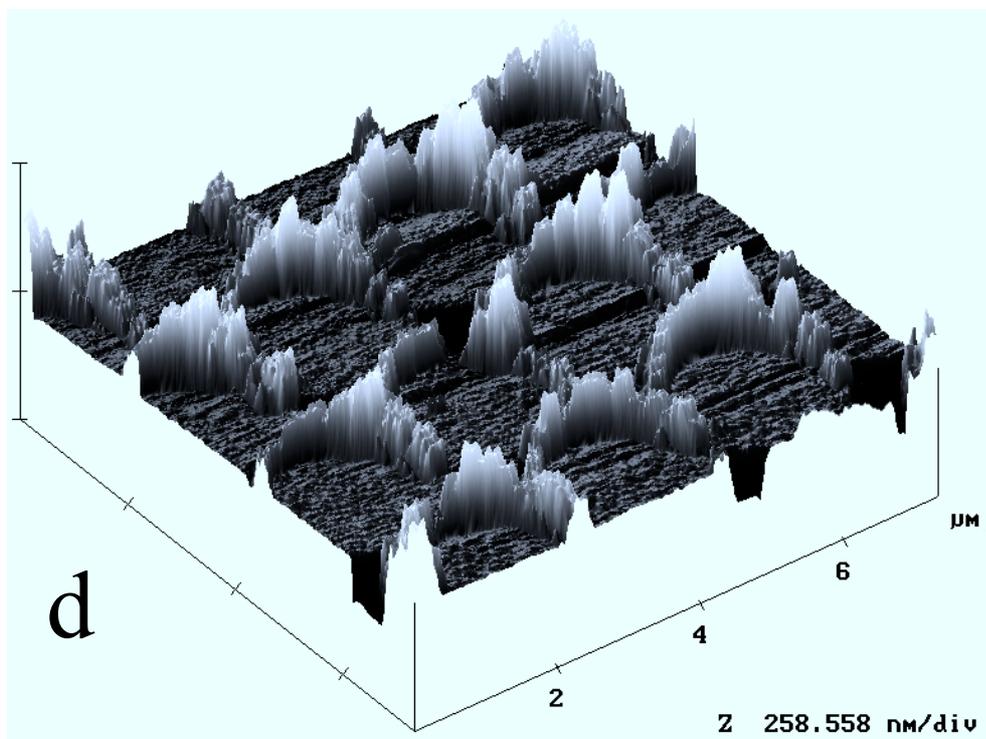
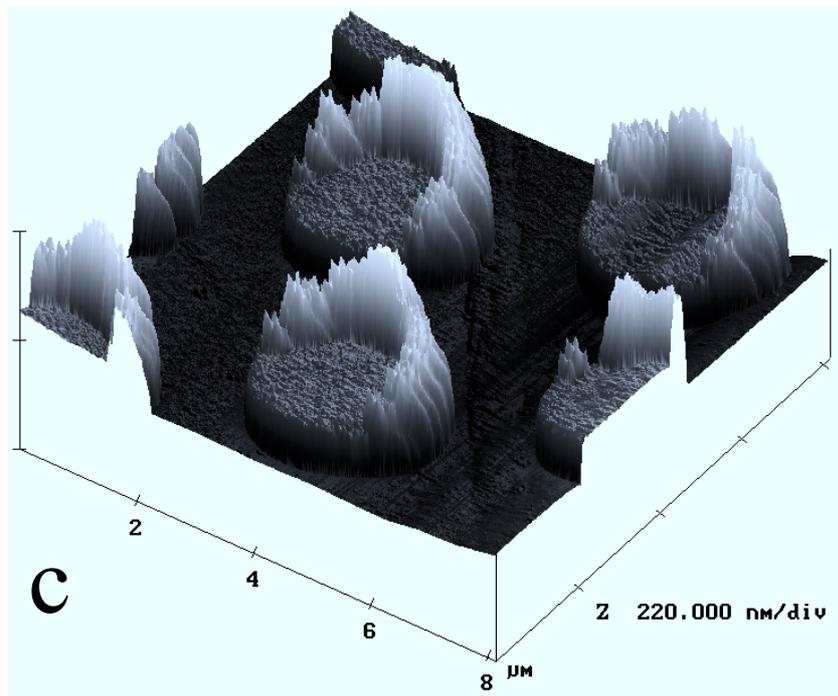


figure 3.21 : images AFM des réseaux de plots de cobalt 2/4 (c) et 2/2.2 (d) gravés dans une couche de cobalt de 40 nm d'épaisseur.

2.2.2. Pourquoi le redépôt est-il asymétrique ?

L'examen de la figure 3.21.c nous montre que la forme des collerettes est asymétrique et que le redépôt de plus forte hauteur est toujours situé dans la même direction. Ce type de redépôt a été mis en évidence à chaque fois que la source d'aluminium n'était pas centrée sur le réseau de plots. La cause de cette asymétrie provient d'un effet d'ombrage lors du dépôt à cause de la topographie de la surface. En effet, si l'on considère que le flux de matière incident est directif, un angle non nul entre la direction du flux et la normale à la surface entraînera l'apparition d'une ombre pour le dépôt d'aluminium tel qu'il est représenté sur la figure 3.22a (respectivement figure 3.22b) avant (respectivement après) dissolution de la résine. Lors de la gravure ionique, il y aura donc plus d'atomes de cobalt qui se redéposeront sur les parties hautes d'aluminium. Dans la suite des expériences, un soin particulier a été porté au centrage de la source par rapport aux réseaux.

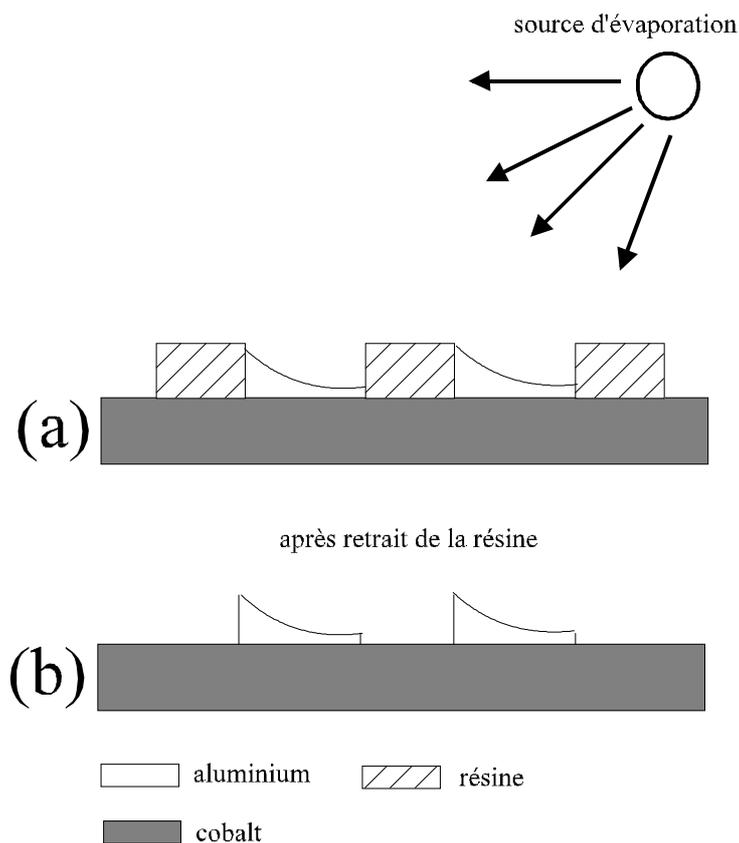


figure 3.22 : schéma de la géométrie du dépôt des couches d'aluminium à l'origine de l'asymétrie des collerettes.

2.2.3. Pourquoi le diamètre intérieur des plots est il plus petit que $1\mu\text{m}$?

Nous avons vu qu'un plot de $1\mu\text{m}$ de diamètre tel qu'il est réalisé sur un masque de lithographie X se transforme en un plot plus large lorsqu'il est gravé dans la couche de cobalt. Le diamètre de la surface plane du plot quant à lui devrait être conservé et égal à celui du masque car cette zone est protégée lors de la gravure ionique. Cependant, si l'on se rapporte à la figure 3.21b, nous voyons que ce n'est pas le cas mais que la distance entre les maxima des collerettes est inférieure à $1\mu\text{m}$.

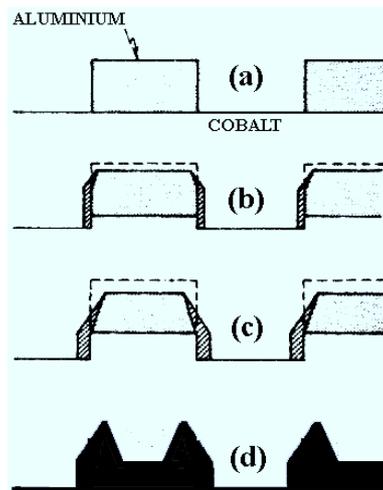


figure 3.23 : représentation schématique des différentes étapes de la gravure ionique d'un réseau de plots d'aluminium sur une couche de cobalt (a-c) en tenant compte du redépôt de cobalt [Glö 75]. Schéma de la topographie vue en AFM (d) après dissolution de l'aluminium à cause de la taille finie de la pointe.

Nous pouvons interpréter ce résultat en terme de facetage, de création de plan à vitesse de gravure maximale et de redépôt. Supposons que nos plots d'aluminium soient parallélépipédiques avec des coins arrondis (figure 3.23a). Un angle arrondi offre une distribution d'angles d'attaque pour le faisceau d'ions égale à 90° . Or, nous savons que la distribution angulaire des taux de pulvérisation présente un maximum pour le cobalt à un angle bien déterminé, θ_c . C'est pourquoi, le plan de gravure faisant cet angle θ_c va être favorisé par rapport à tous les autres car sa vitesse de gravure est plus élevée (figure 3.23b). Ce facetage, créé dans les premiers stades de l'abrasion, se poursuit tout au long de la gravure. Le profil final est représenté sur la figure 3.23c avant le retrait de la couche d'aluminium. Après le retrait de l'aluminium et à l'aide d'un AFM, nous n'avons pas directement accès au profil réel du plot car la pointe ne permet pas de voir la partie inférieure de la corniche. A cause de l'effet lié à la pointe, nous aurons, pour le même profil physique, le profil représenté sur la figure 3.23d.

2.3. Solutions au problème des redépôts

Plusieurs mesures ont été prises pour remédier aux problèmes liés à la géométrie des plots à graver. Tout d'abord, nous avons décidé d'optimiser l'épaisseur de la couche de protection d'aluminium. Celle-ci devra être juste assez épaisse pour protéger les plots pendant le temps de la gravure. Les dépôts des couches d'aluminium seront réalisés en prenant garde à l'alignement entre la source d'évaporation et le réseau de plots.

D'autres tests ont porté sur la méthode de gravure. Nous avons réalisé des gravures ioniques à l'aide d'un bâti de pulvérisation cathodique en plaçant l'échantillon en position de cible dans le laboratoire du Pr. Freitas au Portugal. Cette méthode est moins directive que celle utilisant des cellules de Kauffman et de ce fait plus lente. En effet, le temps de gravure d'un échantillon de 80 nm d'épaisseur passe de quelques minutes à 1 heure 45 minutes.

Les images d'AFM obtenues après une telle gravure sont rassemblées dans la figure 3.24. Nous pouvons voir que la qualité des plots est bien meilleure que celle obtenue par un faisceau directif, surtout dans le cas des réseaux de plots serrés. Notamment, une étude topographique montre que la hauteur des collerettes n'est plus qu'égale à 40% de l'épaisseur de la couche d'aluminium de départ. Nous n'avons pas poursuivi d'études avec cette méthode car, d'une part, elle est beaucoup trop lente pour être appliquée dans le milieu industriel et, d'autre part, l'optimisation de l'épaisseur de la couche d'aluminium devrait avoir raison du problème de collerette.

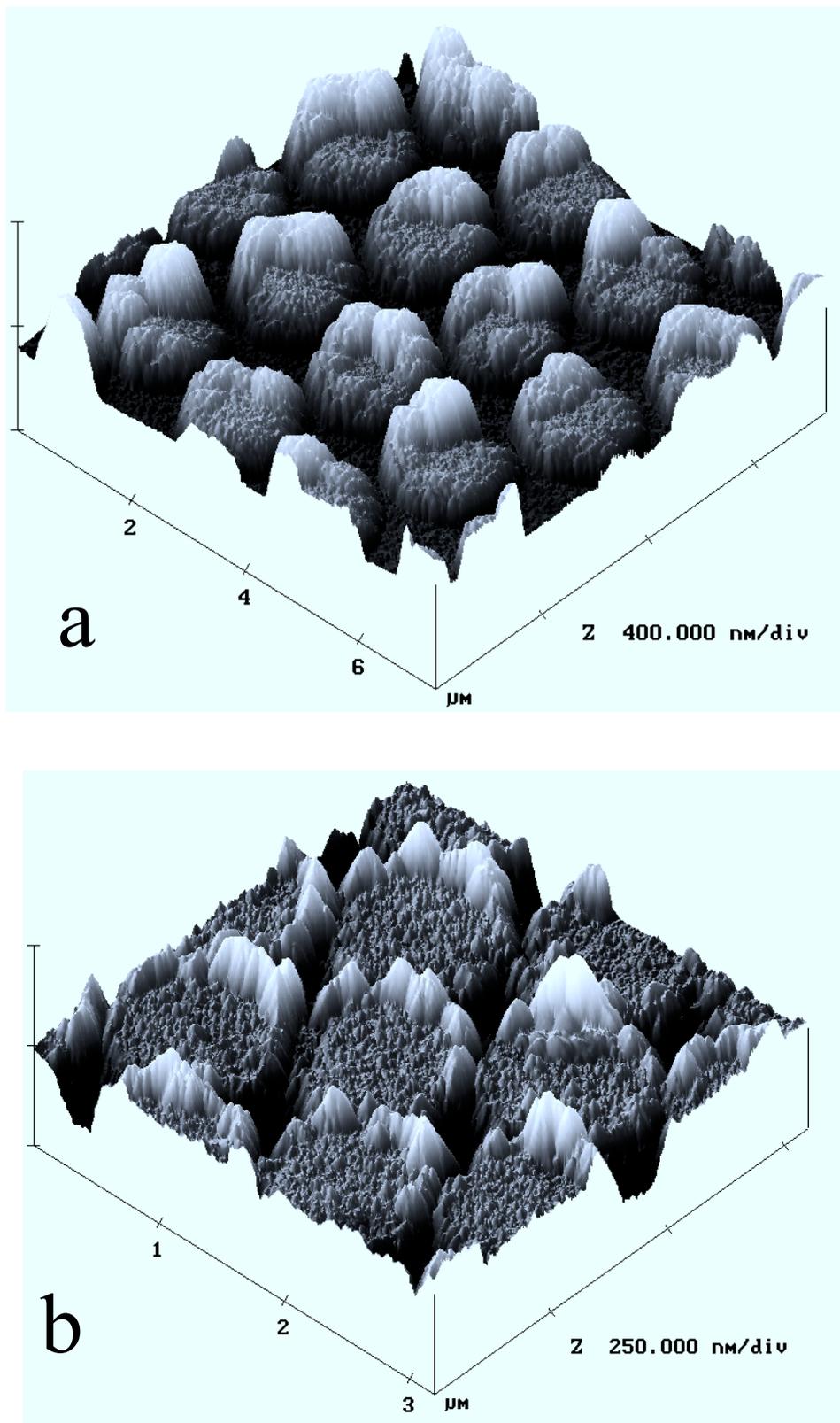


figure 3.24 : images AFM des réseaux de plots de cobalt 1/2 (a), 1/1.1 (b) gravés dans une couche de cobalt de 80 nm d'épaisseur à l'aide de la pulvérisation cathodique.

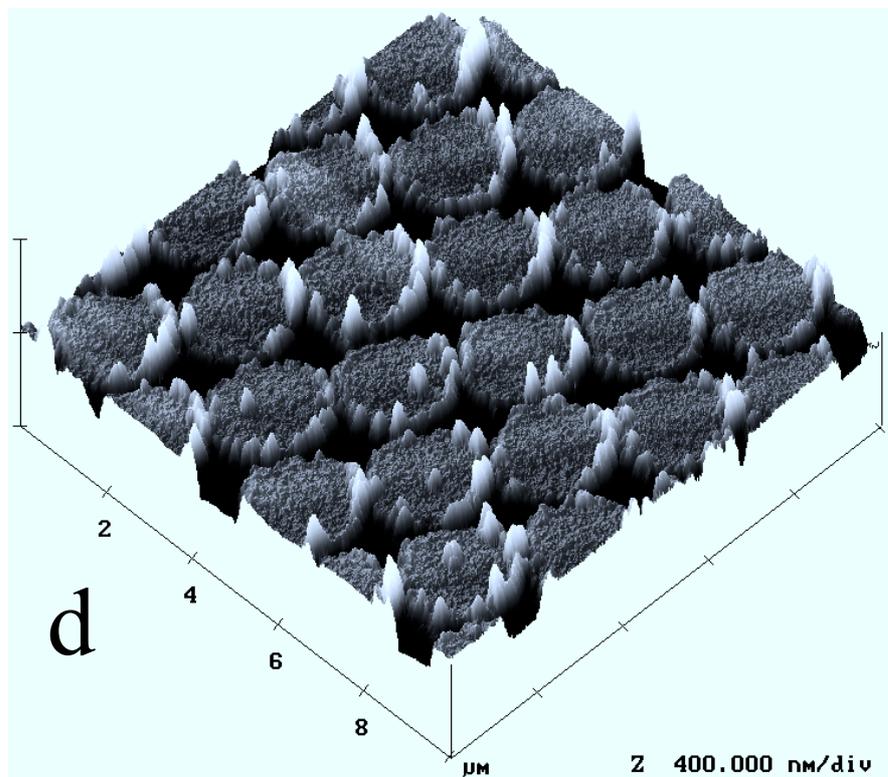
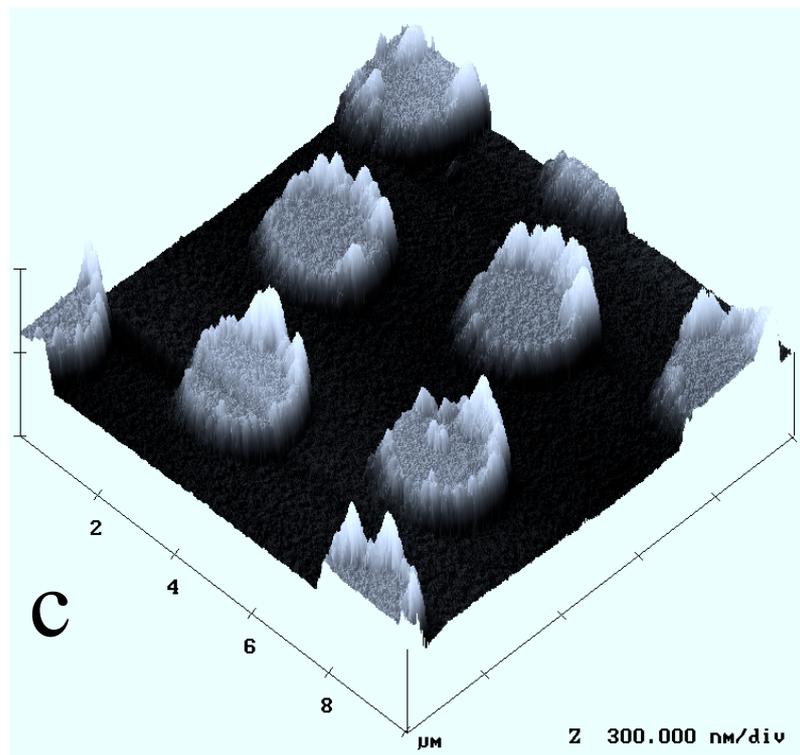


figure 3.24 : images AFM des réseaux de plots de cobalt 2/4 (c) et 2/2.2 (d) gravés dans une couche de cobalt de 80 nm d'épaisseur à l'aide de la pulvérisation cathodique.

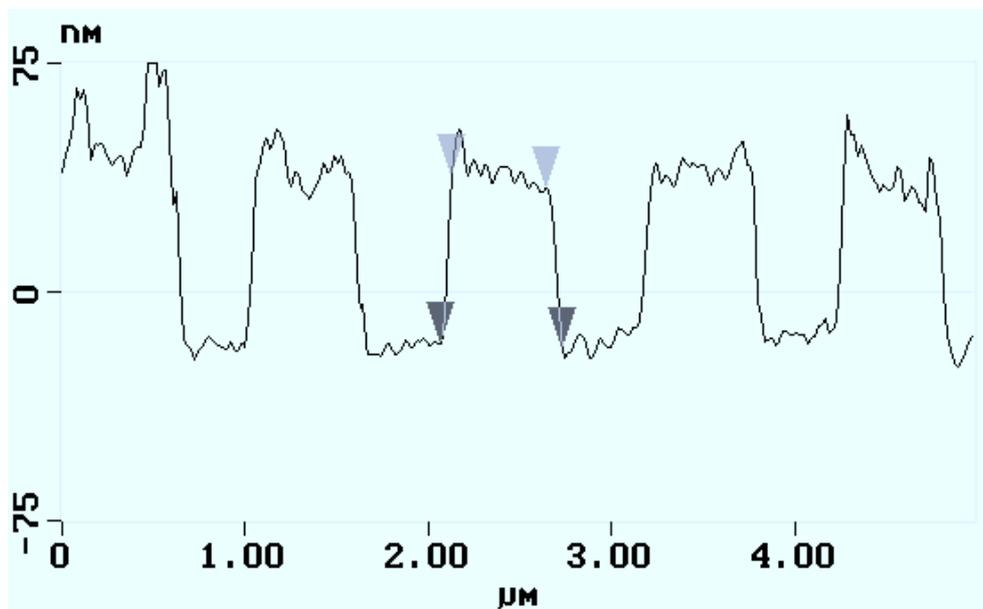
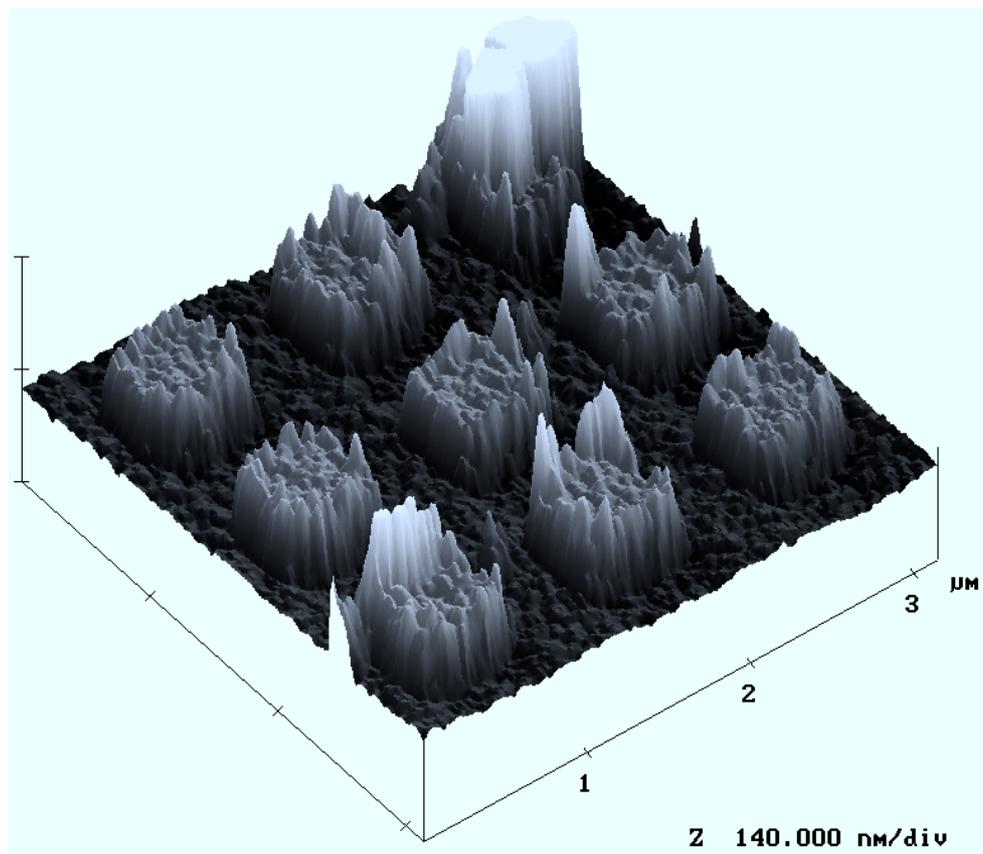


figure 3.25 : image AFM et section transverse d'un réseau de plots d'aluminium de 58 nm d'épaisseur.

3. QUALITE DES ECHANTILLONS : RESEAUX DE PLOTS CARRES (IEF5)

L'ensemble des résultats que nous venons d'exposer est relatif aux premiers essais que nous avons effectués au début de cette thèse. Les leçons tirées de cette étude préliminaire vont nous être utiles pour la réalisation de plots carrés de $0.5 \mu\text{m}$ de côté espacés de $0.5 \mu\text{m}$. A chaque étape de l'élaboration, une analyse topographique a été menée.

3.1. Evolution de la forme des plots en fonction de l'épaisseur

La première étape consiste à caractériser le masque de plots d'aluminium. La figure 3.25 est un exemple de réseau de plots d'aluminium d'épaisseur égale à 58 nm . Nous voyons que la forme latérale des plots est bien définie alors que la surface est très rugueuse. La taille latérale des plots est en accord avec celle du masque, preuve que le processus de révélation des trous dans la résine a été bien optimisé : la largeur de la base du plot est estimée à $0.65 \mu\text{m}$ alors que la largeur du plot à son sommet est égale à $0.55 \mu\text{m}$. En effet, la taille du trou dans la couche de résine est naturellement dépendante de la taille du motif du masque mais aussi de la dose, de la température de recuit de la résine et du temps d'exposition. Nous pouvons également remarquer la présence de petites collerettes qui n'ont pas été éliminées lors du retrait de la résine. Lors du dépôt, il est possible que des particules d'aluminium se soient collées sur les flancs des trous.

Un exemple de réseau de plots, après gravure ionique, est représenté dans la figure 3.26 pour un échantillon d'épaisseur totale égale à 110 nm . Nous voyons que la forme carrée du plot est bien conservée. Une coupe transverse de l'image nous montre le profil d'une série de plots. La forme rectangulaire du plot de départ est également conservée même si les coins supérieurs sont légèrement arrondis. Cet effet s'amplifie lorsque le temps de gravure augmente c'est à dire lorsque l'épaisseur de couche à graver devient grande.

Pour finir, la caractérisation topographique de tous les échantillons est présentée en fonction de l'épaisseur des plots de cobalt sur la figure 3.27 après retrait de la couche de protection d'aluminium. Comme nous pouvons le voir, la qualité topographique des plots diminue lorsque l'épaisseur des plots augmente. Cependant, elle est suffisante pour des épaisseurs inférieures à 200 nm pour mener l'étude du magnétisme dans ces petites structures. En effet, pour des épaisseurs supérieures à 200 nm , l'augmentation de la rugosité et des distributions de tailles et de formes des plots sont susceptibles d'avoir une grande influence sur la distribution des domaines dans les plots.

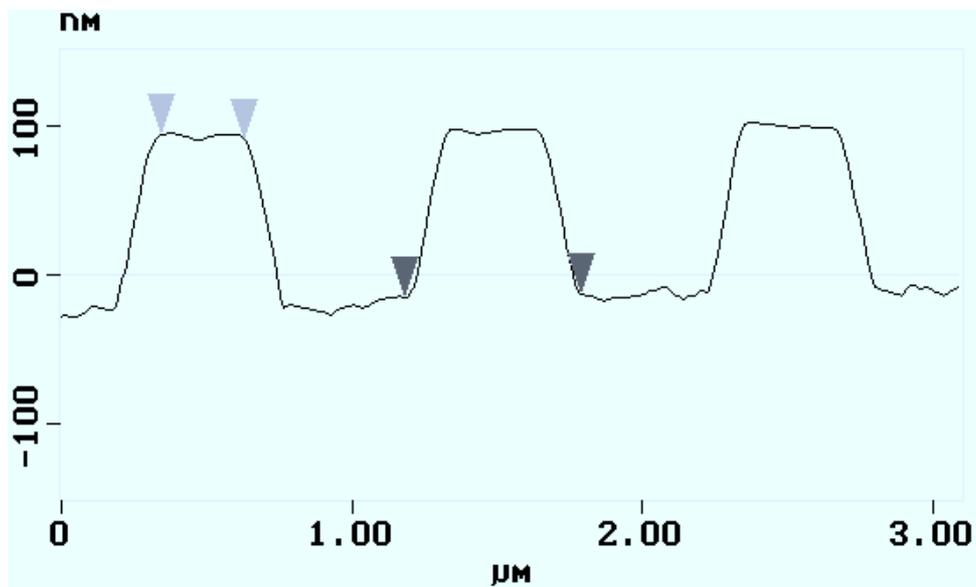
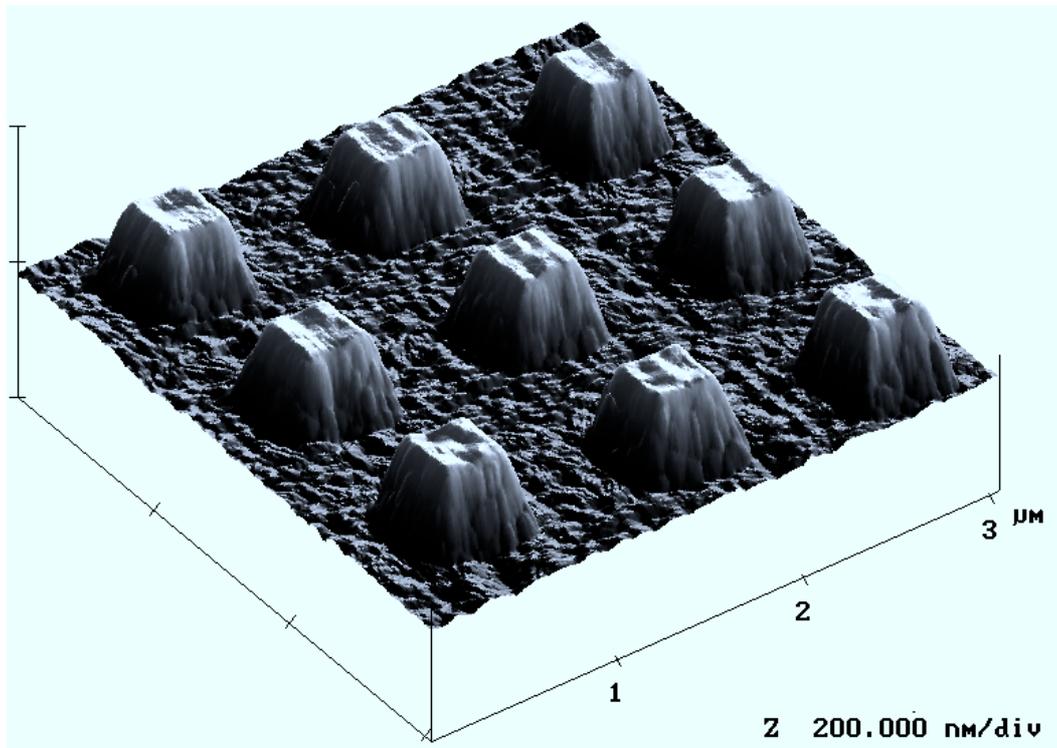


figure 3.26 : image AFM et section transverse d'un réseau de plots de cobalt de 110 nm d'épaisseur totale.

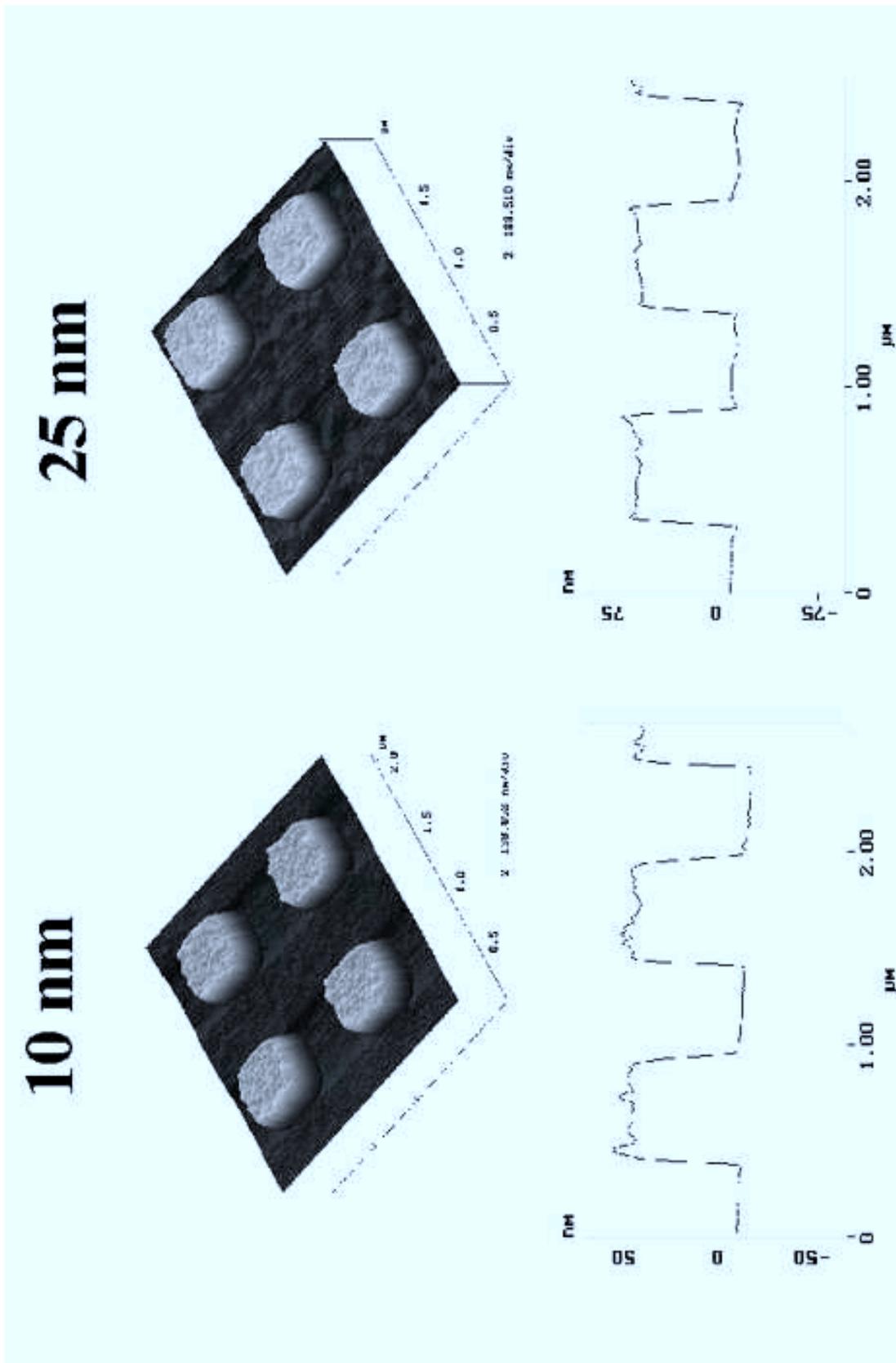


figure 3.27 : images AFM et sections transverses des réseaux de plots de cobalt de $0.5 \mu\text{m}$ de côté en fonction de l'épaisseur.

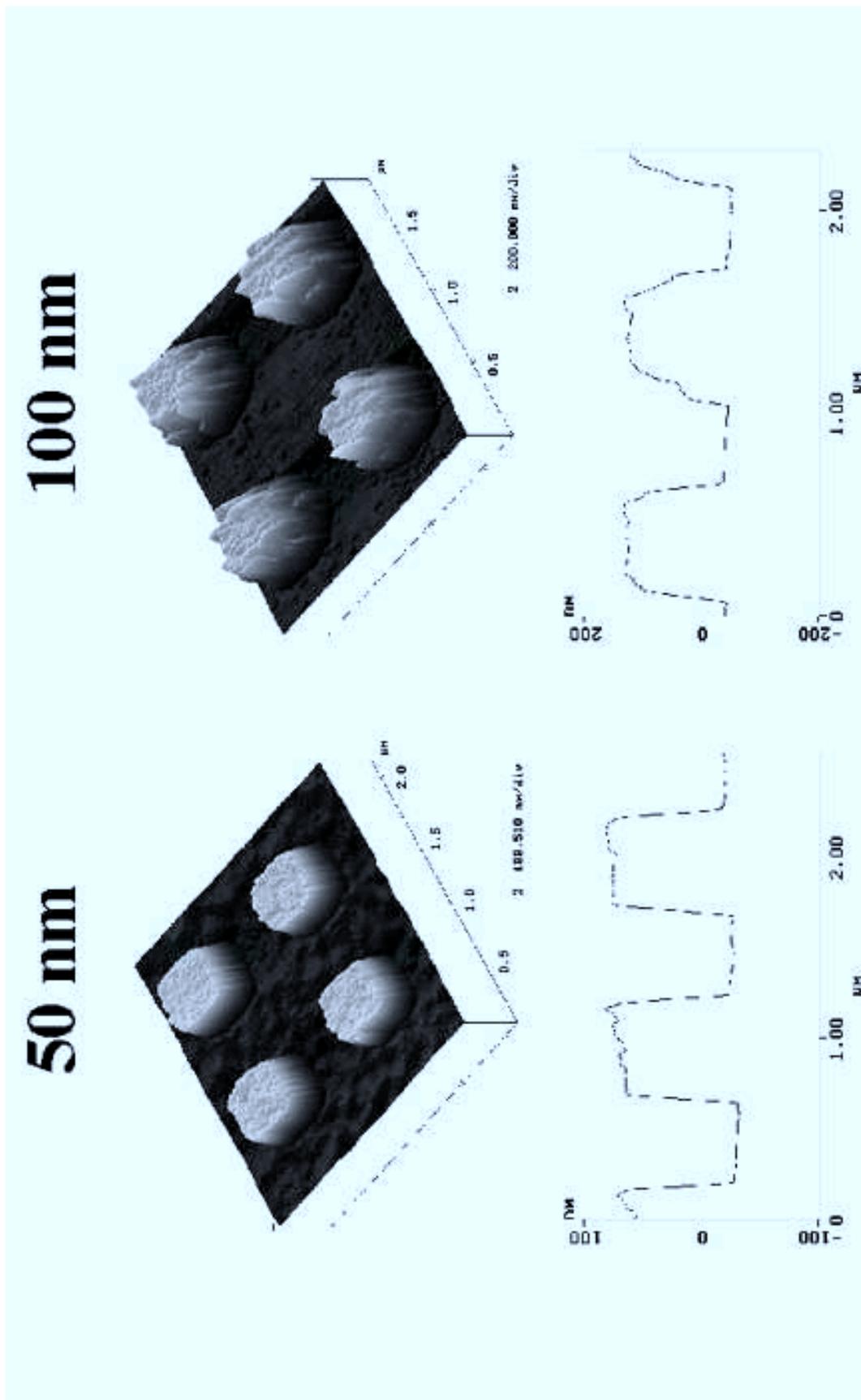


figure 3.27 : images AFM et sections transverses des réseaux de plots de cobalt de $0.5 \mu\text{m}$ de côté en fonction de l'épaisseur.

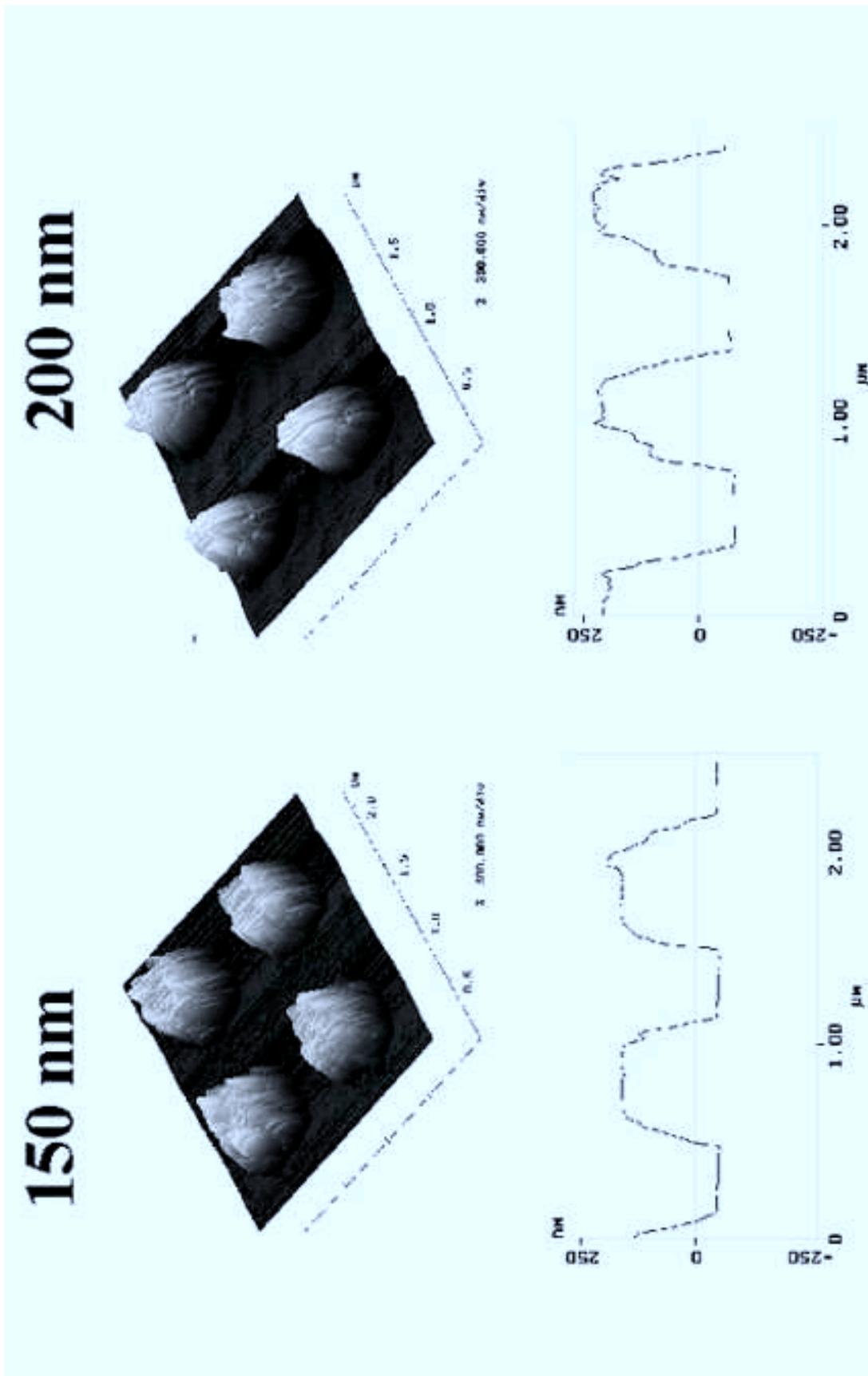


figure 3.27 : images AFM et sections transverses des réseaux de plots de cobalt de 0.5 μm de côté en fonction de l'épaisseur.

L'interprétation de l'arrondissement des plots est en fait la même que celle présentée au paragraphe B.2.2, mais dans le cas présent, l'épaisseur de la couche d'aluminium a été optimisée pour éviter la formation de collerettes. L'ensemble du processus est présenté dans la figure 3.28. Après la formation des facettes (figure 3.28b), leur propagation est assurée par une vitesse de gravure supérieure à celle de la surface du plot. C'est pourquoi, il arrivera un moment où, sur le bord du plot, l'épaisseur de la couche d'aluminium n'est plus suffisante pour protéger le cobalt sous-jacent (figure 3.28c) : le plot de cobalt sera donc également exposé au faisceau ionique. Comme les deux matériaux ne possèdent pas les mêmes angles optimaux de gravure, une autre série de facettes est créée. Ainsi, à la fin de la gravure (figure 3.28d), il peut subsister un résidu de la couche de protection mais la forme finale du plot est arrondie.

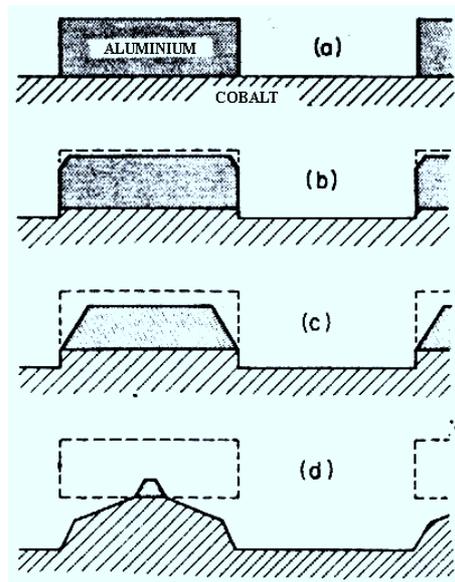


figure 3.28 : représentation schématique des différentes étapes de la gravure ionique d'un réseau de plots d'aluminium sur une couche de cobalt en tenant compte de la gravure du masque [Glö 75].

Nous avons également étudié la rugosité des surfaces planes du réseau de plots c'est à dire de la surface du plot et de l'espace se trouvant entre les plots. Cette analyse a montré qu'il n'y avait pas d'aggravation de la rugosité lors des différents processus de lithographie X, de gravure ionique et de lift-off par rapport à celle de la couche de cobalt de départ.

3.2. Evolution des dimensions des plots en fonction de l'épaisseur

Le tableau 3.2 rassemble l'ensemble des cotes des réseaux de plots de cobalt fabriqués à l'aide du masque IEF5. Il montre que la largeur des plots augmente avec son épaisseur alors que le pas du réseau reste à peu près constant. Cette augmentation est directement corrélée à la redéposition d'atomes éjectés qui tend à accroître la taille apparente des éléments gravés tout en conservant leur

périodicité. On peut noter que la hauteur des plots mesurée à partir des images AFM tient compte de l'épaisseur gravée de la couche tampon et de celle de la couche de protection de ruthénium.

épaisseur Co (nm)	hauteur plot (nm)	côté plot (nm)	pas réseau (nm)
10	55,6	604	1051
25	69,3	630	1015
50	96,7	625	1030
100	163,7	632	1046
150	207,1	700	1020
200	276,9	700	1060

tableau 3.2 : mesures des différentes cotes des réseaux de plots de cobalt fabriqués à l'aide du masque IEF5.

3.3. Evolution de la structure cristalline des plots

Comme nous allons le voir dans la suite de cette thèse, des effets magnétiques spectaculaires apparaissent lorsque la taille latérale de la couche est réduite. Cependant, afin de dissocier ces effets d'un éventuel changement de la structure cristalline du cobalt, nous avons décidé de vérifier, par résonance magnétique nucléaire (RMN), la structure du réseau de plots de 100 nm d'épaisseur. Nous n'avons pas entrepris une étude systématique en fonction de l'épaisseur car ce réseau se situait à une épaisseur intermédiaire représentative de toutes les autres. Nous avons montré qu'il n'y avait pas de changement drastique de la structure cristalline locale comme on peut le voir sur la figure 3.29 puisque la raie d'absorption est positionnée à la fréquence attendue pour un empilement hexagonal du cobalt.

4. CONCLUSIONS DE CE CHAPITRE

Tout au long de ce chapitre, nous avons montré comment nous avons optimisé les conditions de dépôt des couches d'aluminium et de gravure des couches de cobalt pour obtenir des plots de bonne qualité structurale. Cette optimisation a été réalisée à l'aide du masque IEF3 car, historiquement, c'était le premier masque disponible au L2M. Cependant, nous nous sommes rendus compte que pour l'étude des confinements de domaines, les plots contenus dans le masque IEF5 étaient beaucoup plus appropriés. C'est pourquoi, nous avons présenté les résultats de l'optimisation pour les plots de 0.5 μm qui seront étudiés dans le chapitre VI. Des résultats structuraux similaires ont pu être obtenus pour les plots issus du masque IEF3 et ont été reportés dans la thèse de N. Bardou [Bar 96].

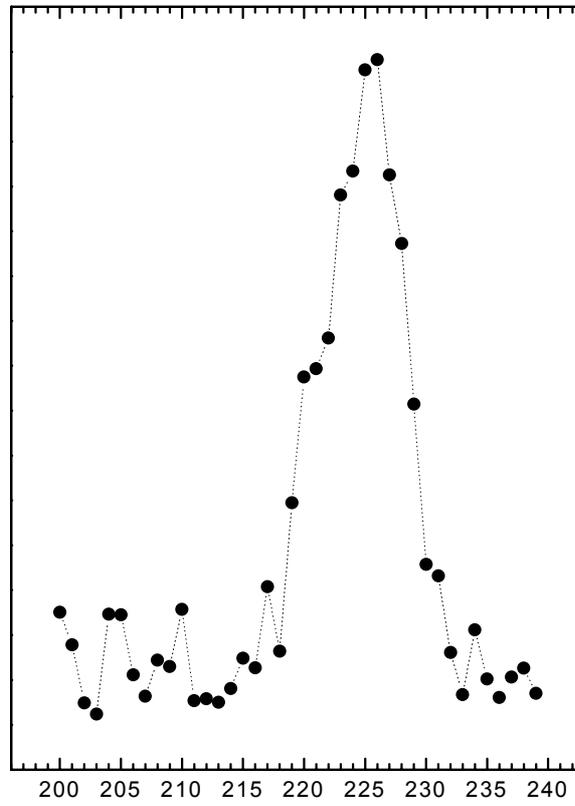


figure 3.29 : spectre RMN du réseau de plots de 100 nm d'épaisseur tiré de [Gra 96].

Références chapitre III

- [Auc 81] O. Auciello, *J. Vac. Sci. Technol.* **19** (4), 841 (1981).
- [Azi 95] A. Azizi, S. M. Thompson, K. Ounadjela, J. F. Gregg, P. Vennegues, A. Dinia, J. Arabski et C. Fermon, *J. Mag. Mat.* **148**, 313 (1995).
- [Bar 96] N. Bardou, thèse de doctorat, Université Paris XI Orsay (1996).
- [Ber 91] D. Berard, thèse de doctorat, Université d'Orsay (1991).
- [Blo 94] A. Blondel, J. P. Meier, B. Doudin et J.-Ph. Ansermet, *Appl. Phys. Lett.* **65**, 3019 (1994).
- [Cee] CEETAM, *Initiation et perfectionnement en microélectronique pour ingénieurs et techniciens*, Université Paris XI.
- [Dup 94] V. Dupuis, J. P. Perez, J. Tuaille, V. Paillard, P. Mélinon, A. Perez, B. Barbara, L. Thomas, S. Fayeulle, J. M. Gay, *J. Appl. Phys.* **76** (10), 6676 (1994).
- [Ebe 89] J.P. Eberhart, *Analyse structurale et chimique des matériaux*, édition Dunod (1989).
- [Ell 86] P. Elleaume, *Principe de fonctionnement des anneaux de stockage et caractéristiques du rayonnement synchrotron*, école d'été rayonnement synchrotron, Aussois, Septembre 1986.
- [Fis 86] R. Fischer *et al.*, *Microcircuit Engineering* **5**, 193 (1986).
- [Glö 75] Per G. Glöersen, *J. Vac. Sci. Technol.* **12** (1), 25 (1974).
- [Gra 96] W. Grange, Stage de DEA, Université Louis Pasteur (1996).
- [Hag 90] A.M. Haghiri-Gosnet, F. Rousseaux, B. Kebabi, F.R. Ladan, C. Mayeux, A. Madouri, D. Decanini, J. Bourneix, F. Carcenac, H. Launois, B. Wisniewski, E. Gat, J. Durand, *J. Vac. Sci. Technol.* **B8** (6) (1990).
- [Hsi 94] G. S. Hsiao, R. M. Penner et J. Kingsley, *Appl. Phys. Lett.* **64** (11), 1350 (1994).
- [Lee 79] R. E. Lee, *J. Vac. Sci. Technol.* **16** (2), 164 (1979).
- [Mir 97] C. Miramon, thèse de doctorat, Université Paris XI Orsay (1997).
- [Röd 93] H. Röder, E. Hahn, H. Brune, J.-P. Bucher et K. Kern, *Nature* **366**, 141 (1993).
- [Rou 92] F. Rousseaux, *Annales de Physique*, colloque n°1, supplément au n°3, Vol 17 (1992).
- [Rou 95] F. Rousseaux *et al.*, *J. Vac. Sci. Technol. B* **13**, 2787 (1995).
- [Smy 91] J. F. Smyth, S. Schultz, D. R. Fredkin, D. P. Kern, S. A. Rishton, H. Schmid, M. Cali et T. R. Koehler, *J. of Appl. Phys.* **69** (8), 5262 (1991).
- [Spe 71] E.G. Spencer and P.H. Schmidt, *J. of Vac. Sci. Technol.* **8** (5), 220 (1971).
- [Sud 88] P. Sudraud, G. Ben Assayag et M. Bon, *J. Vac. Sci. Technol. B* **6**, 234 (1988).
- [Tre] G. Tremblay, Rapport interne n° 89-04 du CEETAM, Université Paris Sud.

CHAPITRE IV

Mesure des propriétés magnétiques

Les propriétés magnétiques statiques et dynamiques de réseaux de petites particules peuvent être mesurées à différentes échelles. Tout d'abord, le magnétisme « technique » c'est à dire macroscopique a été étudié à l'aide d'un magnétomètre à gradient de champ (AGFM), d'un magnétomètre à SQUID (Superconducting Quantum Interference Device) et d'un pendule de torsion. A cette échelle, nous obtenons le comportement magnétique global de l'échantillon. Puis, le magnétisme microscopique a été étudié à l'aide d'un microscope à force magnétique (MFM). Dans la majorité des cas, les renseignements tirés de l'étude de la microstructure magnétique permettent d'expliquer le comportement magnétique macroscopique comme nous allons le voir dans les chapitres V et VI.

Avant de rentrer dans le vif du sujet, nous présentons dans ce chapitre les différentes techniques utilisées en mettant l'accent sur la mise en oeuvre de la technique du MFM et l'interprétation des images mesurées.

A. MESURE DU MAGNETISME MICROSCOPIQUE : LA MICROSCOPIE A FORCE MAGNETIQUE

Après avoir présenté les origines du microscope à force magnétique, j'exposerai le principe fondamental de son fonctionnement, sa mise en oeuvre expérimentale ainsi que la théorie du signal MFM nécessaire à la compréhension des images mesurées.

1. INTRODUCTION

Le succès obtenu par le microscope à effet tunnel (STM) a stimulé le développement de nombreux microscopes où une sonde est balayée au dessus d'une surface. La mise au point d'un microscope à force atomique par Binnig et collaborateurs [Bin 86] en 1986 a été décisive puisque celui-ci donne une alternative au STM pour l'étude des matériaux isolants. En effet, le microscope à force atomique est sensible aux forces résultantes des interactions entre une pointe et une surface et non à la mesure d'un courant tunnel.

Une sonde, qui a généralement la forme d'une pointe, est montée sur un support élastique ayant une constante de raideur très faible comprise entre 0,1 et 10 N/m appelé cantilever. Lorsque la pointe est approchée d'une surface, l'état du cantilever change et l'on peut mesurer soit sa déflexion, soit la variation de sa fréquence de résonance selon le mode de fonctionnement utilisé. Pour former une image, la sonde balaye la surface et l'interaction de la pointe avec la surface est mesurée en tout point.

Le concept de microscope de force est tout à fait général et peut être appliqué à des forces autre que d'origine atomique. En effet, Binnig a montré qu'un tel microscope était capable de mesurer des forces d'origine électromagnétique. Depuis quelques années, la mesure du type de forces a été étendue aux forces magnétiques [Mar 87b], électrostatiques [Ste 88] ou de type Van der Waals [Mar 87].

Le premier microscope à force magnétique a été réalisé par Martin et collaborateurs [Mar 87b] pour la mesure du champ de fuite de têtes de lecture magnétiques. Peu de temps après, Saenz et collaborateurs [Sae 87] et Allenspach et collaborateurs [All 87] publièrent des images MFM qu'ils pensaient provenir de parois de domaines. Par la suite, l'imagerie de domaines dans des supports de stockage magnéto-optiques par Martin et collaborateurs [Mar 88] a démontré le potentiel de la technique et son importance pour l'étude des supports de stockage magnétiques.

La force de cette technique réside dans sa très haute résolution, de l'ordre de la dizaine de nanomètres [Grü 90], et dans la facilité de sa mise en oeuvre puisqu'elle ne nécessite pas de préparation particulière de l'échantillon. De plus, l'échantillon peut être recouvert d'une couche de protection et muni d'un substrat quelconque.

2. PRINCIPE DU MICROSCOPE A FORCE MAGNETIQUE (MFM)

La figure 4.1 illustre le concept de base du MFM. Considérons un échantillon magnétique dont la structure en domaines est représentée par les flèches. Le champ de fuite créé par cet échantillon induit une force sur la pointe qui est solidaire d'un support flexible, le cantilever. La flexion du cantilever est mesurée en fonction de la position de la pointe sur l'échantillon.

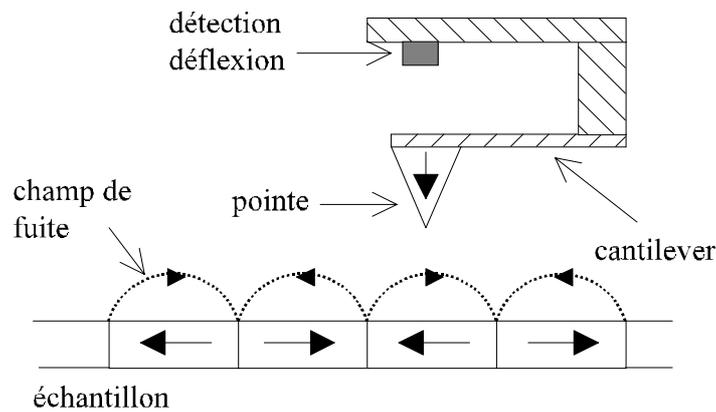


figure 4.1 : schéma représentatif du concept de base de la microscopie à force magnétique.

Si la pointe est considérée comme un dipôle magnétique, alors la force agissant sur la pointe est donnée par le gradient de son énergie dans le champ de fuite de l'échantillon à savoir

$$\vec{F} = \vec{\nabla}(\vec{m} \cdot \vec{H}_d) \quad (4.1)$$

où \vec{m} est le moment magnétique de la pointe et \vec{H}_d est le champ de fuite de l'échantillon. En l'absence de courant appliqué, c'est à dire $\vec{\nabla} \times \vec{H} = 0$ (Voir annexe A), l'expression de la force peut se mettre sous la forme

$$\vec{F} = (\vec{m} \cdot \vec{\nabla}) \vec{H}_d \quad (4.2)$$

Pourtant, une pointe réelle a une certaine forme et ne peut être assimilée à un dipôle ponctuel. C'est pourquoi, cette expression doit être intégrée sur tout le volume de la pointe.

La théorie de la réponse MFM n'est pas facile puisque la technique ne donne pas la mesure directe de la distribution d'aimantation du matériau. En fait, le signal MFM provient essentiellement des inhomogénéités de l'aimantation dans le matériau. Par exemple, la densité de pôles magnétiques dans un volume est donnée par $-\vec{\nabla} \cdot \vec{M}$ (Voir annexe A). Le signal MFM sera donc plus important lorsque la direction de l'aimantation varie rapidement sur de petites distances. En cela, la technique est proche de la technique des poudres de Bitter [Bit 31] où de fines particules sont attirées par les régions de plus fort gradient de champ magnétique.

Afin d'avoir une idée de l'amplitude des forces mises en jeu, calculons la force qui s'exerce entre deux petites sphères distantes de \vec{r} . Le champ magnétique du moment \vec{m}_1 à la position du moment \vec{m}_2 est donné par

$$\vec{H}(\vec{r}) = \frac{3\hat{r}(\hat{r} \cdot \vec{m}_1) - \vec{m}_1}{r^3} \quad (4.3)$$

où \hat{r} est le vecteur unitaire dans la direction de \vec{r} . En utilisant l'expression (4.1), on obtient l'expression de la force

$$\vec{F} = \vec{\nabla} \left(\frac{3(\vec{m}_1 \cdot \hat{r})(\vec{m}_2 \cdot \hat{r}) - \vec{m}_1 \cdot \vec{m}_2}{r^3} \right) \quad (4.4)$$

Si les dipôles pointent dans la direction z, alors l'expression de la force est

$$F_z = -\frac{6m_1m_2}{z^4} \quad (4.5)$$

et le gradient de la force est donné par

$$\frac{\partial F_z}{\partial z} = \frac{24m_1m_2}{z^5} \quad (4.6)$$

Pour des particules de Fer de 10 nm de diamètre, séparées de 10 nm de centre à centre, la force est égale à 4.9×10^{-11} N et le gradient est égal à 1.9×10^{-2} N/m. Ces quantités sont détectables par un microscope de force.

3. TECHNIQUE DE MESURE

3.1. Caractéristiques d'un microscope à force magnétique

La microscopie de force magnétique est un cas particulier de la technique plus générale de microscopie de force sans contact. En général, l'image est réalisée à une distance d'environ 40 nm ou plus au dessus de l'échantillon. Les composants du microscope sont les mêmes que ceux de tout microscope de force

- un système de détection de flexion du cantilever
- un système de balayage qui est constitué d'un matériau piézo-électrique
- une pointe magnétique très fine attachée à un cantilever
- un système de rétroaction qui permet de maintenir constante soit la force soit la hauteur
- un système qui permet d'afficher et de stocker les images mesurées

Le choix de chaque composant du microscope est libre à l'utilisateur. Les pointes sont réalisées soit à partir d'un fil ferromagnétique ou préparées à partir d'une pointe AFM avec un dépôt d'un matériau ferromagnétique. Le système de détection de flexion peut être composé d'un élément capacitif, optique, piézo-électrique....

3.1.1. Élément de mesure de la flexion du cantilever

Dans le premier microscope fabriqué par Binning [Bin 86], la flexion du cantilever était mesurée à l'aide de la détection du courant tunnel entre le cantilever et une pointe STM située derrière le cantilever. Les inconvénients de ce système reposent sur le fait que le cantilever doit être conducteur et très propre afin de former une bonne jonction tunnel.

Depuis, de nouvelles techniques de détection ont été mises au point. Les plus répandues sont les détections optiques (mesure de déflexion ou interférométrie) [Mey 88, Mar 87]. Celles-ci présentent beaucoup d'avantages par rapport à la technique initiale. En effet, le cantilever n'a pas besoin d'être ultrapropre et il n'est pas perturbé par la force exercée par une pointe STM. De plus, de grandes déflexions sont possibles dans les cas de grandes forces. Dans notre cas, une diode photoélectrique à quatre quadrants assure la mesure de la déflexion verticale ainsi que la torsion horizontale par réflexion d'un laser sur la face arrière de la pointe.

On peut également citer l'apparition de détection à l'aide d'éléments capacitifs [Göd 90] et piézo-électriques [Göd 88] qui se sont développés depuis ces dernières années.

3.1.2. Déplacement de l'échantillon

Dans un microscope de force, le déplacement dans les trois directions de l'espace se fait à l'aide de cales piézo-électriques. Les matériaux piézo-électriques ont la particularité de subir une déformation mécanique lorsqu'ils sont soumis à un champ électrique. Ce principe est utilisé pour induire des déplacements de très faible amplitude dans les techniques d'analyse locale.

Deux montages expérimentaux sont alors possibles : soit l'échantillon reste fixe et la pointe est déplacée, soit c'est le contraire. Dans notre cas, la pointe est solidaire de toute la tête optique contenant le laser, un miroir et la diode de détection. Afin d'éviter les problèmes liés à l'inertie de déplacement de la tête optique, c'est l'échantillon qui est déplacé et la pointe est maintenue fixe.

Le balayage de la surface se fait par lignes selon une direction x comme indiqué sur la figure 4.2. Après avoir mesuré la résultante des forces selon une ligne (1), la pointe est déplacée d'une distance δy dans la direction y orthogonale à x (2) et l'opération est renouvelée sur toute la surface (3) etc... La direction x est appelée axe de balayage lent et la longueur maximale de la ligne avec les cales disponibles au laboratoire est égale $140 \mu\text{m}$.

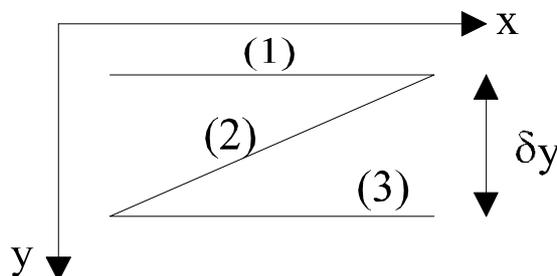


figure 4.2 : schéma représentatif du balayage de la pointe au dessus de l'échantillon.

3.1.3. Élément de détection des champs de fuite : le système pointe + cantilever

L'un des éléments clef d'un microscope à force magnétique est le système constitué de la pointe et du cantilever car les forces mesurées sont de faible intensité et à longue portée. Dans la majorité des cas, les pointes sont réalisées soit à partir d'un fil ferromagnétique [Rug 90] ou préparées à partir d'une pointe AFM avec un dépôt d'un matériau ferromagnétique [Boe 90].

Suivant le type d'échantillon dont nous voulons connaître la structure en domaines, nous utiliserons préférentiellement l'un ou l'autre type de pointe. En effet, à partir de l'amincissement d'un fil ferromagnétique en général composé de fer, nickel ou cobalt, il est possible d'obtenir des pointes très fines avec des rayons de courbures de quelques dizaines de nanomètres pour un angle de cône

inférieur à 10° (figure 4.3). Ces pointes présentent une très bonne résolution latérale qui est d'autant plus grande que la pointe est fine et que son rayon de courbure est petit. Malheureusement, leur moment magnétique est beaucoup plus grand que celui d'une pointe AFM avec un revêtement magnétique car tout le volume de la pointe est magnétique ce qui peut influencer la structure en domaines à l'étude. Malgré la perte de résolution latérale, l'avantage d'une pointe AFM avec un dépôt est de pouvoir adapter à volonté le matériau magnétique de détection à la structure étudiée en changeant sa coercivité et son moment magnétique (figure 4.4).

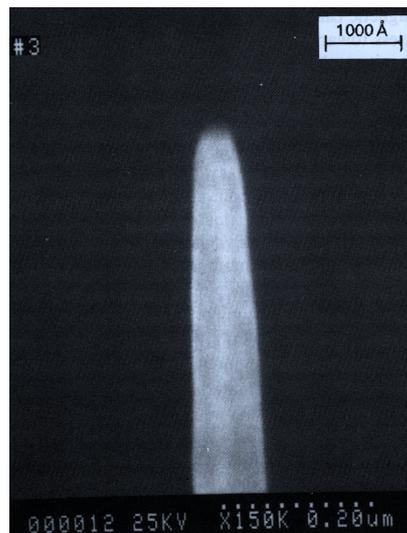


figure 4.3 : image d'une pointe en nickel obtenue par amincissement. Le rayon de courbure est égal à 30 nm [Rug 90].

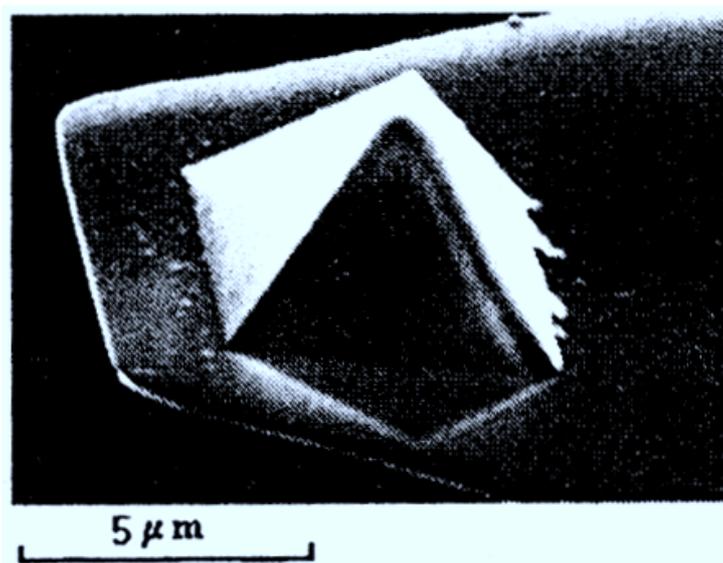


figure 4.4 : image d'une pointe AFM recouverte d'un matériau magnétique [Zho 95].

Les propriétés magnétiques de ces pointes ne sont pas encore totalement maîtrisées. Cependant, même si la structure en domaines de l'ensemble de la pointe est très complexe, il a été montré par microscopie Lorentz [Val 95] et holographie électronique [Mat 94] que son extrémité est constituée d'un monodomaine orienté dans la direction de l'axe de la pointe. Il est alors tentant d'assimiler la pointe à un dipôle ou à un volume uniformément aimanté et de négliger la structure en domaines même si les interactions dipolaires sont à longue portée. Nous allons voir dans la suite que l'assimilation de la pointe à un dipôle permet de décrire grossièrement les signaux MFM et que l'introduction de la forme de la pointe dans les simulations change la résolution et le profil de force ou de gradient de force mesuré.

3.2. Modes de fonctionnement

3.2.1. Détection de force

Dans ce mode de fonctionnement, la déflexion du cantilever est directement mesurée lorsque la pointe interagit avec la surface. Le cantilever subit une déformation élastique et, grâce à la loi de Hooke, il est possible de déterminer la force induite par l'échantillon. Avec un cantilever de constante de raideur de 1N/m, la plus petite force mesurable est estimée à 10^{-11} N.

3.2.2. Détection de gradient de force

Une bien meilleure sensibilité aux forces à longue portée peut être obtenue en mesurant le changement de fréquence d'oscillation d'un cantilever soumis à une oscillation forcée.

3.2.2.1. Base théorique

Dans ce paragraphe, nous exposerons les bases théoriques développées dans [Sar 94] de la détection du gradient de force à l'aide de la mesure de la variation de fréquence d'oscillation du cantilever.

Considérons un cantilever vibrant à une fréquence ω_0 autour de sa position d'équilibre S_0 . La pointe qui se situe à son extrémité est soumise au champ de force de l'échantillon et vibre à la même fréquence autour de sa position d'équilibre Z_{eq} . Les déplacements respectifs de la pointe et du cantilever sont donnés par

$$Z = Z_{eq} + \delta \tag{4.7a}$$

$$S = S_0 + \xi \tag{4.7b}$$

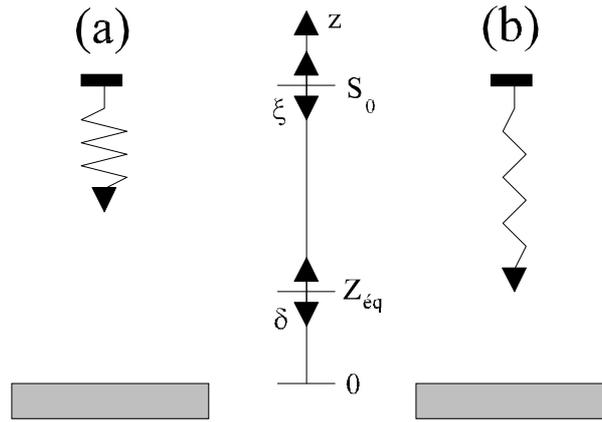


figure 4.5 : schéma représentant l'état du système cantilever + pointe (a) sans et (b) avec interaction avec un échantillon.

Le principe fondamental de la dynamique appliqué à la pointe permet d'écrire l'équation d'évolution du système

$$mZ'' + \beta Z' - m\omega_0^2(S-Z) = F(Z) \quad (4.8)$$

Le développement au premier ordre de la force agissant sur la pointe est donné par

$$F(Z) = F(Z_{eq}) + \delta \cdot F_1(Z_{eq}) \quad \text{où} \quad F_1(Z_{eq}) = \left. \frac{\partial F(Z)}{\partial Z} \right|_{Z_{eq}} \quad (4.9)$$

Après avoir injecté le développement de la force (4.9) dans l'équation (4.8) il vient

$$m\delta'' + \beta\delta' + m\omega_{eff}^2\delta = m\omega_0^2\xi \quad (4.10a)$$

$$-m\omega_0^2(S_0 - Z_{eq}) = F(Z_{eq}) \quad (4.10b)$$

$$\text{où nous avons posé } \omega_{eff}^2 = \omega_0^2 - F_1(Z_{eq})/m \quad (4.10c)$$

Les équations (4.10) sont les équations dynamiques d'un oscillateur de fréquence propre ω_{eff} soumis à une oscillation forcée d'amplitude $m\omega_0^2\xi$. L'interaction de la pointe avec la surface entraîne une variation de la fréquence de résonance du cantilever dont la valeur est donnée par l'équation (4.10c).

Si le cantilever et la pointe sont soumis à une oscillation de pulsation ω_c alors les expressions des déplacements hors équilibre deviennent

$$\xi = \xi_0 \exp(i\omega_c t) \quad (4.11a)$$

$$\delta = \delta(\omega_c) \exp(i\omega_c t) \quad (4.11b)$$

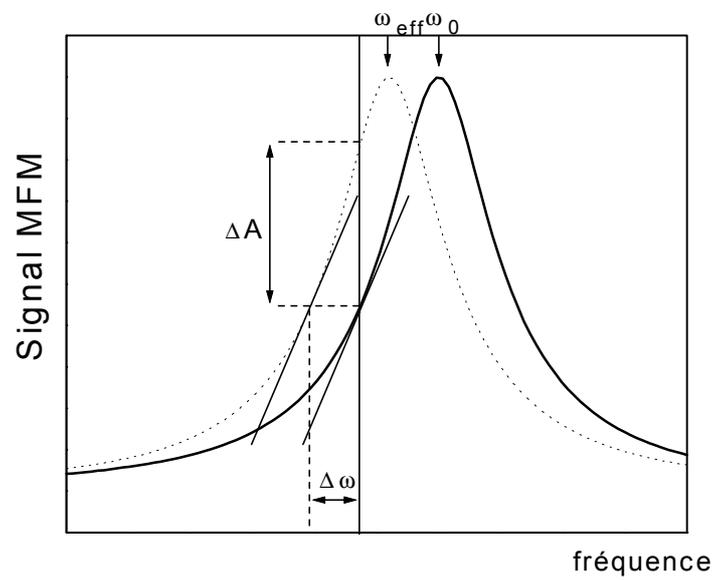


figure 4.6 : *principe de détection de la force par mesure du déplacement de la fréquence de résonance.*

La valeur du déplacement de la pointe est obtenue après avoir remplacé ξ et δ (4.11) dans l'équation (4.10a). Il vient alors

$$\delta(\omega_c) = \frac{\omega_0 \xi_0}{\omega_{eff}^2 - \omega_c^2 + \frac{i\omega_c \omega_0}{Q}} \quad (4.12)$$

où $Q = m\omega_0/\beta$

A partir de l'équation (4.10c) et pour des faibles déplacements de fréquence, il est possible d'obtenir le décalage en fréquence

$$\begin{aligned} \omega_0^2 - \omega_{eff}^2 &= \frac{F_1(Z_{eq})}{m} = (\omega_0 - \omega_{eff})(\omega_0 + \omega_{eff}) \approx 2\omega_0(\omega_0 - \omega_{eff}) \\ \frac{\Delta\omega}{\omega_0} &= \frac{\omega_0 - \omega_{eff}}{\omega_0} \approx \frac{1}{2} \frac{F_1}{m\omega_0^2} \end{aligned} \quad (4.13)$$

L'interaction de la pointe avec l'échantillon induit un changement de la fréquence de résonance de la pointe. Cette variation de fréquence est directement proportionnelle à la dérivée de la force agissant sur la pointe selon l'équation (4.13). La variation d'amplitude de vibration du cantilever est égale à

$$\Delta A = \left. \frac{\partial A}{\partial \omega} \right|_{\omega} (\omega_0 - \omega_{eff}) \quad (4.14a)$$

et peut être exprimée en fonction du gradient de force à l'aide de l'équation (4.13)

$$\Delta A = \left. \frac{\partial A}{\partial \omega} \right|_{\omega} \frac{F_1}{2m\omega_0} = \text{pente} \times \frac{F_1}{2m\omega_0} \quad (4.14b)$$

A partir de l'équation (4.14b), nous pouvons déduire les paramètres du point de fonctionnement qui optimisent la sensibilité du MFM. En effet, pour obtenir la plus grande variation d'amplitude, il convient de placer sa fréquence de conduite proche de l'inflexion de la courbe d'amplitude afin de maximiser la pente de la courbe.

3.2.2.2. *Mise en place expérimentale*

Nous avons mis en évidence dans le paragraphe 3.2.2.1 qu'il était possible de mesurer la dérivée de la force s'exerçant sur la pointe en fonction de sa position sur l'échantillon à l'aide des équations

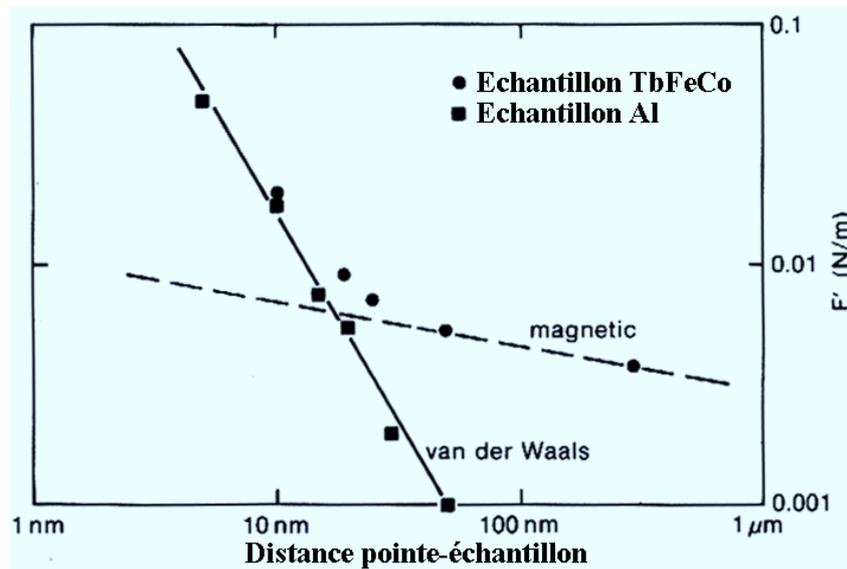


figure 4.7 : évolution du gradient de force magnétique et topographique en fonction de la distance entre la pointe et l'échantillon [Men]

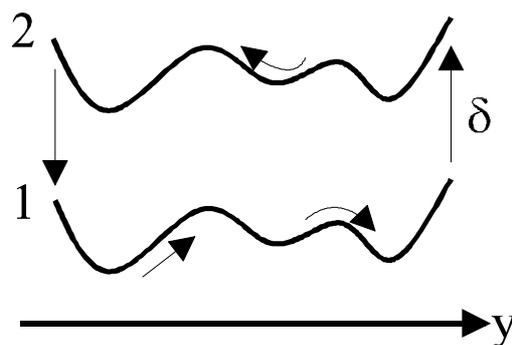


figure 4.8 : méthode expérimentale pour dissocier le signal topographique du signal magnétique. Après une mesure de la topographie pour une distance pointe-échantillon de l'ordre du nanomètre, la pointe est soulevée d'une distance δ . La mesure du signal retour, en suivant la topographie définie à l'aller, permet de s'affranchir de la topographie.

(4.1) et (4.14). Cependant, cette force est égale à la somme des forces magnétiques et de Van der Waals qu'il faut maintenant dissocier.

Dans le cas des métaux, une bonne description des forces de Van der Waals est obtenue en utilisant le potentiel de Lennard-Jones

$$V(r) = 4\varepsilon \left(\frac{\sigma^{12}}{r^{12}} - \frac{\sigma^6}{r^6} \right) \quad (4.15)$$

Lorsque la pointe est loin de la surface, seule la composante attractive est significative et alors les forces de Van der Waals varient en $1/r^7$. La force magnétique, quant à elle, varie en $1/r^4$ comme nous l'avons déjà vu dans l'équation (4.5). Nous pouvons raisonnablement espérer que, au voisinage de la surface mais pas trop près, la seule contribution vue par la sonde soit de type Van der Waals alors que loin de la surface ce soit la contribution des forces magnétiques qui prédomine.

Comme nous pouvons le voir sur la figure 4.7, où sont représentés les gradients de force magnétique et topographique en fonction de la distance entre l'échantillon et la pointe dans le cas respectivement d'un échantillon de TbFeCo et d'aluminium, il est difficile de trancher entre la prédominance de l'une ou l'autre force pour les distances entre pointe et échantillon utilisées expérimentalement. C'est pourquoi, un protocole est mis au point pour retrancher le signal topographique du signal magnétique.

Dans un premier temps, la sonde parcourt une ligne de l'axe de scan lent (axe x de la figure 4.2) dans le mode AFM. La déflexion du cantilever est maintenue constante à l'aide de l'électronique de rétroaction en variant la distance entre la pointe et l'échantillon. Le premier parcours de la pointe noté 1 sur la figure 4.8 définit la topographie de l'échantillon car la distance entre la pointe et l'échantillon, h , est de l'ordre du nanomètre et, comme nous pouvons le voir sur la figure 4.7, le signal mesuré est uniquement issu des forces de Van der Waals. La ligne 1 est conservée dans la mémoire de l'ordinateur.

Dans un second temps, à la fin de la ligne, la pointe est soulevée et maintenue à une distance δ de la surface définie par la première mesure de topographie. Le signal électrique mesuré sur la ligne 1 est réinjecté dans l'élément piézo-électrique qui suit alors le parcours numéro 2 de la figure 4.8 et la rétroaction est coupée. On mesure alors la variation d'amplitude de vibration du cantilever qui est proportionnelle à la dérivée seconde du champ de fuite. C'est ainsi qu'artificiellement, en considérant que les forces de Van der Waals ne varient pas lorsque la distance entre la pointe et l'échantillon passe de h à $h+\delta$, nous pouvons retrancher le signal topographique du signal mesuré.

4. THEORIE DE LA REPONSE MFM

Dans cette partie de la thèse, nous allons tout particulièrement nous attacher aux signaux MFM proprement dit et à leur modélisation. Dans une première étape, nous serons amenés à calculer les champs de fuite issus de différentes configurations d'aimantation. Puis, nous donnerons un aperçu des effets liés à la forme de la pointe notamment sur la résolution du MFM.

4.1. Champs de fuite d'une structure en domaines

Comme nous l'avons montré dans l'annexe C à partir des résultats de l'annexe A, le champ de fuite d'un échantillon d'aimantation $\vec{M}_s(\vec{r})$ peut être calculé et est égal à

$$\vec{H}_d(\vec{r}) = - \int_{\text{volume}} \vec{\nabla}_{\vec{r}'} \cdot \vec{M}_s(\vec{r}') \frac{\vec{r} - \vec{r}'}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} d^3\vec{r}' + \int_{\text{surface}} \hat{n}(\vec{r}') \cdot \vec{M}_s(\vec{r}') \frac{\vec{r} - \vec{r}'}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} d^2\vec{r}' \quad (4.15)$$

Cette équation est dépendante de la géométrie des domaines et des parois du matériau à l'étude. C'est pourquoi, il convient maintenant de prendre une géométrie de domaines que l'on pense avoir dans ses échantillons et calculer la dérivée seconde de son champ de fuite.

Différents modèles de paroi ont été pris pour simuler les champs de fuite des échantillons. En général, l'extension de la paroi est réduite à zéro pour simplifier les calculs [Mam 88]. D'autres modèles ont commencé à tenir compte de la structure de la paroi soit en l'assimilant à un vide, soit en l'assimilant à un domaine à aimantation perpendiculaire [Wad 90c]. Ici, nous allons baser notre discussion sur le modèle qui nous a paru être le plus fidèle à l'expérience. Nous avons choisi de suivre les calculs développés par Rugar [Rug 90] où le profil d'aimantation dans la paroi suit une loi en arctangente.

4.1.1. Média à aimantation planaire

Nous allons tout d'abord étudier les signaux magnétiques issus d'une couche fine d'un matériau à aimantation planaire d'épaisseur h selon l'axe z pour ensuite les étendre à une aimantation perpendiculaire. Le profil d'aimantation dans les parois, dans la direction x perpendiculaire à la paroi, est pris égal à

$$\vec{M}(x, z) = -\hat{x} \frac{2}{\pi} M_s \tan^{-1}\left(\frac{x}{w}\right) H(z) \quad (4.16)$$

avec $H(z) = \begin{cases} 1 & \text{si } 0 < z < h \\ 0 & \text{sinon} \end{cases}$

Cette fonction, très utilisée dans l'industrie des supports de stockage [Pot 70], simplifie énormément les calculs dans l'espace de Fourier. Les densités de charge associées à ce profil d'aimantation sont, d'après les équations (A.4),

$$\rho_m = -\vec{\nabla} \cdot \vec{M} = \frac{2}{\pi} M_s \frac{w}{w^2 + x^2} H(z) \quad (4.18)$$

$$\sigma_m = 0 \quad (4.19)$$

Le potentiel magnétique vérifie l'équation de Poisson de l'électrostatique

$$\Delta\phi = -8M_s \frac{w}{w^2 + x^2} H(z) \quad (4.20)$$

Cette équation est résolue dans l'espace de Fourier et, après inversion de la transformée de Fourier, les champs de fuite du matériau sont donnés par

$$H_d^z(x, z) = 2M_s \ln\left(\frac{(z+h+w)^2 + x^2}{(z+w)^2 + x^2}\right) \quad z > 0 \quad (4.21)$$

$$H_d^x(x, z) = 4M_s \tan^{-1}\left(\frac{xh}{(z+w)(z+w+h) + x^2}\right) \quad z > 0 \quad (4.22)$$

où

H_d^z et H_d^x sont les composantes du champ de fuite suivant z et x .

Le même type de résultat a été obtenu en prenant une largeur de paroi nulle mais en mesurant les champs de fuite à une distance $z+w$ [Wad 90c]. Cette remarque montre déjà la difficulté d'obtention des paramètres du matériau à partir de l'ajustement des courbes expérimentales puisque la hauteur de balayage et la largeur de paroi jouent un rôle identique dans les équations.

4.1.2. Média à aimantation perpendiculaire

Le profil d'aimantation considéré est le même que dans la section précédente mais l'aimantation est orientée selon l'axe \hat{z}

$$\vec{M}(x, z) = -\hat{z} \frac{2}{\pi} M_s \tan^{-1}\left(\frac{x}{w}\right) H(z) \quad (4.23)$$

$$\text{avec } H(z) = \begin{cases} 1 & \text{si } 0 < z < h \\ 0 & \text{sinon} \end{cases}$$

La densité de courant d'aimantation est alors donnée par

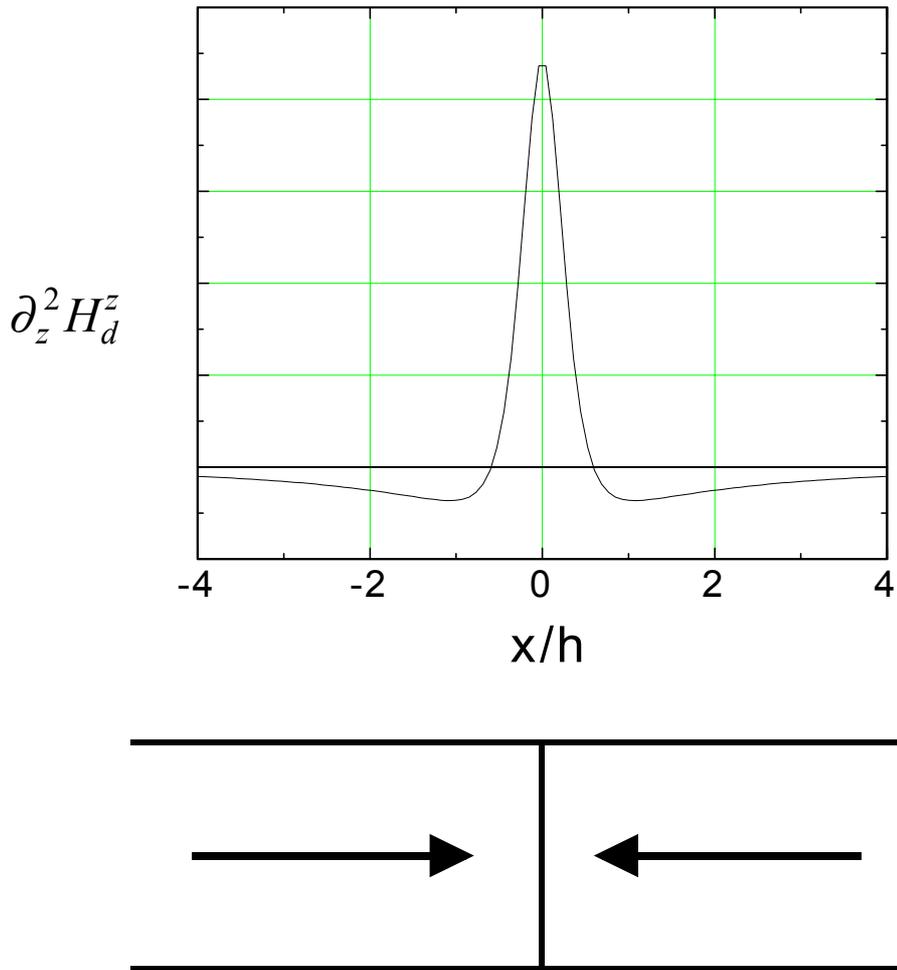


figure 4.9 : représentation de la dérivée seconde du champ de fuite pour un échantillon à aimantation planaire. Le rapport $(z+w)/h$ est égal à 0,5. La dérivée seconde est maximale au niveau de la transition.

$$\vec{\nabla} \times \vec{M} = \frac{2}{\pi} \frac{w}{w^2 + x^2} H(z) \hat{y} \quad (4.24)$$

La résolution des équations de Maxwell du potentiel vecteur, en prenant $A_x=A_z=0$, mène à

$$\Delta A_y = -8M_s \frac{w}{w^2 + x^2} H(z) \quad (4.25)$$

en utilisant la relation

$$\vec{\nabla} \times \vec{B} = 4\pi \vec{\nabla} \times \vec{M} = \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{A}) - \Delta \vec{A} \quad (4.26)$$

On montre par identification entre les équations (4.25) et (4.20) que $A_y = \Phi$. A partir de là, les expressions des champs de fuite pour un échantillon à aimantation perpendiculaire sont directement reliées aux équations (4.22) et (4.21) puisque

$$H_d^{x,perp} = H_d^{z,plan} \quad (4.27)$$

$$H_d^{z,perp} = -H_d^{x,plan} \quad (4.28)$$

où

(perp) et (plan) réfèrent à la direction de l'aimantation (perp)endiculaire ou (plan)aire.

4.2. Dérivées secondes du champ de fuite d'une structure en domaines

Dans ce paragraphe, nous allons nous intéresser uniquement à la dérivée seconde du champ de fuite selon l'axe z , $\partial_z^2 H_d^z$. Nous restreignons cette étude théorique à cette composante car, dans l'ensemble des analyses réalisées au cours de cette thèse, nous avons supposé que la pointe était uniquement sensible à $\partial_z^2 H_d^z$ c'est à dire que l'aimantation de la pointe est parallèle à l'axe z .

4.2.1. Expressions mathématiques

A partir des équations (4.22) et (4.28), le calcul des dérivées secondes nous donne dans le cas

(i) d'une aimantation planaire

$$\partial_z^2 H_d^z = -4M_s \left[\frac{x^2 - (z+w)^2}{[x^2 + (z+w)^2]^2} - \frac{x^2 - (z+h+w)^2}{[x^2 + (z+h+w)^2]^2} \right] \quad (4.29)$$

Dans la figure 4.9, nous avons représenté la fonction définie par l'équation (4.29) dans le cas où $(z+w)/h$ est égal à 0,5.

(ii) d'une aimantation perpendiculaire

$$\partial_z^2 H_d^z = -8M_s x \left[\frac{z+w}{[x^2 + (z+w)^2]^2} - \frac{z+h+w}{[x^2 + (z+h+w)^2]^2} \right] \quad (4.30)$$

Dans la figure 4.10, nous avons représenté la fonction définie par l'équation (4.30) dans le cas où $(z+w)/h$ est égal à 0,5.

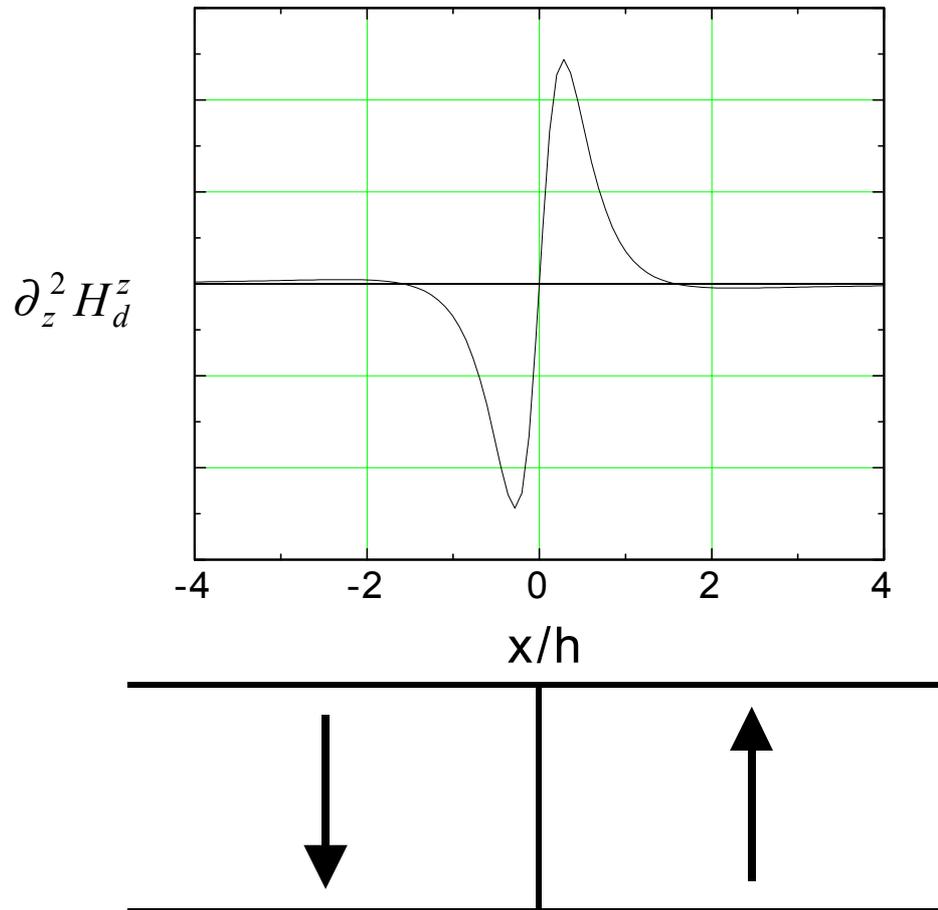


figure 4.10 : représentation de la dérivée seconde du champ de fuite pour un échantillon à aimantation perpendiculaire. Le rapport $(z+w)/h$ est égal à 0,5. La dérivée seconde est nulle au niveau de la transition.

4.2.2. Effet de la taille des domaines sur le profil de la dérivée seconde : cas d'une structure en domaines à aimantation perpendiculaire.

Dans le paragraphe 4.2.1, nous avons tracé les différents types de signaux qui sont attribués à la dérivée seconde du champ de fuite d'un matériau à aimantation planaire et perpendiculaire dans le cas d'une paroi unique. Or, dans un matériau ferromagnétique ou ferrimagnétique, il est possible d'avoir une forte densité de parois lorsque l'aimantation est perpendiculaire. C'est pourquoi, il est utile de connaître l'évolution de $\partial_z^2 H_d^z$ lorsque les signaux provenant des différentes parois se superposent.

Le champ de fuite total est alors égal à

$$H_d^{z,total} = \sum_n (-1)^n H_d^z \left(x - n \frac{p}{2}, z \right) \quad (4.31)$$

où p est la période des domaines

Dans la figure 4.11, nous avons représenté $\partial_z^2 H_d^{z,total}$ en fonction de x/h pour $(z+w)/h=0.5$ et différentes valeurs de p/h . On voit très clairement que pour $p/h=3$, les signaux provenant des parois situées à $x/d=\pm 0.75$ se chevauchent en $x/d=0$. Plus la période diminue, plus ces signaux vont se recouvrir. Ainsi, pour $p/h=1$, le signal apparaît comme une sinusoïde dont les zéros restent toujours localisés à l'emplacement des parois. Les contrastes qui apparaissent sur les images, bien que provenant des parois, localisent sans ambiguïté la position des domaines dont l'aimantation est positive ou négative par rapport à l'axe z .

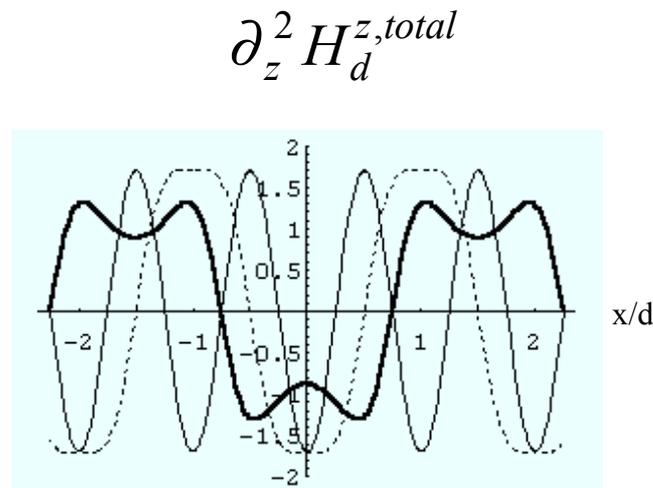


figure 4.11 : dérivées secondes du champ de fuite d'une structure en domaines à aimantation perpendiculaire pour $p/h=1$ (—), $p/h=2$ (---) et $p/h=3$ (- -) pour $(z+w)/h=0.5$ [Heh 96].

4.3. Interaction entre la pointe et l'échantillon

L'ensemble des résultats que nous avons présentés jusqu'à maintenant a permis de déterminer des fonctions mathématiques décrivant les champs de fuite pour deux types de structures en domaines. Cependant, la problématique de l'interprétation des images MFM repose sur le calcul de l'énergie d'interaction entre ce champ de fuite et la distribution d'aimantation d'une pointe sachant que les dérivées successives de l'énergie nous donnerons accès à la force et au signal MFM mesuré.

Si l'on suppose que la description mathématique de la paroi telle qu'elle a été faite dans le paragraphe 4.1 est correcte, différents problèmes relatifs à la pointe se posent encore. En effet, nous ne connaissons pas exactement la forme de la pointe. En première approximation, nous la considérerons comme un dipôle et nous présenterons certains résultats lorsque sa forme est prise en compte. De plus, nous ne connaissons pas la distribution d'aimantation dans la pointe même si, dans tous les cas, l'extrémité de la pointe est constituée d'un seul domaine (§ A.3.1.3). Dans l'absolu, il faudrait tenir compte de la structure en domaines de toute la pointe car l'interaction dipolaire est à longue portée. Pour finir, nous dirons quelques mots de l'influence du champ de fuite de la pointe sur l'échantillon et du champ de fuite de l'échantillon sur la pointe.

4.3.1. Cas général en l'absence d'influence mutuelle

Pour calculer la force s'exerçant entre une pointe et un échantillon dont le champ de fuite $\vec{H}_d(\vec{r})$ est connu, il ne suffit plus que de le convoluer avec l'aimantation de la pointe. A l'aide des équations (4.1) et (4.2), la force par unité de volume s'appliquant sur une pointe d'aimantation $\vec{M}^t(\vec{r})$ est égale à

$$d\vec{F}_{mag}(\vec{r}) = \vec{\nabla}_{\vec{r}} \left(\vec{M}^t(\vec{r}') \bullet \vec{H}_d(\vec{r} + \vec{r}') \right) d^3\vec{r}' \quad (4.32)$$

La composante de force normale au cantilever est égale à

$$dF_{mag} = \hat{n} \bullet d\vec{F}_{mag} \quad (4.33)$$

où \hat{n} est la normale au cantilever.

La dérivée de la force le long de \hat{n} est donnée par

$$dF'_{mag} = \hat{n} \bullet \vec{\nabla}_{\vec{r}} \left(\hat{n} \bullet \vec{\nabla}_{\vec{r}} \left(\vec{M}^t(\vec{r}') \bullet \vec{H}_d(\vec{r} + \vec{r}') \right) \right) d^3\vec{r}' \quad (4.34)$$

Cette expression du gradient de la force par unité de volume doit être intégrée sur tout le volume de la pointe.

4.3.2. Effet de la forme de la pointe sur le signal mesuré en l'absence d'influence mutuelle

Dans la suite de notre exposé, nous allons considérer, par soucis de simplicité, que les aimantations $\vec{M}^t(\vec{r})$ et $\vec{M}^s(\vec{r})$ sont constantes car elles peuvent être dépendantes l'une de l'autre dans le cas d'une influence mutuelle du champ de fuite de la pointe sur l'échantillon et vis versa. Nous parlerons de cet effet dans le paragraphe 4.3.3.

Dans la littérature, plusieurs formes de pointe ont été choisies soit pour décrire précisément la forme réelle d'une pointe, soit pour obtenir des formules analytiques directement applicables à l'expérience. Lorsque la géométrie de la pointe est proche de la réalité, les simulations théoriques sont en très bon accord avec l'expérience et décrivent bien toutes les irrégularités de la courbe expérimentale. En général, dans l'approximation du dipôle, les courbes théoriques reproduisent bien les données expérimentales et suffisent à la compréhension des phénomènes physiques mis en jeu.

Echantillon	Géométrie de pointe	Références
dipôle magnétique	dipôle cône tronqué avec un apex sphérique	[Sae 87, Rug 90] [Rug 90]
paroi de domaine	sphère	[Wad 88, Wad 88b]
paroi de Bloch dans du fer	cube pyramide	[Har 90, Har 89] [Har 88]
média à aimantation perpendiculaire	dipôle, monopôle sphère cylindre pyramide tronquée	[Wad 90] [Sar 90] [Wad 89] [Wad 89b]
média à aimantation planaire	dipôle sphère cube pyramide tronquée cône tronqué cône tronqué avec un apex sphérique	[Mam 88] [Sar 90] [Har 89b] [Wad 90b] [Sch 90] [Rug 90]

tableau 4.1 : ce tableau contient une liste non exhaustive de publications contenant l'étude théorique des signaux MFM pour certain type d'échantillon avec une certaine géométrie de pointe

Les simulations numériques nous permettent de comprendre l'influence de la géométrie de la pointe ou de ses paramètres sur la résolution du MFM. Cette dernière est définie comme la plus petite distance séparant deux objets à partir de laquelle nous pouvons les distinguer sans ambiguïté. La plus petite structure résolue jusqu'à présent est de l'ordre de 10 nm [Grü 90]. Ainsi, plus la largeur à mi-hauteur des signaux MFM est petite, plus la résolution sera grande.

Afin de mieux comprendre l'influence de la géométrie de la pointe sur les signaux MFM, nous allons donner quelques résultats obtenus par Rugar [Rug 90] sur la dépendance de la résolution en fonction de la géométrie de la pointe et de la distance entre la pointe et l'échantillon. Les modélisations présentées ci-dessous ont été réalisées pour une géométrie de pointe réaliste (figure 4.12) en interaction avec un dipôle ponctuel.

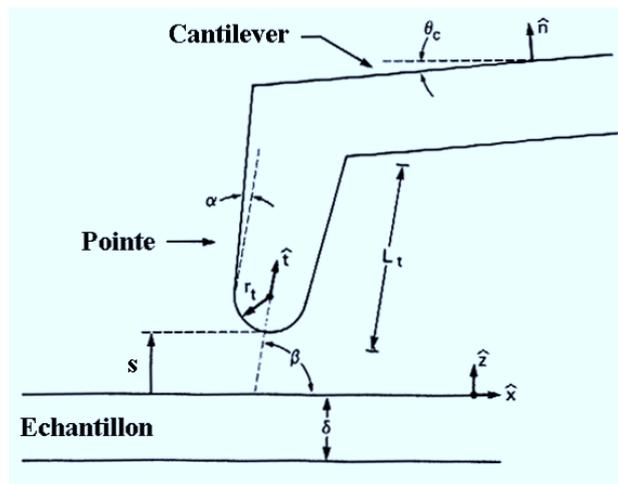


figure 4.12 : géométrie de pointe considérée par Rugar pour l'étude de l'évolution de la réponse MFM à la mesure d'un dipôle ponctuel en fonction des paramètres de la pointe [Rug 90].

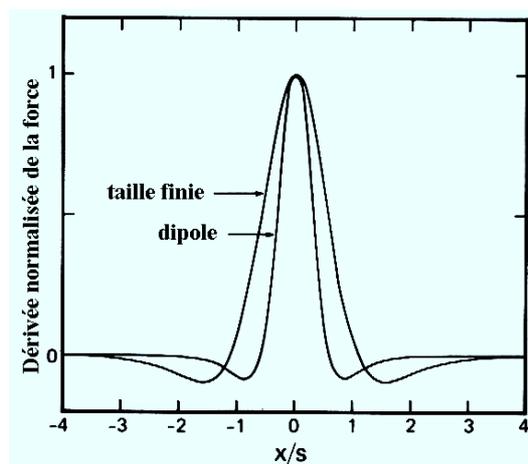


figure 4.13 : influence de la résolution du MFM en fonction de la taille de la pointe. Les calculs représentent la réponse MFM dans le cas d'un dipôle et d'une pointe de taille finie en interaction avec un dipôle ponctuel [Rug 90].

Sur la figure 4.13 sont reportés les signaux calculés pour un dipôle et une pointe cône avec un apex sphérique en interaction avec un dipôle : on constate une perte de résolution dans le cas de la pointe de taille finie par rapport au cas du dipôle. Cependant, même pour un dipôle, la résolution n'est pas infinie car elle dépend de la distance entre les deux dipôles. C'est pourquoi, la meilleure résolution sera obtenue avec une pointe la plus ponctuelle possible et une distance entre cette pointe et l'échantillon la plus petite possible.

Nous avons montré que l'introduction de la taille finie d'une pointe entraîne une diminution de la résolution du MFM. Cependant, suivant les caractéristiques de la pointe pour une forme donnée, la résolution est une fonction de la longueur de la pointe, L_t , du rayon de courbure de l'apex, r_t , du demi-angle du cône, α , et de la distance entre la pointe et l'échantillon, s .

D'après les calculs de Rugar, la résolution du MFM augmente lorsque le rayon de courbure de la pointe diminue jusqu'à une valeur égale à s (figure 4.14). Puis, elle reste constante et minimale pour des rayons de courbure compris entre $0.01s$ et $0.5s$. Il est à noter que la meilleure résolution n'est pas obtenue avec une pointe cône c'est à dire $r_t=0$ car les charges créées le long des flancs de la pointe sont plus nombreuses que celles localisées à son extrémité.

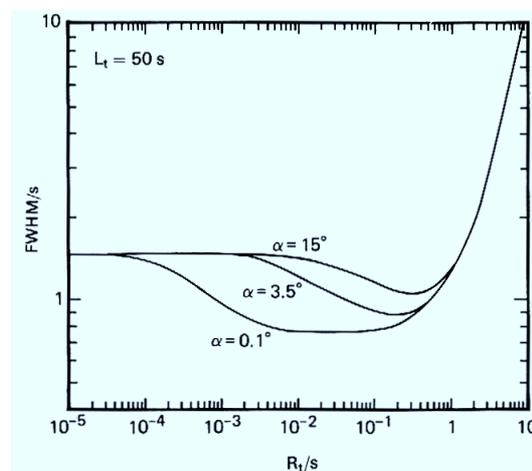


figure 4.14 : évolution de la résolution en fonction du rayon de courbure et de l'angle de cône de la pointe pour une pointe 50 fois plus longue que la distance pointe-dipôle.

La résolution est également dépendante de la longueur de la pointe. Lorsque cette dernière est très courte, c'est à dire $L_t < 0.01s$, quel que soit le rayon de courbure de la pointe la résolution est égale à celle obtenue avec un dipôle. Lorsque $L_t > 0.01s$, la résolution diminue lorsque L_t augmente et sature lorsque les pointes sont très longues. La longueur de pointe pour laquelle la résolution sature dépend de son rayon de courbure.

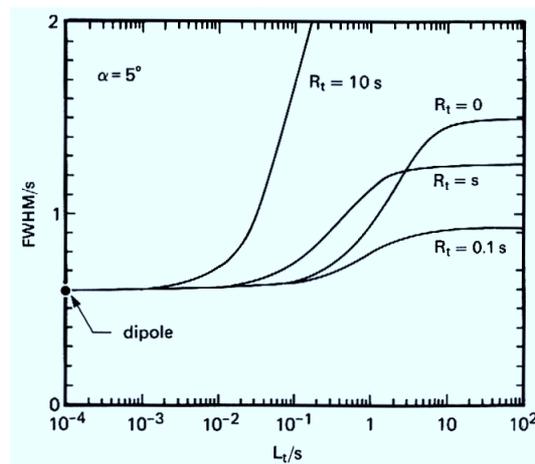


figure 4.15 : évolution de la résolution en fonction de la longueur et du rayon de courbure de la pointe pour $\alpha=5^\circ$.

4.3.3. Effet de l'influence mutuelle entre la pointe et l'échantillon

☺ Le principe de mesure de la mécanique quantique nous dit que, lors d'une mesure, le système mesuré est perturbé. Le MFM n'échappe pas à cette règle et les effets sont réciproques ☺. En fait, tout dépend de l'intensité du champ induit par l'un des éléments par rapport au champ d'anisotropie de l'autre comme l'a montré Hartmann [Har 89b] ou Wadas [Wad 89]. Si le champ de fuite excède le champ d'anisotropie, il peut y avoir un retournement local de l'aimantation et donc un effet induit.

Cet effet peut être réduit en augmentant la distance de balayage entre la pointe et l'échantillon au détriment de la résolution ou en utilisant des pointes non magnétiques recouvertes d'un dépôt magnétique. Le champ de fuite de la pointe sera alors plus faible que celui d'une pointe entièrement composée d'un matériau magnétique.

Dans le cadre de notre étude, la coercivité des échantillons étant plus élevée que le champ de fuite des pointes, nous pouvons considérer que ces effets sont mineurs et qu'ils n'altéreront pas la structure en domaines étudiée.

4.3.4. Cas de l'approximation du dipôle

En conclusion du paragraphe 4.3, nous pouvons dire que l'effet de taille finie ainsi que les paramètres de la géométrie de la pointe entraînent une modification de la résolution du signal MFM. De plus, l'introduction d'une structure en domaines magnétiques dans la pointe [Grü 89], d'un angle entre la pointe et la normale à l'échantillon [Sae 87] permet de mieux décrire les signaux MFM.

Cependant, dans l'étude menée au courant de cette thèse, nous nous sommes intéressés uniquement à l'évolution de la taille des domaines en fonction de l'épaisseur des films et plots magnétiques ou à l'évolution de la forme des domaines pour une épaisseur fixe en fonction de l'histoire magnétique de l'échantillon. Donc, s'il y a un effet de pointe, il sera le même pour toute l'étude. De plus, les signaux MFM ont pu être modélisés simplement dans l'approximation du dipôle.

Dans ce cas, les équations (4.32) et (4.34) se mettent sous la forme

$$F_{mag} = m_x \frac{\partial H_d^x}{\partial z} + m_y \frac{\partial H_d^y}{\partial z} + m_z \frac{\partial H_d^z}{\partial z} \quad (4.35)$$

$$F'_{mag} = m_x \frac{\partial^2 H_d^x}{\partial z^2} + m_y \frac{\partial^2 H_d^y}{\partial z^2} + m_z \frac{\partial^2 H_d^z}{\partial z^2} \quad (4.36)$$

De plus, si le moment magnétique de la pointe est dirigé suivant z, nous obtenons

$$F'_{mag} = m_z \frac{\partial^2 H_d^z}{\partial z^2} \quad (4.37)$$

Il vient donc finalement que le signal MFM est directement proportionnel à la dérivée seconde du champ de fuite de l'échantillon, les résultats obtenus au paragraphe 4.2 sont donc directement comparables aux mesures expérimentales.

B. MESURE DU MAGNETISME MACROSCOPIQUE

1. MAGNETOMETRE A GRADIENT DE CHAMP (AGFM)

Nous avons utilisé un magnétomètre à gradient de champ (AGFM) pour tracer les cycles d'aimantation des échantillons de la température ambiante jusqu'à 4.2°K. L'échantillon, déposé sur une tige en quartz elle même reliée à un transducteur piézo-électrique, est soumis à un champ continu variant de 0 à 14 kOe ainsi qu'à un petit gradient de champ alternatif dont la fréquence varie entre 50 et 800 Hz [Fla 88].

L'échantillon est alors soumis à une force alternative proportionnelle au produit de son moment magnétique par le gradient de champ. Le déplacement de l'échantillon entraîne une déformation mécanique du transducteur piézo-électrique qui transforme cette force en signaux électriques de même fréquence que celle du gradient de champ alternatif. L'amplitude des signaux, mesurés à l'aide d'une détection synchrone, est optimale lorsque la fréquence du gradient de champ est proche de la fréquence de résonance mécanique de l'échantillon posé sur la tige de quartz.

2. MAGNETOMETRE A SQUID

Certaines mesures d'aimantation ont été effectuées au laboratoire par R. Poinot et A. Herr sur les couches ou réseaux de plots à l'aide d'un magnétomètre à SQUID (Superconducting Quantum Interference Device). La description de son fonctionnement, basé sur la détection de variation de flux à l'aide d'une jonction Josephson, peut être trouvée dans [Hen 95] et [Cha 85].

Par rapport au magnétomètre à gradient de champ que nous avons utilisé, le magnétomètre à SQUID présente deux avantages. D'une part, il permet de mesurer sans ambiguïté le moment absolu de l'échantillon avec une sensibilité de $5 \cdot 10^{-9} \times (1+H)$ où H est le champ appliqué en Tesla. Dans le cas de l'AGFM, le moment est d'abord calibré à l'aide d'un échantillon de nickel et dépend très fortement du point de fonctionnement de la sonde. D'autre part, la limite des champs accessibles à l'AGFM se situe autour des champs de saturation des couches de cobalt, les couches les plus épaisses ne pouvant pas être saturées. Certaines mesures ont nécessité l'utilisation du magnétomètre à SQUID à l'aide duquel des mesures d'aimantation sont possibles sous des champs magnétiques allant jusqu'à 8 Teslas.

3. LE PENDULE DE TORSION

Dans ce paragraphe, nous exposerons le principe expérimental de la mesure du couple magnétique. La description du dispositif expérimental sera omise car elle a été largement développée dans la thèse de Y. Henry [Hen 95].

La mesure de couple à l'aide d'un pendule de torsion est la technique la plus directe de détermination des axes de facile et difficile aimantation et des constantes d'anisotropie magnétique d'un corps ferromagnétique. La méthode consiste à suspendre l'échantillon étudié à un fil de constante de torsion connue D^* et à mesurer le couple de rappel Γ_r du fil lorsque l'échantillon tourne sous l'effet d'un champ appliqué.

Considérons le système composé d'un échantillon uniformément aimanté de moment magnétique \vec{m} et d'un fil de constante de torsion D^* . L'énergie du système lorsque celui-ci est plongé dans un champ magnétique \vec{H} est donnée par

$$E(\varphi^*, \varphi, \alpha) = -mH \cos(\varphi^* - \varphi - \alpha) + F_K(\varphi) + \frac{D^* \alpha^2}{2} \quad (4.38)$$

où

les angles φ^* , φ et α sont définis sur la figure 4.16 : α est l'angle de rotation de l'échantillon, φ désigne l'angle entre \vec{m} et une direction cristallographique de référence et φ^* repère la position angulaire de \vec{H} dans le repère du laboratoire. $F_K(\varphi)$ représente l'énergie d'anisotropie magnétocristalline.

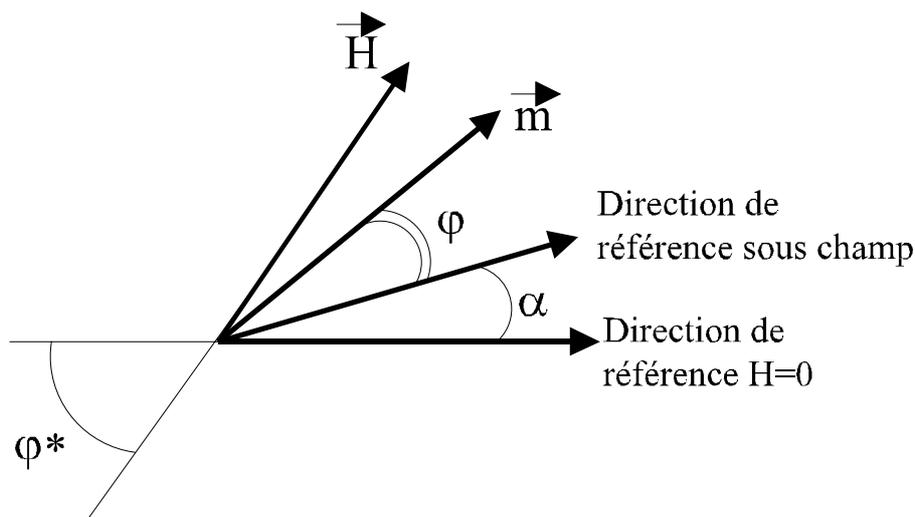


figure 4.16 : orientations du champ magnétique, du moment magnétique et de la direction cristallographique de référence dans la mesure de couple magnétique

A partir des conditions d'équilibre du système

$$\frac{\partial E(\varphi^*, \varphi, \alpha)}{\partial \alpha} = 0 \quad (4.39)$$

$$\frac{\partial E(\varphi^*, \varphi, \alpha)}{\partial \varphi} = 0 \quad (4.40)$$

on tire

$$-mH \sin(\varphi^* - \varphi - \alpha) + D^* \alpha = 0 \quad (4.41a)$$

$$-mH \sin(\varphi^* - \varphi - \alpha) + \frac{\partial F_K(\varphi)}{\partial \varphi} = 0 \quad (4.41b)$$

La combinaison des équations (4.41) montre qu'à l'équilibre le couple de rappel mesuré

$$\Gamma_r = -D^* \alpha \quad (4.42)$$

est égal au couple d'anisotropie magnétique recherché

$$\Gamma_K = -\frac{\partial F_K(\varphi)}{\partial \varphi} \quad (4.43)$$

De plus, l'égalité (4.41a) montre que l'angle φ , à priori inconnu, est relié à α et à φ^* qui sont mesurés expérimentalement par la relation

$$\varphi = \varphi^* - \alpha + \arcsin\left(\frac{\Gamma_r}{mH}\right) \quad (4.44)$$

Il est alors possible de représenter le couple d'anisotropie Γ_K en fonction de φ et de déduire les valeurs des constantes d'anisotropie magnétique de l'échantillon étudié.

Références chapitre IV

- [All 87] R. Allenspach, H. Salemink, A. Bischof et E. Weibel, *Z. Phys. B* **67**, 125 (1987).
- [Bin 86] G. Binning, C. F. Quate et Ch. Gerber, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 930 (1986).
- [Bit 31] F. Bitter, *Phys. Rev.* **38**, 1903 (1931).
- [Boe 90] A. J. den Boef, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 2045 (1990).
- [Cha 85] C. Chappert, thèse de doctorat ès sciences, Université Paris-Pud, 1985
- [Fla 88] P. J. Flanders, *J. Appl. Phys.* **63**, 3940 (1988).
- [Göd 88] T. Göddenhenrich, U. Hartmann, M. Anders et C. Heiden, *J. of Microscopy* **152**, 527 (1988).
- [Göd 88] T. Göddenhenrich, H. Lemke, U. Hartmann et C. Heiden, *J. Vac. Sci. Technol. A* **8**, 383 (1990).
- [Grü 89] P. Grütter, A. Wadas, E. Meyer, H.-R. Hidber et H. J. Güntherodt, *J. Appl. Phys* **66**, 6001 (1989).
- [Grü 90] P. Grütter, Th. Jung, H. Heinzelman, A. Wadas, E. Meyer, H.-R. Hibder et H.-J. Güntherodt, *J. Appl. Phys.* **67**, 1437 (1990).
- [Har 88] U. Hartmann et C. Heiden, *J. of Microscopy* **152**, 281 (1988).
- [Har 89] U. Hartmann, *Phys. Rev. B* **40**, 7421 (1989).
- [Har 89b] U. Hartmann, *Phys. Stat. Sol. (a)* **115**, 285 (1989).
- [Har 90] U. Hartmann, *J. Vac. Sci. Technol. A* **8**, 411 (1990).
- [Heh 96] M. Hehn, S. Padovani, K. Ounadjela et J.-P. Bucher, *Phys. Rev. B* **54**, 3428 (1996).
- [Hen 95] Y. Henry, thèse de doctorat, Université Louis Pasteur, Strasbourg 1995.
- [Mam 88] H. J. Mamin, D. Rugar, J. E. Stern, B. D. Terris et S. E. Lambert, *Appl. Phys. Lett.* **53**, 1563 (1988).
- [Mar 87] Y. Martin, C. C. Williams, H. K. Wickramasinghe, *J. Appl. Phys.* **61**, 4723 (1987).
- [Mar 87b] Y. Martin et H. K. Wickramasinghe, *Appl. Phys. Lett.* **50**, 1455 (1987).
- [Mar 88] Y. Martin, D. Rugar et H. K. Wickramasinghe, *Appl. Phys. Lett.* **52**, 244 (1988).
- [Mat 94] G. Matteucci, M. Muccini et U. Hartmann, *Phys. Rev. B* **50**, 6823 (1994).
- [Men] J. Menslage, pas publié.
- [Mey 88] G. Meyer et N. M. Amer, *Appl. Phys. Lett.* **53**, 1045 (1988).
- [Pot 70] R. I. Potter, *J. Appl. Phys.* **41**, 1648 (1970).
- [Rug 90] D. Rugar, H. J. Mamin, P. Guethner, S. E. Lambert, J. E. Stern, J. McFadyen et T. Yogi, *J. Appl. Phys.* **68**, 1169 (1990).
- [Sae 87] J. J. Saenz, N. Garcia, P. Grütter, E. Meyer, H. Heinzelmann, R. Weisendanger, L. Rosenthaler, H.R. Hidber et H. J. Güntherodt, *J. Appl. Phys.* **62**, 4293 (1987).
- [Sar 90] D. Sarid, D. Iams, J. T. Ingle et V. Weissenberger, *J. Vac. Sci. Technol. A* **8**, 378 (1990).

- [Sar 94] D. Sarid, « Scanning force microscopy », Chap. 2, Oxford University Press, 1994.
- [Sch 90] C. Schönenberger et S. F. Alvarado, *Z. Phys. B* **80**, 373 (1990).
- [Ste 88] J. E. Stern, B. D. Terris, H. J. Marmin, D. Rugar, *Appl. Phys. Lett.* **53**, 2717 (1988).
- [Val 95] M. S. Valera, A. N. Farley, S. R. Hoon, L. Zhou, S. McVitie et J. N. Chapman, *Appl. Phys. Lett* **67**, 2566 (1995).
- [Wad 88] A. Wadas, *J. Mag. Mag. Mat.* **71**, 147 (1988).
- [Wad 88b] A. Wadas, *J. Mag. Mag. Mat.* **72**, 295 (1988).
- [Wad 89] A. Wadas, *J. Mag. Mag. Mat.* **78**, 263 (1989).
- [Wad 89b] A. Wadas et P. Grütter, *Phys. Rev. B* **39**, 12013 (1989).
- [Wad 90] A. Wadas et H.-J. Güntherodt, *Phys. Lett.* **146**, 277 (1990).
- [Wad 90b] A. Wadas, P. Grütter et H.-J. Güntherodt, *J. Appl. Phys.* **67**, 3462 (1990).
- [Wad 90c] A. Wadas, P. Grütter et H.-J. Güntherodt, *J. Vac. Sci. Technol. A* **8**, 416 (1990).
- [Zho 95] L. Zhou, S. McVitie et J. N. Chapman, *J. Mag. Mag. Mat.* **148**, 237 (1995).

CHAPITRE V

Magnétisme des couches de cobalt

Depuis maintenant une dizaine d'années, l'étude des multicouches métalliques a suscité un vif intérêt dans la communauté scientifique. En effet, ces dernières possèdent des propriétés magnétiques liées à leur caractère bidimensionnel et stratifié n'existant pas dans un matériau à l'état massif [Bai 88, All 94]. Dans beaucoup d'études, le comportement magnétique de la couche ferromagnétique est décrit par un modèle de rotation cohérente de type Stoner-Wohlfarth sans tenir compte d'une éventuelle structure en domaine. Ce n'est que récemment qu'elle a été invoquée pour expliquer des phénomènes irréversibles dans des courbes de magnétorésistance [Per 96].

C'est pourquoi, nous avons choisi ici de suivre l'évolution des propriétés magnétiques d'une couche de cobalt unique en fonction de son épaisseur. Une étude systématique est menée à deux échelles différentes. Tout d'abord à une échelle dite macroscopique où la variation de l'aimantation est mesurée en fonction du champ appliqué. Puis à l'échelle microscopique voir nanoscopique où l'étude de la structure en domaine permet de montrer l'existence de différentes formes de domaine et d'en déduire les caractéristiques des courbes d'aimantation.

Après une brève description des travaux déjà réalisés sur les couches de cobalt, nous évoquerons les différents aspects nommés dans le paragraphe précédent. Nous mettrons en évidence que, pour une épaisseur et une histoire magnétique donnée, la couche de cobalt est parfaitement bien caractérisée c'est à dire que nous connaissons très exactement sa structure en domaine et ses champs caractéristiques. Nous montrerons qu'elle constitue un système idéal pour d'autres études telles que la mesure de magnétorésistance géante de paroi, la résonance ferromagnétique de paroi ou l'influence de la nanostructuration sur la taille et l'arrangement des domaines.

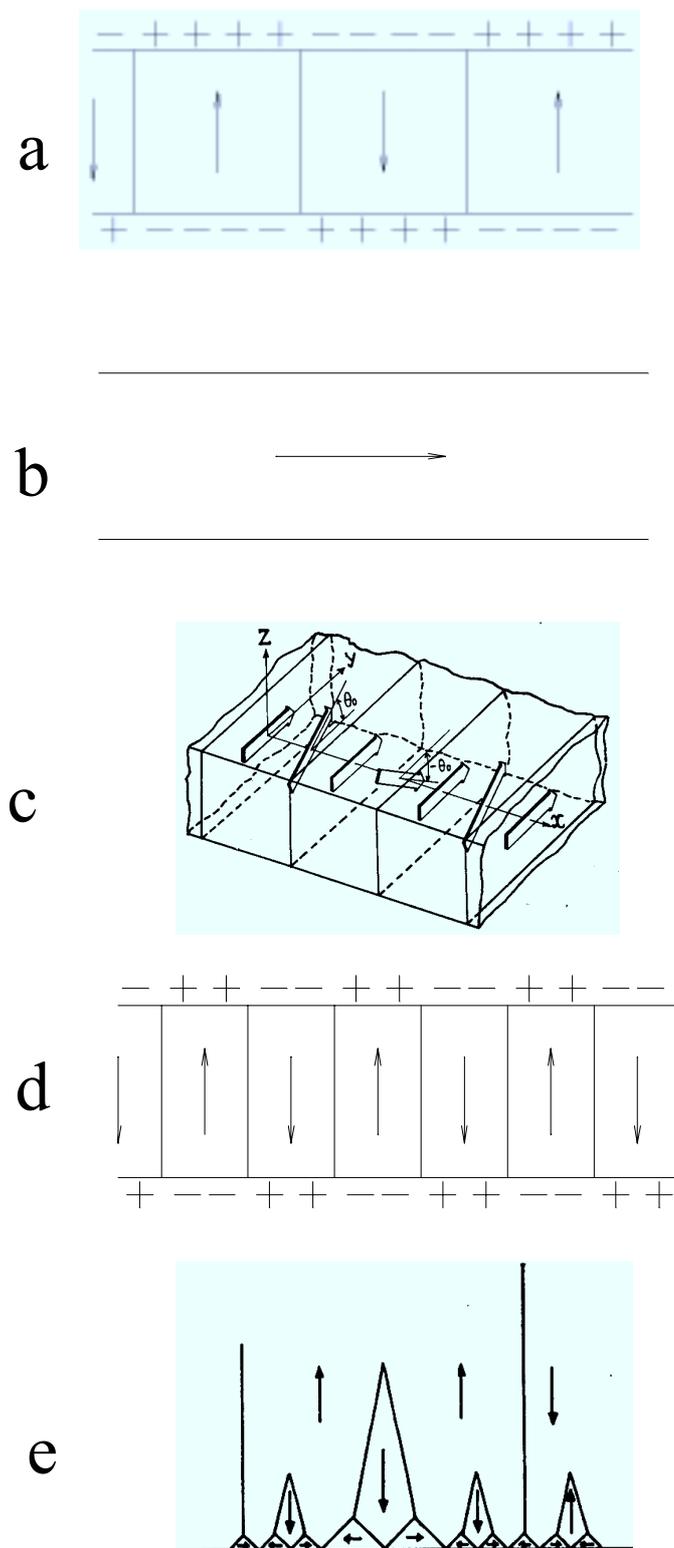


figure 5.1 : évolution de la distribution d'aimantation dans une couche de cobalt en fonction de son épaisseur (a) de 0 à quelques couches atomiques (b) de quelques couches atomiques à 20 nm (c) de 20 nm à 30 nm (d) de 30 nm à quelques microns et (e) pour des épaisseurs de 10 μm et plus.

A. BIBLIOGRAPHIE DU COBALT : DE LA COUCHE ATOMIQUE AU MICROMETRE

Le cobalt est l'un des matériaux ferromagnétiques le plus étudié avec le nickel et le fer. Dans le cas du matériau massif, les propriétés du magnétisme technique sont depuis longtemps connues et ont fait l'objet d'un nombre impressionnant de publications. Notamment, la dépendance en fonction de la température des constantes d'anisotropie magnétocristalline [Pau 62 pour hcp et Rod 61 pour cfc] et d'échange [Tan 60] ainsi que de l'aimantation à saturation [Mye 51] a été largement étudiée. La connaissance de ces paramètres est indispensable à l'étude du cobalt sous forme de couches minces ou de nanostructures.

Depuis, l'amélioration des techniques d'amincissement ionique et de dépôt sous ultraviolet a permis d'étudier ces paramètres ainsi que la structure en domaine en fonction de l'épaisseur du film de cobalt. C'est alors qu'une grande variété de configurations magnétiques a été mise en évidence en fonction de l'épaisseur de la couche de cobalt.

Récemment, le développement de techniques d'études du magnétisme à l'échelle microscopique telles que le SEMPA (microscopie électronique à analyse de polarisation) [All 90, Spe 95] et le MFM [Arm 96] (microscopie à force magnétique) en complément de techniques magnéto-optiques plus classiques [Pen 93] ont permis d'étudier des films de cobalt à aimantation perpendiculaire pour des épaisseurs variant de deux plans atomiques à quelques nanomètres. Dans cette gamme d'épaisseur, l'aimantation est orientée perpendiculairement à la couche à cause de la forte anisotropie d'interface entre le cobalt et les couches tampon et de protection (figure 5.1a). Dans le cas d'une multicouche Au/Co/Au(111), il a été montré que la taille des domaines était de l'ordre du micromètre.

Pourtant, lorsque l'épaisseur de la couche de cobalt augmente et dépasse sept couches atomiques dans le cas d'interfaces or/cobalt, l'anisotropie d'interface n'est plus assez grande pour vaincre l'anisotropie de forme et maintenir l'aimantation perpendiculaire au plan de la couche : l'aimantation se réoriente dans le plan de la couche. Le structure en domaine est alors constituée de grands domaines à aimantation planaire de quelques micromètres de diamètre (figure 5.1b) [All 90, Don 95]. Les parois séparant les différents domaines sont alors de type Néel ou Cross Tie. Cette première réorientation est la plus connue dans le monde des multicouches magnétiques car les épaisseurs des couches de cobalt n'excède jamais 4 à 5 nm.

Cette réorientation d'aimantation n'est pas unique. En effet, il a été prédit par Saito (Annexe B.5) pour des films magnétiques à forte anisotropie perpendiculaire dont l'épaisseur est supérieure à

$$h_1 \approx 27 \left(\frac{8}{\pi^2} \right)^2 \sqrt{\frac{AM_s^4}{K^3}}, \quad (5.1)$$

où K est la constante d'anisotropie magnétocristalline, A est la constante d'échange et M_s l'aimantation à saturation du cobalt, que la structure en domaine se transforme en une structure « weak stripe ». Alors que l'essentiel de l'aimantation reste dans le plan de la couche, une petite composante perpendiculaire d'aimantation se crée sous forme de bandes où elle est alternativement positive et négative de bande à bande comme cela est représenté sur la figure 5.1c. L'épaisseur h_1 a été estimée théoriquement égale à 20 nm pour une couche de cobalt de bonne qualité cristalline et a été mesurée égale à 40 nm [Don 95].

Cette structure se transforme en bandes à aimantation perpendiculaire (figure 5.1d) lorsque l'épaisseur de la couche est supérieure à

$$h_2 \approx 6.8 \sigma_w \left(\frac{M_s}{K} \right)^2, \quad (5.2)$$

où σ_w est l'énergie de paroi, comme cela a été prédit par Kittel [Kit 46] et reporté dans l'annexe B.2. L'épaisseur h_2 a été estimée théoriquement égale à 30 nm pour une couche de cobalt de bonne qualité cristalline et a été mesurée égale à 60 nm [Don 95]. On peut d'ores et déjà noter que la structure en domaine représentée sur la figure 5.1d peut présenter des domaines de fermeture pour diminuer son énergie magnétostatique (figure B.2). En effet, dans le cas du cobalt, les énergies des deux structures sont presque égales. Ces deux structures, remarquablement stables jusqu'à une épaisseur proche de 5 μm , présentent des variations de forme suivant l'histoire magnétique de l'échantillon. C'est ainsi qu'a été mis en évidence par Grundy [Gru 72] l'existence de bandes et de bulles à aimantation perpendiculaire dans des monocristaux de cobalt amincis d'épaisseur égale à 100 nm. Il a également été montré que le rapport entre la taille des domaines et l'épaisseur du film était plus petit que l'unité. Cette information est capitale pour l'interprétation des images MFM comme nous allons le voir au paragraphe C. La période de ces bandes est une fonction de l'épaisseur h du film et plus précisément proportionnelle à \sqrt{h} comme cela a été montré par Kittel [Kit 46]. Cette loi de variation a été confirmée expérimentalement par Kaczer pour des feuilles de cobalt d'épaisseurs comprises entre 0.7 et 3 μm .

Pour des épaisseurs encore plus grandes (figure 5.1e), des domaines de fermeture se forment pour faire apparaître à la surface de l'échantillon des structures sous forme d'étoiles [Kac 59, Hub 67]. L'apparition de domaines de fermeture est essentiellement attribuée à la forte magnétostriction du cobalt selon le modèle développé par Hubert [Hub 67]. Dans cette gamme d'épaisseur, la taille des domaines est proportionnelle à $h^{2/3}$.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons décidé d'apporter une contribution à cette étude dans le domaine d'épaisseur compris entre 10 et 500 nm. L'originalité du travail repose sur deux atouts essentiels. Tout d'abord, les échantillons sont élaborés à l'aide d'une technique unique alors que, dans la littérature, les échantillons de faible épaisseur sont obtenus par évaporation par canon à électrons et ceux de forte épaisseur sont obtenus par amincissement d'un échantillon massif. Puis, une étude systématique de la variation de la largeur des domaines à aimantation perpendiculaire et de leur forme en fonction de l'épaisseur et de l'histoire magnétique du film a été entreprise pour des épaisseurs comprises entre 50 et 500 nm. La réorientation de la direction d'aimantation, quant à elle, a également été étudiée et a été observée pour des épaisseurs différentes de celles trouvées dans la littérature [Don 95].

B. MAGNETISME MACROSCOPIQUE DES COUCHES DE COBALT

1. PARAMETRES INTRINSEQUES DU MATERIAU

Comme dans le cas du matériau massif, nous avons étudié l'évolution des paramètres intrinsèques du matériau en fonction de l'épaisseur de la couche et de la température.

1.1. Variation de l'aimantation à saturation, M_s

A partir des courbes d'aimantation qui seront présentées dans le paragraphe 2, nous avons accès à la mesure de l'aimantation à saturation du cobalt en fonction de l'épaisseur du film. Les résultats sont reportés sur la figure 5.2. Ils montrent que l'aimantation à saturation varie entre 1220 et 1600 emu/cm³ pour une valeur moyenne égale à 1390 emu/cm³. La mesure est entachée essentiellement de deux erreurs : l'erreur de mesure du moment magnétique à l'aide de l'AGFM qui est estimée à 5% et l'erreur de mesure du volume magnétique. Aux incertitudes de mesure près, nous pouvons dire que M_s est constante et égale à 1390 emu/cm³. Cette valeur est en bon accord avec celle obtenue pour le matériau à l'état massif [Mye 51].

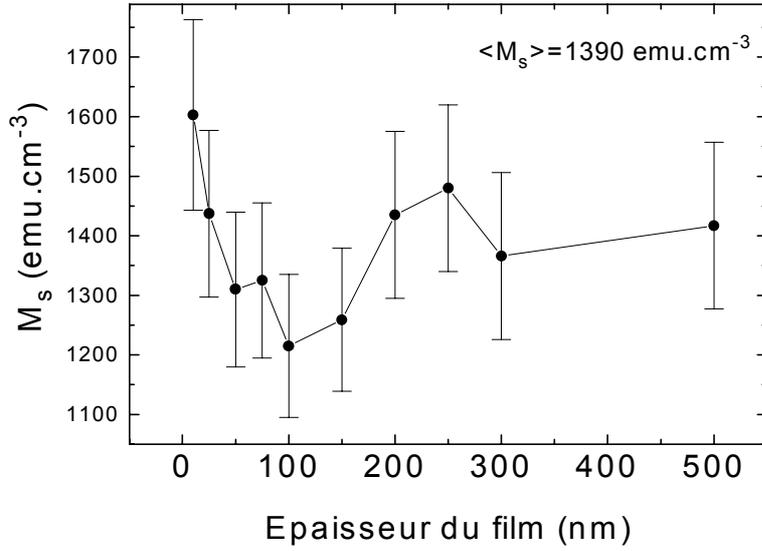


figure 5.2 : variation de l'aimantation à saturation avec l'épaisseur du film.

Nous n'avons pas vu d'évolution de l'aimantation à saturation avec la température. D'après Myers, sa variation est de l'ordre de 3% lorsque la température varie de la température ambiante à 4.2K, ce qui est bien plus faible que l'incertitude de notre mesure.

1.2. Variation des constantes d'anisotropie

Le cobalt hexagonal est un matériau uniaxe. Le développement de son énergie d'anisotropie par unité de volume au second ordre s'écrit

$$E_K^V = K_1^{eff} \sin^2 \varphi + K_2 \sin^4 \varphi \quad (5.3)$$

où

φ est l'angle de l'aimantation avec l'axe d'anisotropie et

$$K_1^{eff} = K_1^{MC} - 2\pi M_s^2 + \frac{3}{2} \lambda \sigma + 2 \frac{K_s}{h} \quad (5.4)$$

Le premier terme de K_1^{eff} , K_1^{MC} , est égal à l'énergie d'anisotropie magnétocristalline qui provient du couplage spin-orbite du spin de l'électron avec le champ cristallin [Blo 31]. Le second est égal à l'énergie de champ démagnétisant liée à la forme de l'échantillon (Annexe C). Les deux derniers termes proviennent de la magnétostriction du cobalt λ sous l'effet d'une contrainte σ et de son anisotropie de surface K_s [Jon 94]. La contribution de l'énergie d'anisotropie de surface est négligeable par rapport aux autres contributions pour les épaisseurs de couche dans notre étude.

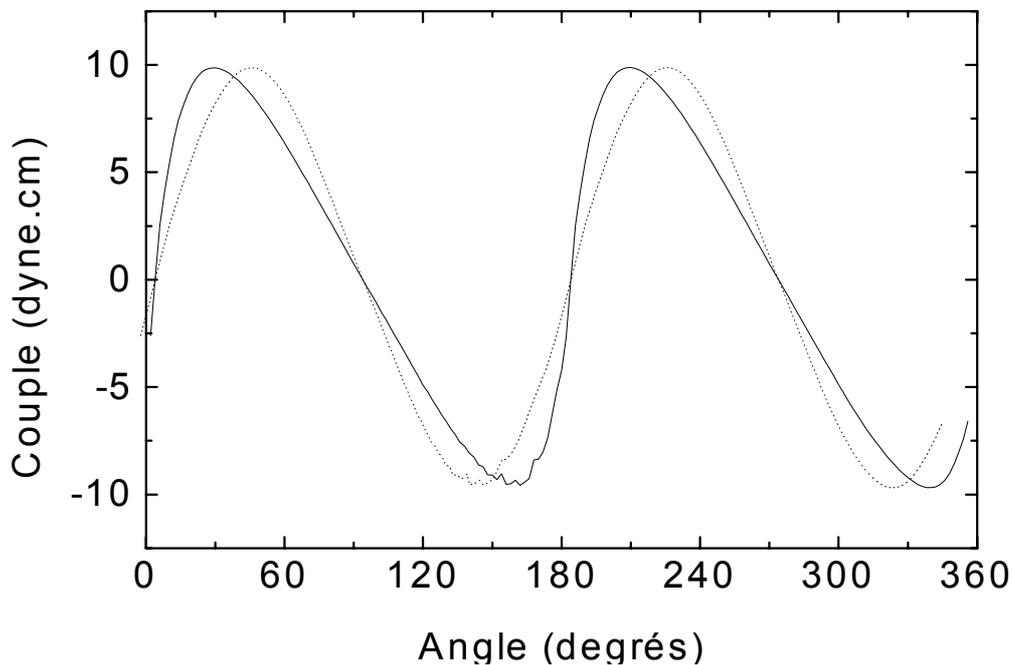


figure 5.3 : courbe de couple réversible obtenue pour une couche de 150 nm d'épaisseur avant (—) et après(---) correction de l'angle φ .

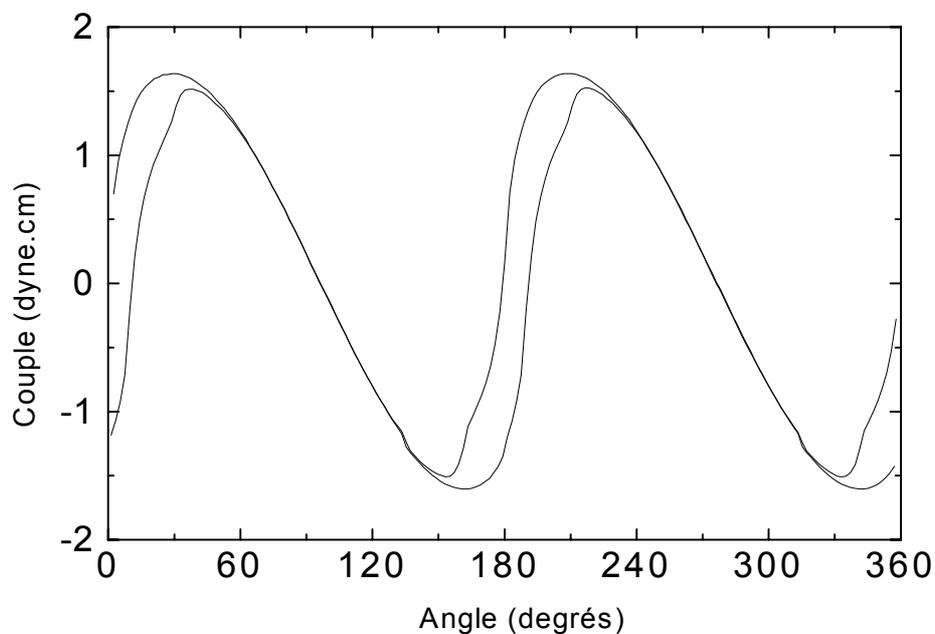


figure 5.4 : mise en évidence de rotations irréversibles dues à des mouvements de paroi ou des rotations irréversibles d'aimantation dès l'approche d'un axe difficile. Courbe de couple obtenue pour une couche d'épaisseur 200 nm à 1 kOe.

Le couple d'anisotropie est calculé à partir de l'équation (5.3) et est égal à

$$\Gamma_K = -\frac{\partial E_K}{\partial \varphi} = -V \left((K_1^{eff} + K_2) \sin(2\varphi) + \frac{K_2}{2} \sin(4\varphi) \right) \quad (5.5)$$

Lorsque l'on applique un champ magnétique dans un plan perpendiculaire au plan (0001) du cobalt, il est théoriquement possible de reproduire une courbe de couple à l'aide d'une combinaison linéaire de $\sin(2n\varphi)$ où n est un entier et d'en déduire les valeurs des différentes constantes d'anisotropie. Cependant, le champ appliqué lors de la mesure, égal à 10 kOe, est bien inférieur au champ de saturation de certaines couches (voir paragraphe 2). C'est pourquoi, le champ appliqué n'est pas suffisant pour aligner l'aimantation dans sa direction lorsqu'il se situe loin d'une direction de facile aimantation entraînant une déformation de la courbe expérimentale (figure 5.3). Il peut même apparaître un hystérésis provenant de rotations irréversibles de moments magnétiques ou de déplacements de parois de domaines (figure 5.4).

On doit toujours tracer le couple en fonction de $\varphi = \varphi^* - \alpha + \arcsin\left(\frac{\Gamma_r}{mH}\right)$ et non en fonction de $\varphi^* - \alpha$ déduit directement de la mesure sur un goniomètre (voir chap. IV.B.3 et figure 4.16). Cette correction d'angle permet de tenir compte du retard de l'aimantation par rapport au champ rotatoire et de redresser la courbe (figure 5.3). Cependant, il n'existe pas de méthode pour s'affranchir de l'hystérésis autre que l'augmentation du champ appliqué. L'introduction de rotations irréversibles ou d'une structure en domaine qui dépend du champ magnétique appliqué ne simplifie pas l'extraction des constantes d'anisotropie des couches [Gra 96].

Nous avons reporté dans la figure 5.5 l'évolution des constantes d'anisotropie en fonction de l'épaisseur de la couche de cobalt. Une observation globale de la courbe montre que $K_1 = K_1^{MC} + \frac{3}{2} \lambda \sigma$ et K_2 sont constantes dans la limite des incertitudes expérimentales et égales à 6×10^6 et 0.6×10^6 erg/cm³ respectivement. La première valeur est légèrement supérieure à celle donnée dans la littérature [Pai 84] égale à 5.2×10^6 erg/cm³. Cette différence peut être expliquée par l'adjonction d'une constante d'anisotropie d'ordre magnétoélastique. En effet, comme nous l'avons fait remarquer dans le chapitre II, la couche de cobalt est contrainte dans le plan de la couche. Cette contrainte est à l'origine du renforcement de la constante d'anisotropie par le biais de l'effet magnétostrictif. Pour une contrainte de 1%, la contribution de la composante magnétoélastique à la constante d'anisotropie est de l'ordre de 10^6 erg/cm³, ce qui est de l'ordre de grandeur de la différence entre nos mesures et ceux de Paige et collaborateurs.

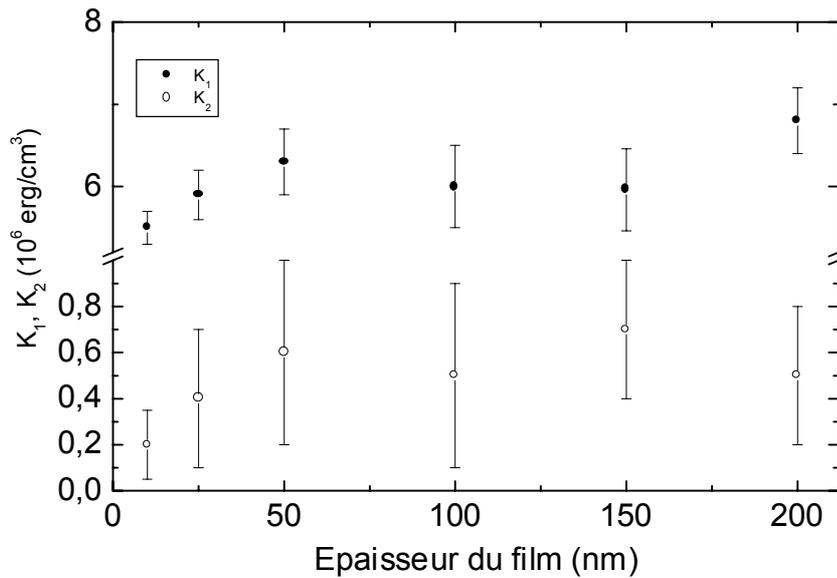


figure 5.5 : variation des constantes d'anisotropie avec l'épaisseur du film.

La variation de K_1 et de K_2 a également été étudiée en fonction de la température. Dans la figure 5.6a, les évolutions sont données pour la couche de 25 nm d'épaisseur. Nous voyons que plus la température diminue, plus l'écart entre les mesures de Paige et les nôtres devient important même si les lois d'évolution dans les deux cas restent les mêmes. On peut également noter que K_2 est indépendante de la température dans la limite des incertitudes de mesure.

Pour expliquer l'écart entre les deux mesures, nous invoquons à nouveau la magnétostriction du cobalt. Tout d'abord, nous savons que la couche de ruthénium est très peu contrainte et que sa longueur de cohérence est égale à son épaisseur. A l'interface avec le saphir, la couche est donc contrainte mais, très rapidement, le ruthénium relaxe vers son paramètre de maille massif lorsque l'on se rapproche de l'interface avec le cobalt si l'on suppose, en première approximation, que le cobalt ne contraint pas le ruthénium. Cette relaxation des contraintes est certainement maintenue à basse température. Ainsi, à la surface du ruthénium, le paramètre de maille du ruthénium est égal à celui du ruthénium massif et il suit l'évolution du paramètre de maille du massif en fonction de la température (figure 5.6b, □).

Le cobalt, déposé sur la couche de ruthénium, présente un comportement similaire à celui de la couche de ruthénium. Près de l'interface, le cobalt est contraint à 7% et cette contrainte diminue lorsque l'on se rapproche de la surface de l'échantillon.

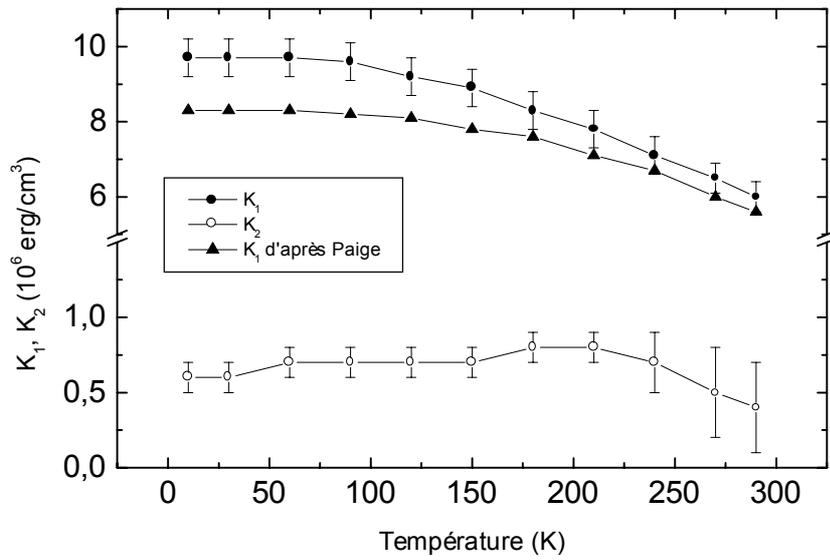


figure 5.6a : variation des constantes d'anisotropie pour un film d'épaisseur égale à 25 nm en fonction de la température. En guise de référence, les mesures obtenues par Paige ont également été reportées sur le graphe.

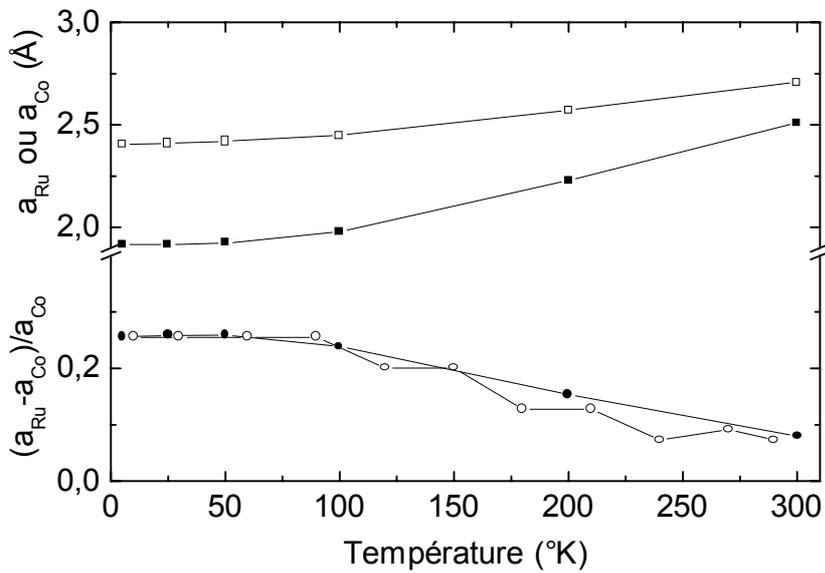


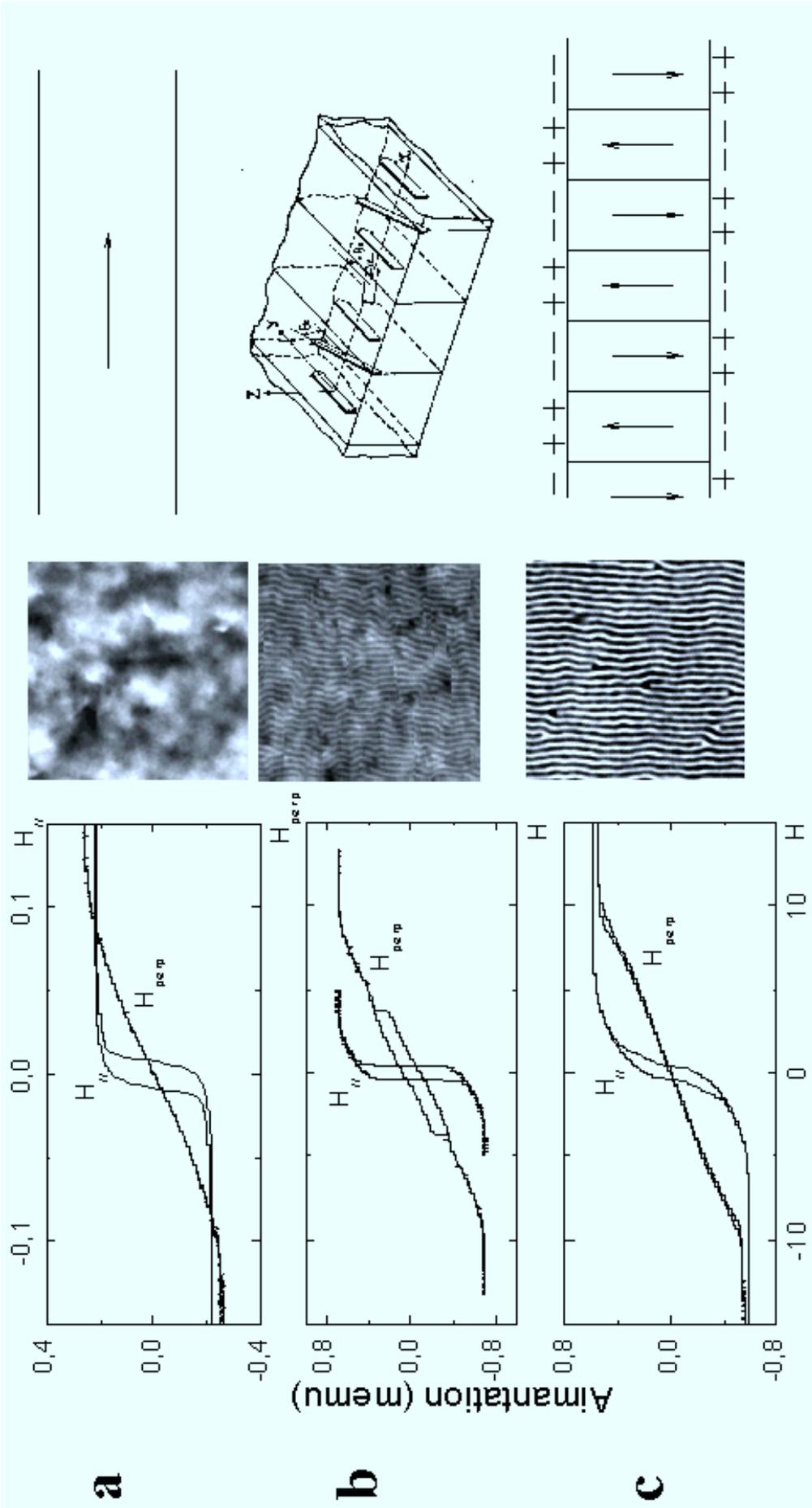
figure 5.6b : variation des paramètres de maille du cobalt massif a_{Co} , (■) et du ruthénium massif a_{Ru} (□), du rapport $(a_{Ru} - a_{Co})/a_{Co}$ (●) ainsi que de la différence pondérée des constantes d'anisotropie $\frac{\Delta K_1}{K_{ME}(0)}$ mesurées dans cette thèse et dans [Pai 84] (○) en fonction de la température.

En moyenne, comme nous l'avons vu dans l'étude des couches aux rayons X, elle est égale à 1%. Lorsque la température diminue, nous voyons, à partir de la figure 5.6b (●), que la contrainte entre la couche de cobalt et de ruthénium augmente au niveau de l'interface où le cobalt adopte le paramètre de maille du ruthénium lorsque la température diminue. Cette variation de contrainte va se traduire par une augmentation moyenne de la contrainte du cobalt et donc de l'anisotropie magnétoélastique.

Dans la figure 5.6b (○), nous avons également reporté la différence entre les constantes d'anisotropie K_1 , appelée ΔK_1 , mesurées pour les couches minces de cobalt et pour les couches de cobalt étudiées dans l'article de Paige. Cette différence a été divisée par un facteur $K_{ME}(0)$ constant de telle sorte qu'à basse température $\frac{\Delta K_1}{K_{ME}(0)} = \frac{(a_{Ru} - a_{Co})}{a_{Co}}$. Pour des températures supérieures à 100°K, $\frac{\Delta K_1}{K_{ME}(0)}$ est une fonction linéaire de la température. Cette dépendance s'explique par la loi de variation linéaire des paramètres de maille du cobalt et du ruthénium près de la température ambiante. Pour des températures inférieures à 50°K, $\frac{\Delta K_1}{K_{ME}(0)}$ est constante car les paramètres de maille n'évoluent plus avec la température. Les lois de variation de ΔK_1 pour les forte et faible valeurs de température renforcent l'hypothèse de son origine magnétoélastique.

1.3. Constante d'échange

Dans le cadre de cette thèse, nous n'avons pas fait de mesure expérimentale de la constante d'échange du matériau, A. Dans les simulations utilisant les modèles de structures en domaines, sa valeur a été choisie parmi celles qui sont données dans la littérature et fixée à $A=10^{-6}$ erg/cm [Tan 61].



Champ appliqué (kOe)

figure 5.7 : structures en domaines, images MFM et courbes d'aimantation avec le champ magnétique appliqué dans le plan et perpendiculairement au plan de la couche pour une couche de (a) 10 nm (b) 25 nm et (c) 50 nm d'épaisseur. Les dimensions des images sont égales à $3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$.

2. DE 10 A 50 NM : TRANSITION D'UNE AIMANTATION PLANAIRE A PERPENDICULAIRE

Nous avons d'abord choisi d'étudier la réorientation de la direction d'aimantation lorsque l'épaisseur augmente de 10 à 50 nm. L'ensemble des résultats est rassemblé sur la figure 5.7 où, pour chaque épaisseur, nous avons représenté la structure en domaine « schématique », les images MFM de surface égale à $3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$ et les courbes d'aimantation pour des champs appliqués dans le plan et perpendiculairement au plan de la couche.

Regardons tout d'abord les courbes d'aimantation obtenues pour l'échantillon le plus fin (figure 5.7a). Lorsque le champ est appliqué perpendiculairement à la couche, la variation de l'aimantation est caractéristique d'une rotation cohérente telle qu'elle a pu être décrite par Stoner et Wohlfarth (Annexe B). L'axe de croissance est donc un axe difficile et le film présente une aimantation planaire. Pour un champ appliqué dans le plan de la couche, le cycle d'aimantation est caractéristique d'une aimantation planaire avec un champ coercitif égal à 10 Oe. L'interprétation de l'image MFM n'est pas facile car la structure en domaine n'est pas bien définie. Nous voyons apparaître de forts contrastes liés à la présence de parois ainsi qu'une échelle de niveaux de gris qui peut provenir d'une réorientation partielle de l'aimantation planaire vers la direction de croissance sous l'effet de la pointe. Ces effets sont induits par le champ de fuite de la pointe et leur explications peut être trouvées dans la théorie du contraste en MFM développée dans l'équipe de J. Miltat. Cependant, la taille des domaines peut être estimée à $1 \mu\text{m}$ qui est la distance entre les plus forts contrastes premiers voisins.

Lorsque l'épaisseur de la couche est égale à 50 nm, la courbe d'aimantation perpendiculaire est caractéristique d'une structure en domaines à aimantation perpendiculaire telle qu'elle a pu être décrite par Kooy et Enz (Annexe B). La direction de l'aimantation est parallèle à l'axe de croissance au centre de chaque domaine et son orientation est alternativement positive et négative de domaine à domaine. La courbe d'aimantation planaire est caractéristique d'une rotation cohérente vers un axe difficile et présente une forte contribution de la seconde constante d'anisotropie et de la structure en domaines. L'image MFM obtenue après désaimantation planaire présente des bandes orientées dans la direction du champ appliqué avant la mesure. Etant donné que pour toutes les couches d'épaisseur supérieure à 50 nm nous retrouvons ce type de courbe d'aimantation et d'image MFM, nous avons décidé de rassembler les explications des processus physiques à l'origine de ces formes particulières de courbe d'aimantation dans le paragraphe B.3 et les interprétations des signaux MFM dans le paragraphe C.1.

La couche d'épaisseur égale à 25 nm présente un régime intermédiaire. En effet, comme nous pouvons le voir par rapport à la couche de 10 nm d'épaisseur, un hystérésis apparaît dans la courbe d'aimantation perpendiculaire pour des champs compris entre -4 et 4 kOe. De plus, la structure en domaines est constituée de bandes dont le contraste MFM est plus faible que celui des bandes de la

couche de 50 nm d'épaisseur alors que les signaux ont été mesurés dans les mêmes conditions expérimentales. La diminution du contraste est liée à la conservation d'une composante d'aimantation majoritairement planaire. Ces résultats sont similaires à ceux obtenus pour une couche de cobalt de 40 nm d'épaisseur [Don 95] où la présence d'une structure en domaine « weak stripe » a été mise en évidence par microscopie Lorentz. Nous pensons donc que pour une épaisseur de 25 nm, la structure en domaine est de type « weak stripe » même si l'épaisseur à laquelle elle est stable n'est pas la même que celle reportée dans [Don 95]. En fait, l'épaisseur critique h_1 d'apparition de cette structure dépend de l'aimantation à saturation et de la constante d'anisotropie du matériau comme cela a été montré par Saito dans l'équation (5.1). Sa valeur est estimée à 20 nm dans notre étude alors qu'elle est égale à 36 nm en utilisant les paramètres donnés dans [Don 95].

3. DE 50 A 500 NM : STRUCTURE EN DOMAINE A AIMANTATION PERPENDICULAIRE

Dans cette gamme d'épaisseur, la forme des courbes d'aimantation est indépendante de l'épaisseur du film magnétique comme nous pouvons le constater sur la figure 5.8. C'est pourquoi, nous allons nous focaliser sur l'échantillon de 150 nm d'épaisseur sachant que les explications qui vont être données sont valables pour toutes les autres épaisseurs. Cependant, les champs caractéristiques des courbes d'aimantation varient avec l'épaisseur du film et leurs variations peuvent être reproduites à partir de modèles développés pour les matériaux à bulles.

3.1. Variation de l'aimantation avec le champ appliqué perpendiculairement à la couche

Les courbes d'aimantation, lorsque le champ magnétique est appliqué perpendiculairement au plan de la couche, peuvent être interprétées à l'aide du modèle développé par Kooy et Enz [Koo 60] dans le cas d'une couche idéale. Nous allons décrire à l'aide de ce modèle le cycle d'aimantation dans le sens trigonométrique en partant du champ de saturation positif H_s et nous y apporterons quelques modifications pour tenir compte de la structure réelle de la couche.

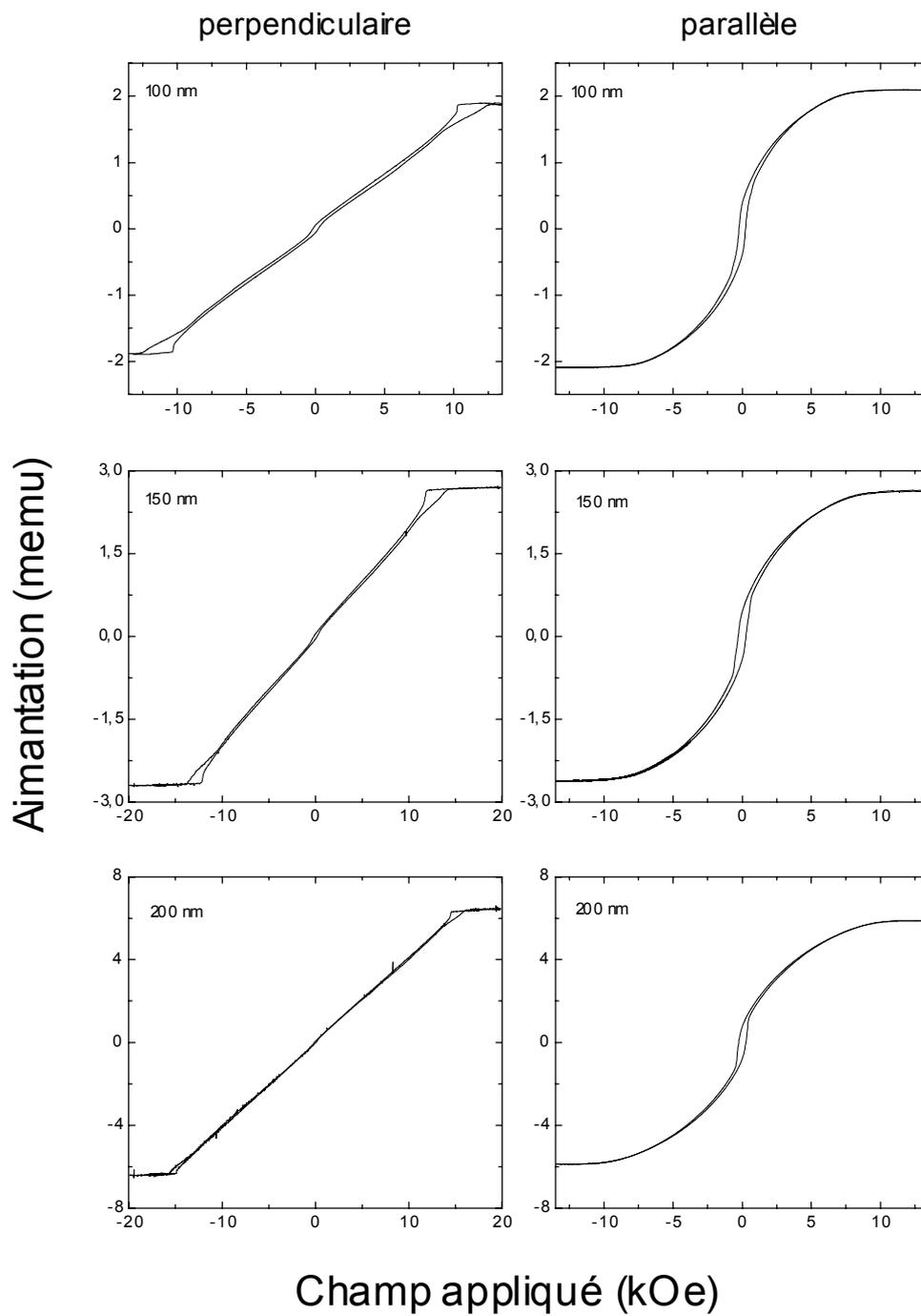


figure 5.8 : évolution de la forme des cycles d'aimantation avec le champ appliqué dans le plan et perpendiculaire au plan de la couche en fonction de l'épaisseur.

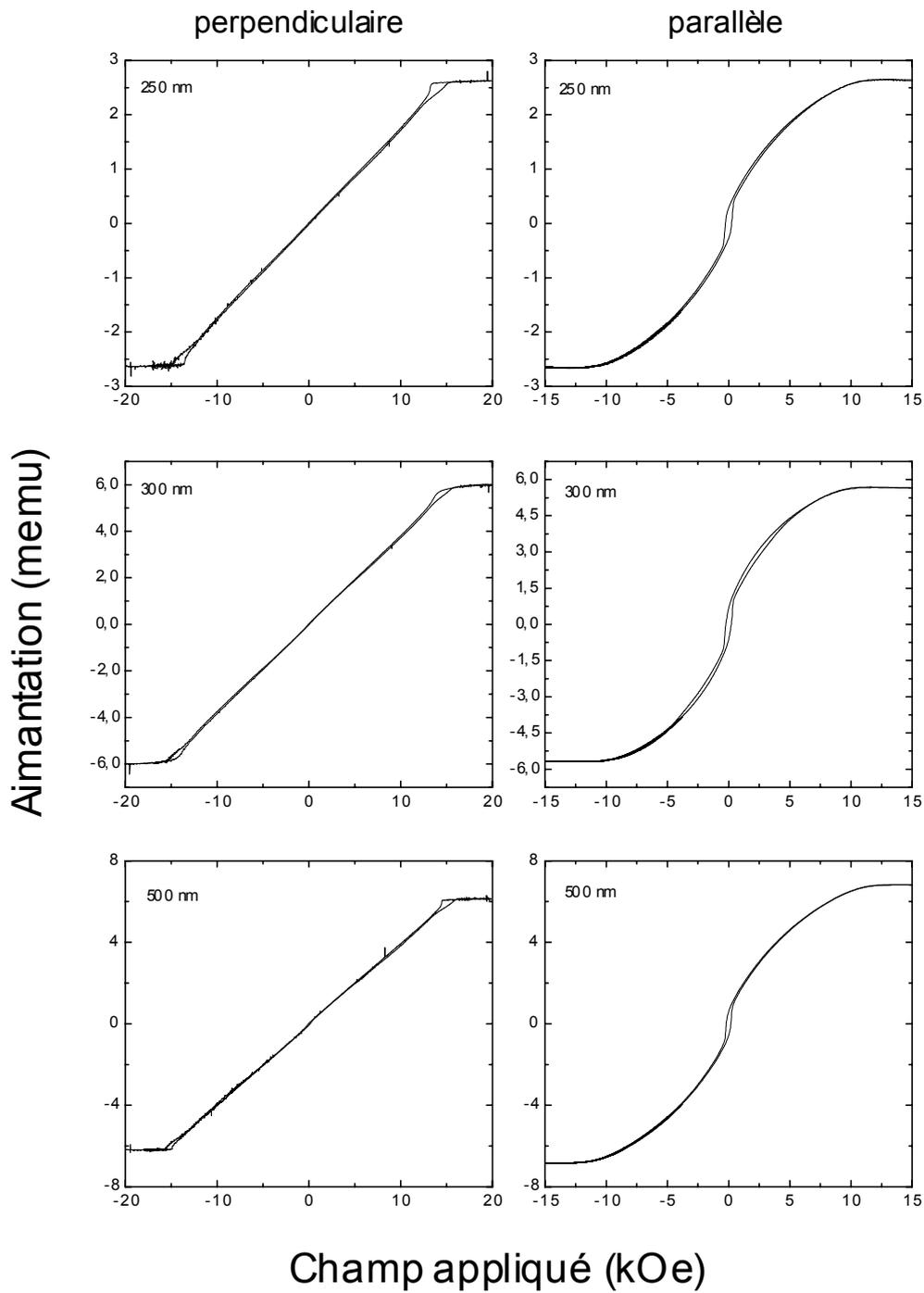


figure 5.8 : évolution de la forme des cycles d'aimantation avec le champ appliqué dans le plan et perpendiculaire au plan de la couche en fonction de l'épaisseur.

Comme nous le voyons sur la figure 5.9, l'aimantation de la couche décroît légèrement lorsque le champ appliqué diminue de H_s jusqu'au champ de nucléation H_n pour lequel une singularité apparaît dans la courbe d'aimantation. Cette décroissance ne peut pas être expliquée à l'aide du modèle théorique car elle est due à l'augmentation du diamètre de bulles résiduelles qui n'ont pas été éliminées lors du passage du champ appliqué à son maximum. Nous donnerons dans la suite de ce manuscrit des évidences expérimentales de leur présence à haut champ et nous demandons au lecteur d'accepter cette hypothèse pour l'instant. Cette même hypothèse a déjà été émise dans [Zep 91] pour expliquer les phénomènes de nucléation dans des multicouches Co/Pt. Lorsque le champ appliqué diminue, le rayon des bulles résiduelles augmente pour atteindre un rayon critique pour lequel les bulles sont soumises à une déformation elliptique telle qu'elle a été décrite par Thiele (Annexe B)[Thi 71]. Les bulles se déforment alors en bandes courtes ce qui se traduit par un saut dans la courbe d'aimantation.

Lorsque le champ magnétique diminue, les bandes s'allongent et grossissent par déplacement des parois entraînant une variation quasilineaire de l'aimantation en fonction du champ appliqué. Ce qui différencie cette courbe d'aimantation de celle obtenue pour la couche de 10 nm d'épaisseur avec le champ appliqué dans le plan, qui est quasiment carrée, est l'introduction d'un champ démagnétisant perpendiculaire qui n'existe pas dans le cas d'une aimantation planaire (Annexe B). Ce champ démagnétisant tend à stabiliser la structure en domaines en opposant une pression magnétique à celle du champ appliqué et freine donc la propagation des domaines. Lorsque le champ appliqué se rapproche de zéro, la propagation des parois devient difficile à cause d'une interaction répulsive significative entre les bulles allongées. L'aimantation ne suit alors plus une variation linéaire, ce qui entraîne l'apparition d'une aimantation rémanente non nulle. Ainsi, pour un champ appliqué nul, la structure en domaines est constituée de bulles allongées en interaction les unes avec les autres.

Pour des champs appliqués négatifs, les bulles allongées noires se connectent pour donner naissance à des bulles allongées blanches par un processus de déplacement de parois. Ces bulles allongées se transforment en bulles cylindriques et bulles résiduelles lorsque le champ appliqué excède $-H_s$.

Comme nous pouvons le constater sur la figure 5.8, l'ensemble des champs caractéristiques, c'est à dire H_s et H_n , ainsi que l'aimantation rémanente varient avec l'épaisseur de la couche de cobalt. Dans la suite de ce paragraphe, nous allons reproduire avec succès leurs variations soit à partir du modèle de Thiele (Annexe B), soit à partir de mesures MFM.

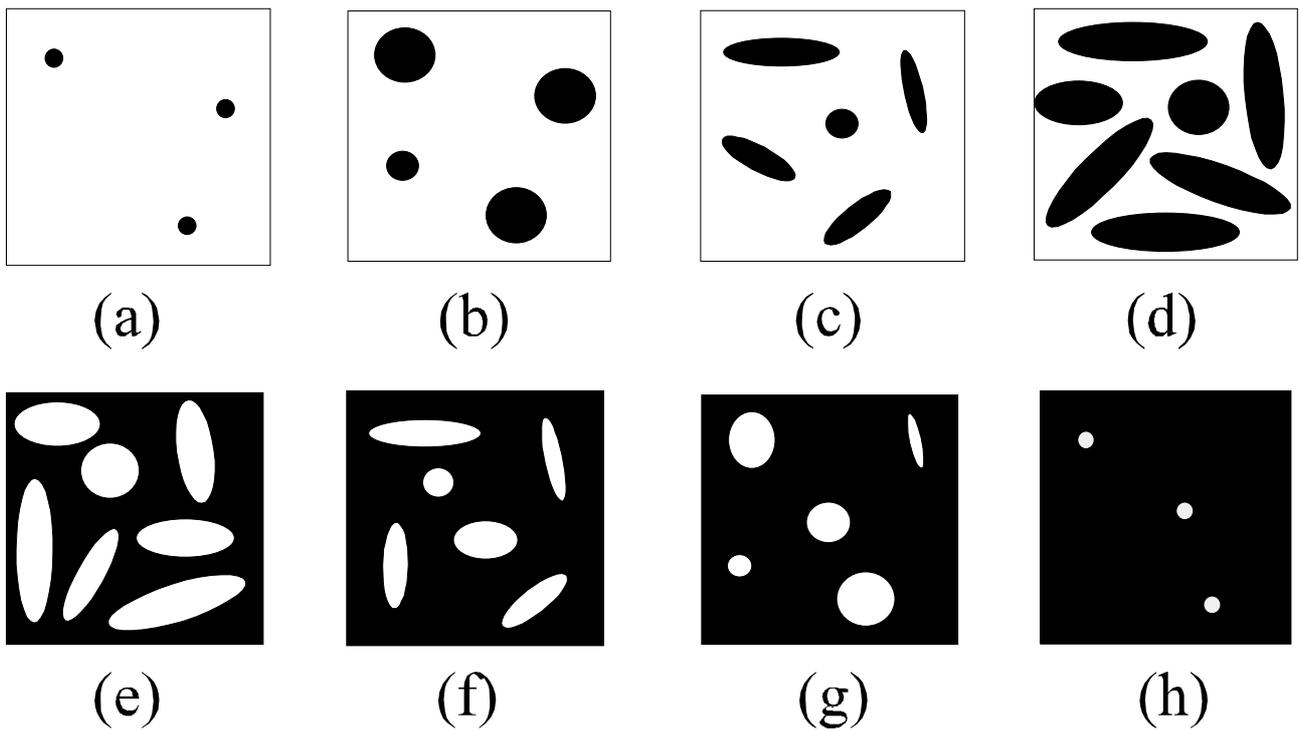
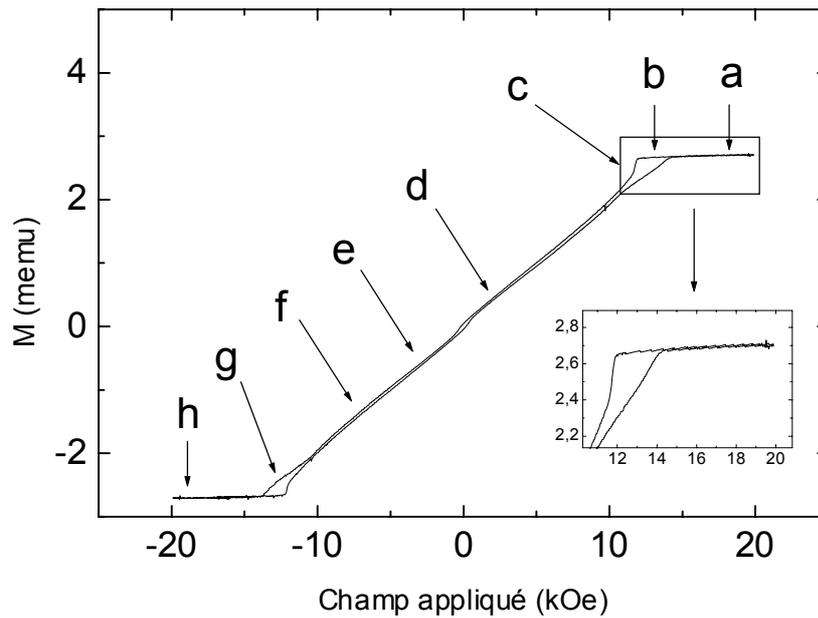


figure 5.9 : cycle d'aimantation obtenu avec le champ appliqué perpendiculairement à une couche de 150 nm d'épaisseur. Les dessins donnent une idée de la structure en domaines pour différentes valeurs du champ magnétique appliqué.

3.1.1. Variation du champ de saturation perpendiculaire

La variation du champ de saturation perpendiculaire en fonction de l'épaisseur du film est présentée dans la figure 5.10. Nous voyons qu'il augmente avec l'épaisseur de la couche à partir de 10.7 kOe pour la couche de 50 nm et semble saturer à 16 kOe pour la couche la plus épaisse.

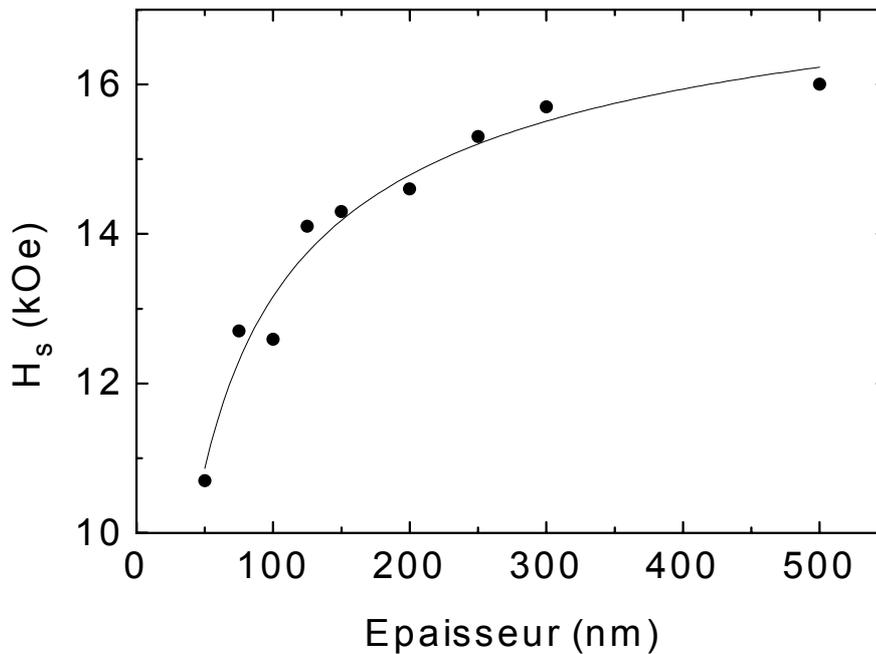


figure 5.10 : variation du champ de saturation perpendiculaire en fonction de l'épaisseur de la couche de cobalt. La courbe théorique (—) est en bon accord avec les points expérimentaux (●).

Il est possible d'utiliser plusieurs modèles pour décrire l'évolution du champ de saturation avec l'épaisseur du film magnétique. Dans tous les cas, nous prendrons une description théorique relative à des domaines sous forme de bulles. De plus, près de la saturation, les bulles sont très éloignées les unes des autres de telle sorte que nous pouvons les considérer comme indépendantes. Dès lors, une description selon le modèle de Thiele est tout à fait justifiée.

D'après son modèle (équation B.40), le champ de saturation perpendiculaire est égal à

$$H_s^\perp = 4\pi M_s \left(1 - 1.596 \sqrt{\frac{l}{h}}\right) \quad \text{avec} \quad l = \frac{\sigma_w}{4\pi M_s^2} \quad (5.6)$$

L'ajustement de cette loi aux points expérimentaux permet d'obtenir la valeur de l qui est le seul paramètre libre. On obtient $l = 3.45$ nm et donc une énergie de paroi égale à $\sigma_w = 8.7$ erg/cm². Cette valeur est en bon accord avec celle mesurée dans le cobalt massif [Lil 50].

3.1.2. Variation du champ de nucléation perpendiculaire

La variation du champ de nucléation perpendiculaire en fonction de l'épaisseur du film est présentée dans la figure 5.11. Nous voyons qu'il augmente avec l'épaisseur de la couche à partir de 9.2 kOe pour la couche de 50 nm jusqu'à 14.5 kOe pour la couche la plus épaisse.

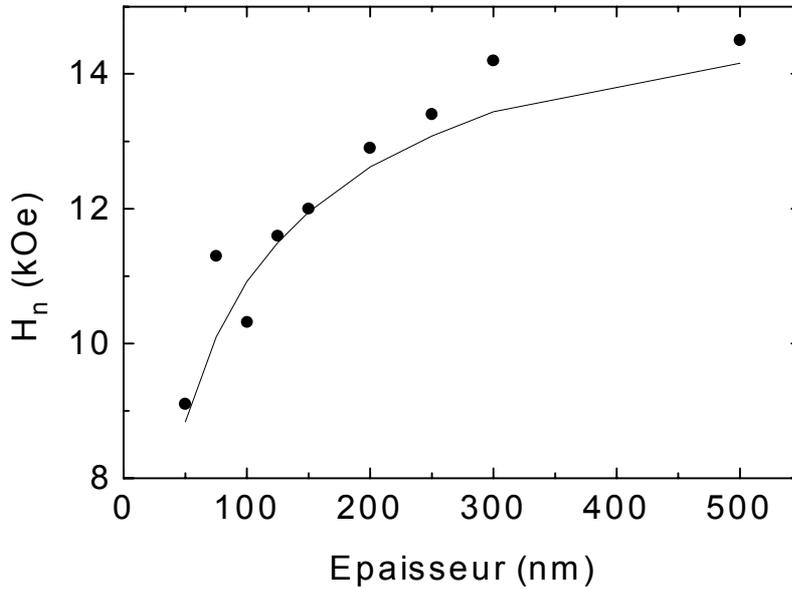


figure 5.11 : variation du champ de nucléation en fonction de l'épaisseur de la couche de cobalt. La courbe théorique (—) est en bon accord avec les points expérimentaux (●).

Comme nous l'avons fait remarquer au début du paragraphe 3.1, le champ de nucléation est égal au champ magnétique pour lequel les bulles résiduelles subissent une déformation elliptique et se transforment en de courtes bandes (Annexe B). Ce champ peut être évalué à l'aide du modèle développé par Thiele (Annexe B). Il faut d'abord déterminer le diamètre d'instabilité d_2 à l'aide de l'équation (5.7a), puis calculer le champ de nucléation à l'aide de l'équation (5.7b).

$$S_2 \left(\frac{d_2}{h} \right) = \frac{\sigma_w}{4\pi M_s^2 h} \quad (5.7a)$$

$$H_n \left(\frac{\sigma_w}{4\pi M_s^2 h} \right) = 4\pi M_s \frac{h}{d_2} \left[F \left(\frac{d_2}{h} \right) - \frac{\sigma_w}{4\pi M_s^2 h} \right] \quad (5.7b)$$

La courbe expérimentale est reproduite de manière satisfaisante pour la même valeur de σ_w déduite de la courbe du champ de saturation perpendiculaire.

3.1.3. Variation de l'aimantation rémanente perpendiculaire

L'aimantation rémanente perpendiculaire est également une fonction de l'épaisseur du film de cobalt comme nous pouvons le constater sur la figure 5.12 (—○—). Nous n'avons pas pu mettre en évidence une loi de variation théorique mais nous avons trouvé son origine. Lorsque la couche de cobalt est désaimantée avec le champ appliqué perpendiculairement à la couche, c'est à dire lorsque l'aimantation rémanente perpendiculaire est nulle, la structure en domaines est constituée d'un labyrinthe comme nous allons le voir dans le paragraphe C. Lorsqu'un échantillon a subi un cycle d'aimantation, la structure en domaines est constituée de bulles allongées s'il reste des domaines résiduels dans l'échantillon au champ maximum appliqué. Puisqu'il n'y a pas de connexions entre les bulles, les aimantations positive et négative ne sont pas compensées par rapport au cas de la structure en labyrinthe et l'aimantation rémanente est alors différente de zéro.

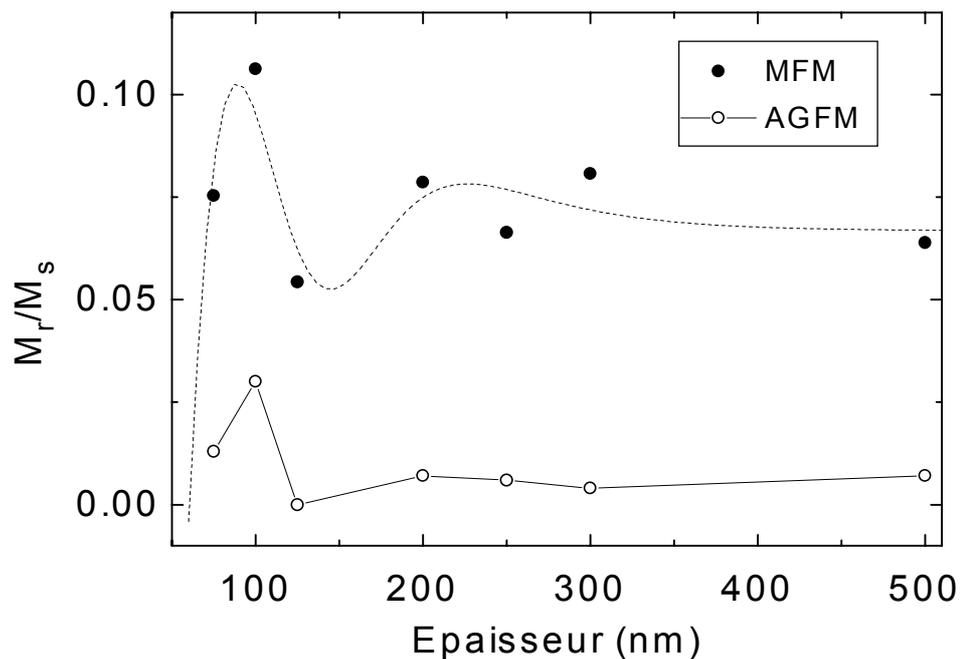


figure 5.12 : variation de l'aimantation rémanente en fonction de l'épaisseur de la couche de cobalt. La loi de variation obtenue à l'aide de l'interprétation des images MFM (--●--) est en bon accord avec les points expérimentaux (—○—).

A l'aide des images MFM, il est possible de déterminer l'aimantation rémanente perpendiculaire à partir de la densité de bulles et de leur aire moyenne (figure 5.12,--●--). Nous voyons que la loi de variation obtenue par analyse des images MFM est en bon accord avec celle obtenue par mesure

globale en AGFM. Le désaccord dans l'estimation de la mesure provient de la méthode utilisée pour l'obtention des données à partir des images MFM. En effet, l'aimantation rémanente est déterminée après un traitement informatique de l'image MFM. L'algorithme de seuillage des niveaux de gris des images est identique pour toutes les épaisseurs mais le niveau de seuillage a été fixé arbitrairement. Il est donc difficile de connaître la dimension exacte d'un domaine à partir de son image MFM alors que la détermination d'une période est plus facile.

3.2. Variation de l'aimantation avec le champ appliqué parallèlement à la couche

Lorsque le champ magnétique est appliqué dans le plan de la couche, le processus d'aimantation est complètement différent de celui évoqué au paragraphe précédent. En effet, la courbe d'aimantation planaire est caractéristique d'une rotation cohérente selon un axe difficile décrite par Stoner et Wohlfarth dans le cas d'un échantillon monodomaine et par Muller dans le cas d'un échantillon comportant une structure en domaines [Mul 67]. C'est pourquoi, il est nécessaire d'utiliser une théorie différente de celle développée par Thiele ou Kooy et Enz. L'interprétation de la forme de la courbe sera faite à l'aide du modèle de Muller (figure 5.13). Ce modèle est basé sur un calcul exact de micromagnétisme de la structure en domaines développée dans une couche à anisotropie perpendiculaire pour des champs proches de la saturation planaire (Annexe B).

Partant du champ de saturation positif où toute l'aimantation est orientée dans la direction du champ appliqué, une structure en domaines magnétiques de type « weak stripe » est créée lorsque le champ magnétique devient inférieur au champ de saturation H_s . Plus le champ magnétique appliqué diminue, plus la composante perpendiculaire d'aimantation augmente car le champ magnétique ne peut plus vaincre l'anisotropie qui force l'aimantation à être perpendiculaire au plan de la couche. Cette réorientation d'aimantation se fait par rotation cohérente des moments magnétiques dans chaque bande. Ainsi, en l'absence de champ appliqué, la structure en domaines est constituée de bandes à aimantation perpendiculaire séparées par des parois où l'aimantation, au centre de la paroi, est dirigée dans le sens du champ de saturation que nous avons appliqué au départ du cycle d'aimantation. Nous constatons alors que l'aimantation rémanente est non nulle et qu'elle varie en fonction de l'épaisseur de la couche. Elle est attribuée à la rémanence de parois comme nous allons le montrer par un petit modèle dans la suite.

Lorsque le champ appliqué est inversé et devient négatif, l'aimantation dans les domaines amorce une rotation dans la direction du champ mais, au centre des parois, elle reste dans le plan et dans la direction opposée au champ. Au champ coercitif, l'aimantation dans toutes les parois se retourne entraînant un saut dans la courbe d'aimantation. La fin du cycle d'aimantation est obtenue par rotation cohérente de l'aimantation des domaines dans la direction du champ appliqué.

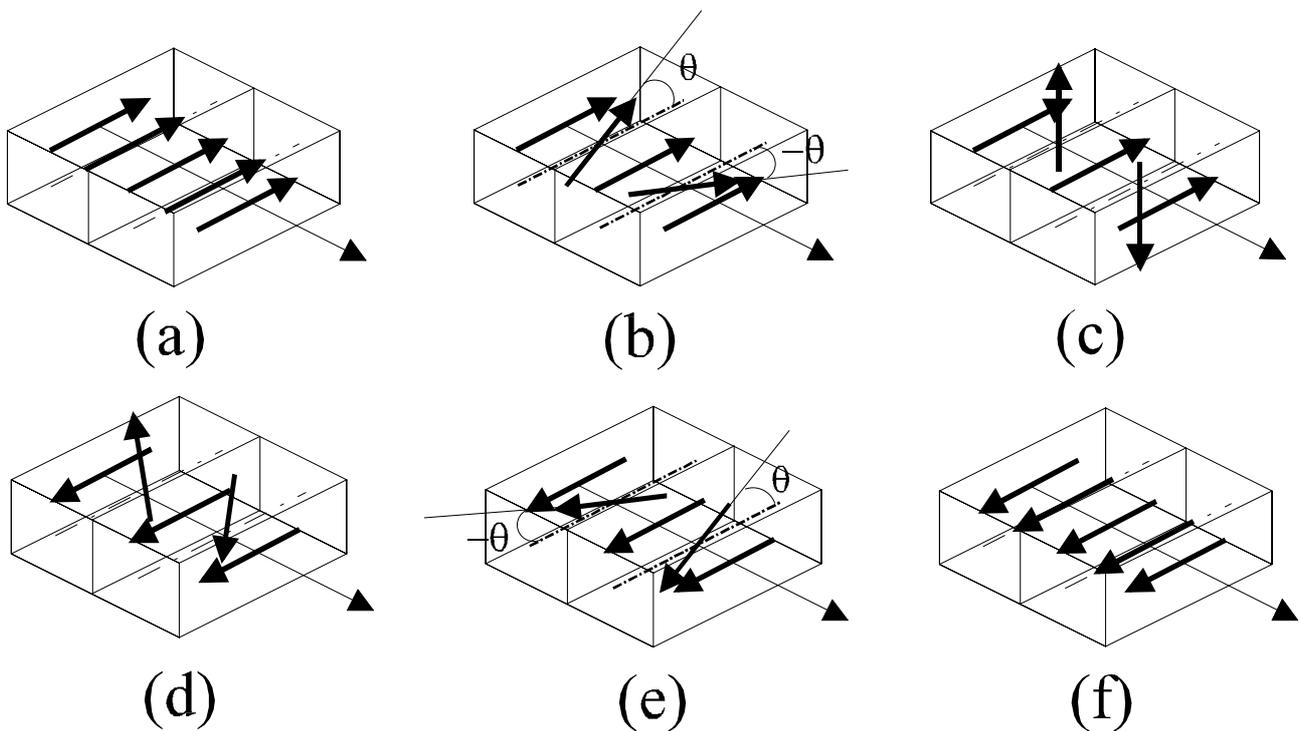
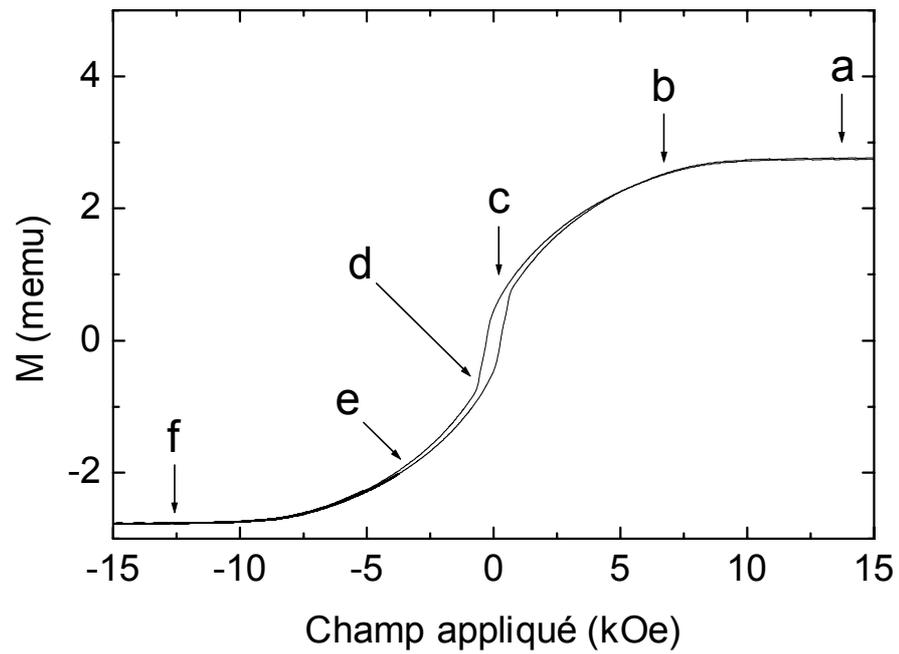


figure 5.13 : cycle d'aimantation obtenu avec le champ appliqué parallèlement à une couche de 150 nm d'épaisseur. Les dessins donnent une idée de la structure en domaines pour différentes valeurs du champ magnétique appliqué.

3.2.1. Variation du champ de saturation planaire

Nous avons évalué le champ de saturation planaire à l'aide du modèle de Muller. Comme nous l'avons développé dans l'annexe B, il s'agit de résoudre un système d'équations dont les paramètres sont des constantes connues du matériau (M_s , K_1 et K_2). Un bon accord entre les valeurs calculées et mesurées a pu être obtenu comme nous pouvons le voir dans la figure 5.14 et dans le tableau 5.1.

épaisseur (nm)	H_s (calculée) (kOe)	H_s (expérience) (kOe)
50	7.38	6.6
75	8.86	8.5
100	9.6	9.3
125	10.05	9.2
150	10.35	10.9
200	10.72	10.5
250	10.94	11.1
300	11.09	11.3
500	11.38	11.8

tableau 5.1 : comparaison des valeurs des champs de saturation planaire obtenues par une mesure directe et par un calcul théorique.

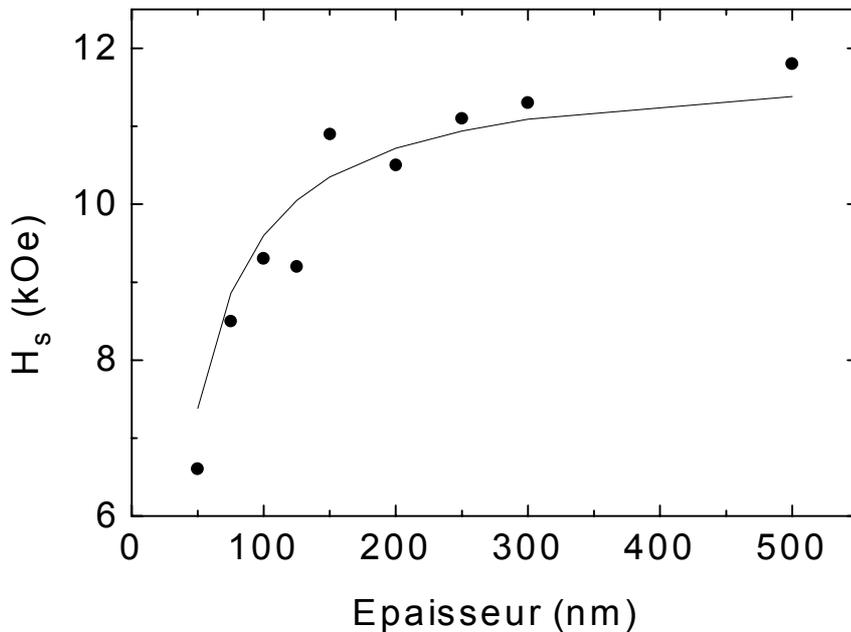


figure 5.14 : variation du champ de saturation planaire en fonction de l'épaisseur de la couche de cobalt. La courbe théorique (—) est en bon accord avec les points expérimentaux (●).

3.2.2. Variation de l'aimantation rémanente parallèle, M_r

Nous voyons sur la figure 5.15 une décroissance du rapport M_r/M_s lorsque l'épaisseur de la couche augmente (●). Etant donné que nous avons mesuré M_rV/M_sV , il convient d'évaluer ces deux quantités. Tout d'abord, M_rV est proportionnelle au produit du volume d'une paroi par la densité de parois. Dans le paragraphe C, nous allons montrer par mesure MFM que la période des domaines est proportionnelle à \sqrt{h} , ainsi la densité des parois est proportionnelle à $\frac{1}{\sqrt{h}}$. De plus, la hauteur de la paroi est égale à h . M_rV est donc proportionnelle à \sqrt{h} . M_sV quant à elle est proportionnelle à h .

Il vient donc finalement que

$$\frac{M_r}{M_s} \propto \frac{1}{\sqrt{h}} \quad (5.8)$$

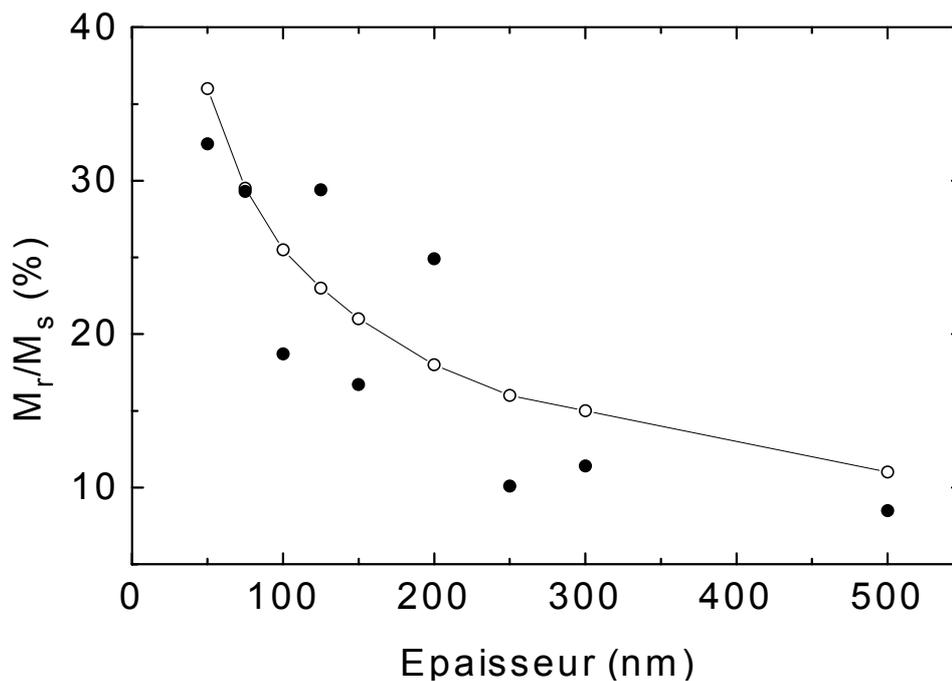


figure 5.15 : variation de l'aimantation rémanente parallèle avec l'épaisseur de la couche de cobalt pour la mesure expérimentale (●) et le modèle théorique (—○—).

Expérimentalement, c'est la tendance que nous observons même si la statistique de nos mesures n'est pas très bonne. Maintenant que l'origine de la décroissance est bien comprise, nous avons décidé de développer un petit modèle analytique pour avoir une approche un peu plus quantitative. Pour cela, nous avons pris un profil d'aimantation perpendiculaire en $\text{Arctan}(x/w)$ (figure 5.16) identique à celui utilisé pour le développement théorique des signaux MFM.

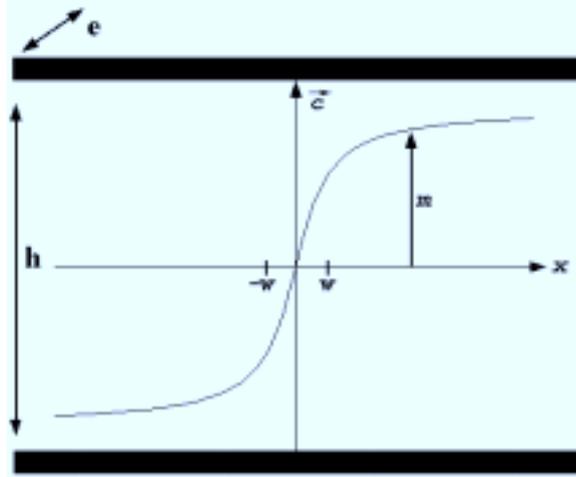


figure 5.16 : profil d'aimantation utilisé pour la modélisation de l'évolution de la rémanence planaire en fonction de l'épaisseur du film de cobalt.

Par hypothèse, la composante perpendiculaire de l'aimantation à une distance x du centre de la paroi s'écrit

$$m_{\text{paroi}}^{\perp}(x) = M_s \frac{2}{\pi} \text{Arctg}\left(\frac{x}{w}\right) \quad (5.9)$$

Puisque la norme de l'aimantation est toujours la même quelque soit l'épaisseur de la couche, la composante planaire de l'aimantation à une distance x du centre de la paroi se calcule à l'aide de

$$m_{\text{paroi}}^{\parallel}(x) = \sqrt{M_s^2 - (m_{\text{paroi}}^{\perp}(x))^2} \quad (5.10)$$

Enfin, le calcul du moment magnétique total est obtenu par sommation de tous les moments magnétiques locaux sur la largeur de la paroi

$$m_{\text{paroi}}^{\parallel} = M_s e h \int_{-\infty}^{\infty} \sqrt{1 - \frac{4}{\pi^2} \text{Arctg}^2\left(\frac{x}{w}\right)} dx \quad (5.11)$$

Le moment magnétique de la couche pour un domaine uniformément aimanté est donné par

$$m = M_s d e h \quad (5.12)$$

où $d = 10.16\sqrt{h}$ (d et h sont exprimés en nm, la relation est déterminée au paragraphe C)

Expérimentalement, nous avons accès au rapport de ces deux quantités à savoir

$$\frac{m_{paroi}''}{m} = \frac{1}{10.16\sqrt{h}} \int_{-\infty}^{\infty} \sqrt{1 - \frac{4}{\pi^2} \text{Arctg}^2\left(\frac{x}{w}\right)} dx \quad (5.13)$$

En prenant $w=7.5$ nm, valeur courante pour une paroi de Bloch dans du cobalt, nous obtenons un bon accord entre valeurs expérimentales et théoriques comme nous pouvons le voir dans le tableau 5.2 et la figure 5.15 (—○—).

épaisseur (nm)	M_r/M_s (calculée)	M_r/M_s (expérience)
50	0.36	0.324
75	0.295	0.293
100	0.255	0.187
125	0.23	0.294
150	0.21	0.167
200	0.18	0.249
250	0.16	0.101
300	0.15	0.114
500	0.11	0.085

tableau 5.2: comparaison des valeurs des aimantations rémanentes planaires obtenues par une mesure directe et par le modèle analytique.

3.3. Variation de l'aimantation avec le champ appliqué en fonction de la température

Nous avons également étudié l'évolution des courbes d'aimantation en fonction de la température. Nous ne présenterons ici que les courbes obtenues pour l'échantillon de 150 nm d'épaisseur pour une température égale à 4.2°K. Les caractéristiques de cet échantillon ont largement été discutées dans les paragraphes 3.1 et 3.2. à température ambiante.

Pour les deux cycles d'aimantation de cet échantillon, la descente en température a été réalisée sous un champ de 8 Teslas. Comme nous pouvons le constater sur les figures 5.17 et 5.18, les cycles d'aimantation ne sont pas décalés en champ, c'est à dire qu'ils restent centrés sur le champ nul. C'est ainsi que nous avons pu mettre en évidence qu'il n'existe pas de couche de cobalt oxydée.

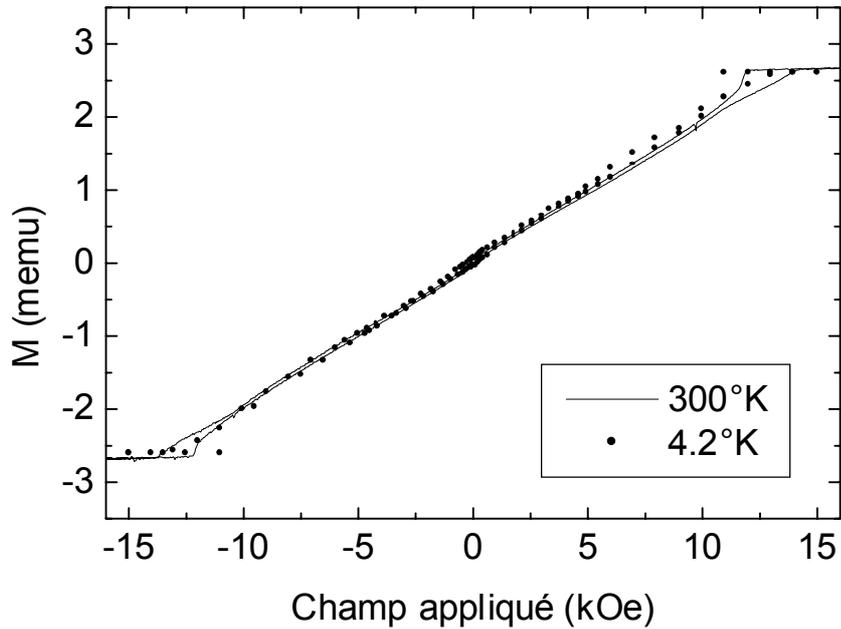


figure 5.17 : comparaison des cycles d'aimantation obtenus en champ perpendiculaire à l'ambiante et à 4.2°K dans le cas d'une couche de 150 nm d'épaisseur.

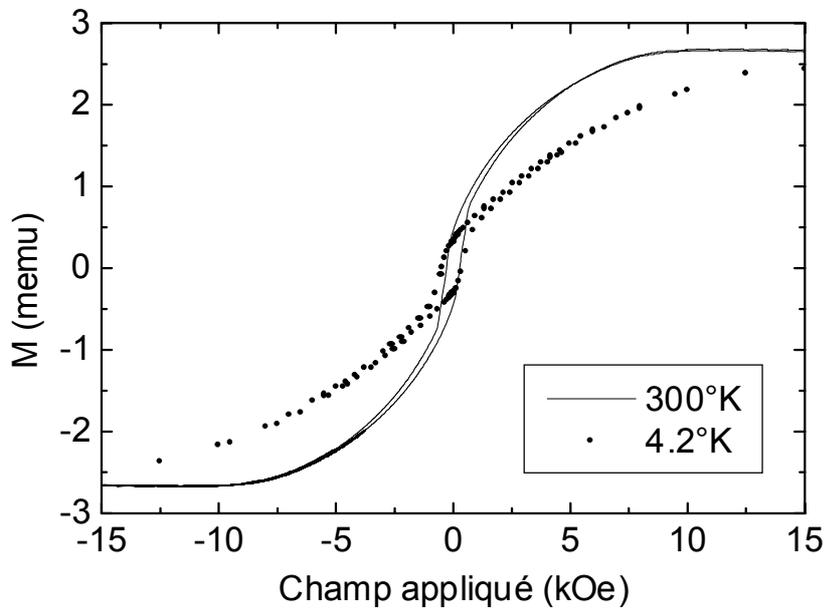


figure 5.18 : comparaison des cycles d'aimantation obtenus en champ planaire à l'ambiante et à 4.2°K dans le cas d'une couche de 150 nm d'épaisseur.

En effet, dans le cas contraire, le couplage d'échange entre une couche de cobalt et son oxyde antiferromagnétique entraîne un décalage en champ de la courbe d'aimantation.

On peut noter sur la figure 5.17, qui présente une comparaison des cycles d'aimantation obtenus en champ perpendiculaire à l'ambiante et à 4.2°K, que la forme du cycle reste inchangée mais que les valeurs des champs de saturation et nucléation ont diminué. Comme nous le savons, la constante d'anisotropie K_1 du cobalt augmente lorsque la température diminue. L'énergie de paroi, directement reliée à la constante d'anisotropie, augmente comme la racine carrée de celle-ci dans le cas d'une paroi de Bloch (Annexe B.2.2). Ainsi, dans l'équation (5.6), le terme entre parenthèse diminue et donc le champ de saturation perpendiculaire aussi. Une analyse similaire peut être faite dans le cas du champ de nucléation à l'aide de l'équation (B.40).

On peut noter sur la figure 5.18, qui présente une comparaison des cycles d'aimantation obtenus en champ planaire à l'ambiante et à 4.2°K, que la forme du cycle reste inchangée bien que sa courbure diminue et que la valeur du champ de saturation augmente. Ces deux effets sont liés à l'augmentation des constantes d'anisotropie lorsque la température diminue. Malheureusement, le modèle de Muller ne permet pas de faire un lien direct entre la constante d'anisotropie et le champ de saturation. C'est pourquoi, nous allons utiliser le modèle de Stoner-Wohlfarth. Ce dernier montre que le champ de saturation planaire est égal à

$$H_s^{\parallel} = \frac{2}{M_s} (K_1^{eff} + 2K_2) \quad (5.14)$$

Dans le cas d'une couche uniformément aimantée, $K_1^{eff} = K_1 - 2\pi M_s^2$. Cependant, dans notre cas, la structure en domaines est constituée de bandes ce qui a pour effet de diminuer le champ démagnétisant perpendiculaire qui n'est plus égal à $4\pi M_s$ mais à $4\pi N_{\perp} M_s$ où N_{\perp} est le facteur de champ démagnétisant perpendiculaire. Ainsi, le champ de saturation parallèle est égal à

$$H_s^{\parallel} = \frac{2}{M_s} (K_1 + 2K_2 - 2\pi N_{\perp} M_s^2) \quad (5.15)$$

et augmente lorsque les constantes d'anisotropie augmentent c'est à dire lorsque la température diminue.

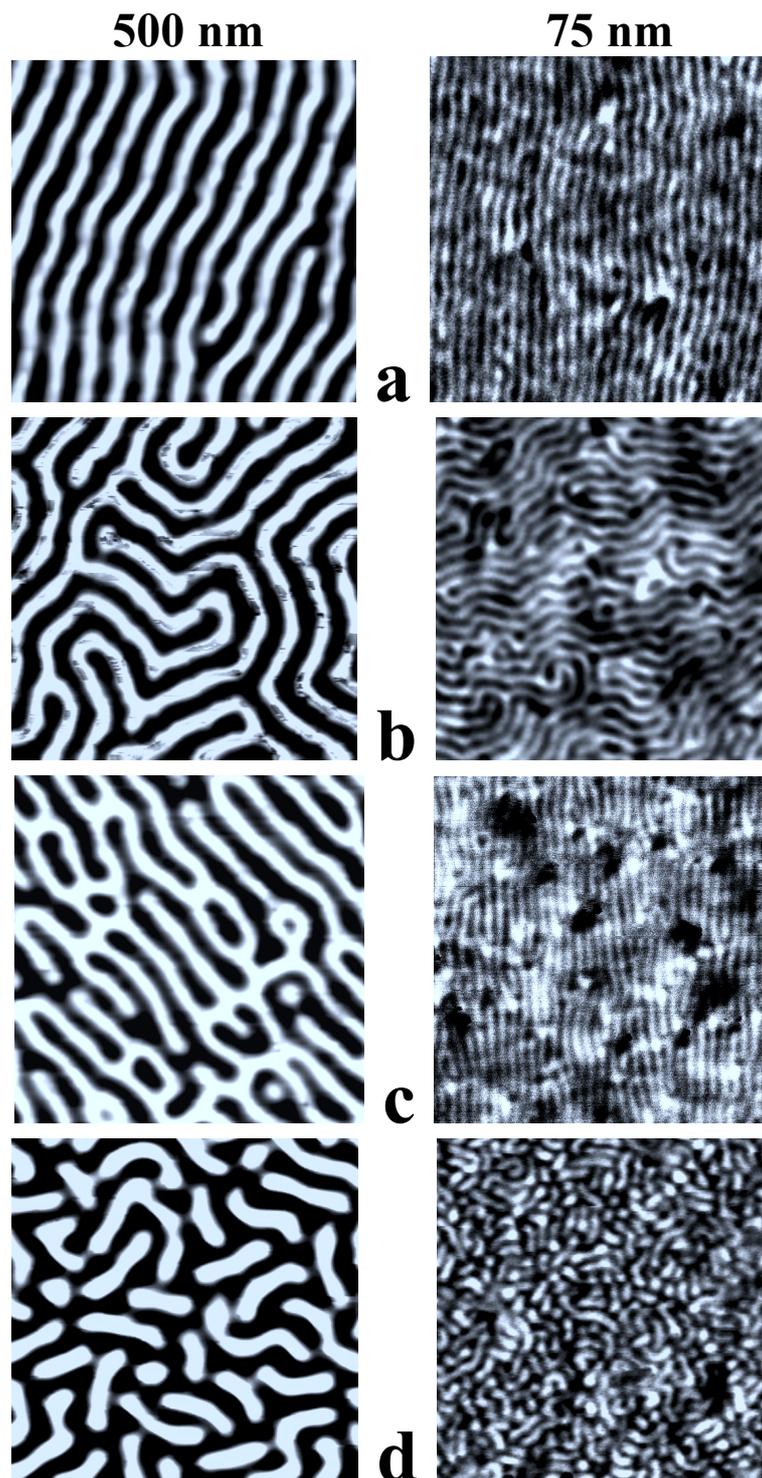


figure 5.19 : images MFM mesurées en l'absence d'un champ appliqué sur des couches de 500 nm et 75 nm d'épaisseur. Les différentes images correspondent à un état démagnétisé (a) parallèle et (b) perpendiculaire et à un état rémanent (c) parallèle et (d) perpendiculaire. La taille des images est égale à $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$.

C. MAGNETISME MICROSCOPIQUE DES COUCHES DE COBALT : LA STRUCTURE EN DOMAINES

1. LES DIFFERENTS ETATS MAGNETIQUES

1.1. Présentation des états

Nous avons étudié la structure locale de l'aimantation dans les couches de cobalt par microscopie à force magnétique en champ nul ou pour de petits champs appliqués perpendiculairement à la couche. Puisque l'amplitude maximale de ces champs n'excède pas le dixième du champ de saturation des couches, la visualisation de la structure en domaines tout au long du cycle d'aimantation n'a pas pu être entreprise. C'est pourquoi, nous avons été amenés à visualiser les domaines dans des états magnétiques bien définis. Ces états magnétiques sont au nombre de quatre. Les deux premiers états sont des états démagnétisés avec le champ appliqué perpendiculairement ou parallèlement au plan de la couche. Dans ce cas, à partir du champ de saturation, le champ appliqué décroît jusqu'à zéro en suivant une sinusoïde amortie : le sens du champ est alternativement positif puis négatif tout en réduisant son amplitude. Les deux seconds états sont des états rémanents avec le champ appliqué perpendiculairement ou parallèlement au plan de la couche. Dans ce cas, l'aimantation du matériau est amenée à saturation et le champ appliqué est brutalement coupé.

L'interprétation des images MFM repose sur les considérations théoriques développées au chapitre IV et notamment sur la figure 4.11. D'après Grundy [Gru 66], le rapport entre la taille des domaines et l'épaisseur du film est inférieur à l'unité. Dans le cas théorique, nous nous trouvons donc dans le cas où p/h est inférieur à 2. Les signaux issus de chaque paroi se superposent donnant un profil quasiment sinusoïdal proportionnel à la dérivée seconde du champ de fuite. Les contrastes noir et blanc sont alors sans ambiguïté localisés sur des domaines à aimantation perpendiculaire alternativement aimantés positivement et négativement selon l'axe \vec{c} même si les contrastes proviennent des inhomogénéités de l'aimantation c'est à dire des parois.

L'ensemble de ces états a été rassemblé sur la figure 5.19 pour deux couches d'épaisseur égale à 500 et 75 nm. Nous voyons que dans le cas d'une désaimantation planaire, la structure en domaines est constituée de bandes orientées selon la direction du champ appliqué lors de la désaimantation. Un état presque identique est obtenu dans l'état rémanent parallèle. La structure en bandes, toujours orientées dans la direction du champ appliqué avant la visualisation, est alors perturbée par des défauts. La directivité des bandes disparaît lorsque la désaimantation est réalisée avec le champ appliqué perpendiculairement à la couche. La structure en domaines est alors constituée d'un labyrinthe dans lequel les différentes branches se connectent à 120° les unes aux autres. Une structure totalement différente est observée dans l'état rémanent perpendiculaire.

Dans ce cas, des bulles circulaires coexistent avec des bulles allongées sans qu'il y ait apparemment de direction privilégiée dans laquelle elles s'orientent.

Cette étude a été réalisée pour une dizaine d'épaisseurs comprises entre 75 et 500 nm. Elle a montré que la forme des domaines, pour un état magnétique donné, était indépendante de l'épaisseur du film. Nous avons volontairement présenté les résultats obtenus pour ces deux épaisseurs extrêmes car ils montrent bien que la largeur des domaines est une fonction de l'épaisseur du film.

1.2. Passage d'un état à l'autre

Nous allons maintenant tenter d'élucider les différents mécanismes à l'origine des structures en domaines observées et nous commencerons par l'état obtenu après désaimantation planaire. La formation de cette structure en domaines a déjà été largement exposée dans le paragraphe B lors de la présentation du cycle d'aimantation planaire. L'aimantation subit une rotation cohérente sans déplacement de parois car ces dernières sont orientées selon la direction du champ et ne subissent donc pas de pressions magnétiques de la part du champ appliqué et du champ démagnétisant. La composante d'aimantation parallèle au plan de la couche reste colinéaire à la direction du champ pour minimiser l'énergie Zeeman

$$- \int \vec{M}_\parallel \cdot \vec{H} d^3\vec{r} \quad (5.16)$$

Le plan de rotation de l'aimantation est donc défini par la direction du champ magnétique et la normale à la surface. C'est pour cela que les domaines s'orientent dans la direction du champ magnétique. Notons sur la figure 5.19a que des contrastes blancs s'arrêtent au milieu de l'image dans un fond noir formant ainsi ce que nous appellerons, dans la suite de cette thèse, une dislocation magnétique par analogie avec les dislocations mécaniques. Ce fait confirme bien que les contrastes mesurés sont localisés sur des domaines magnétiques car une paroi magnétique ne peut pas présenter une telle singularité, elle doit se refermer sur elle-même, intercepter un bord d'échantillon ou se connecter à une autre paroi.

Une structure en bandes a également été observée dans l'état rémanent planaire. Cependant, les bandes sont moins bien définies et sont très irrégulières. Il peut même y avoir coexistence de bulles et de bandes qui sont toujours orientées dans la direction du champ qui a saturé l'aimantation. Lorsque le champ magnétique est coupé, l'aimantation subit une rotation cohérente qui l'amène perpendiculairement à la couche. Cependant, dès les premiers instants de la rotation, la directivité du champ magnétique disparaît ce qui permet à l'aimantation d'avoir également une rotation dans le plan de la couche induite par des défauts ou par une contribution planaire d'anisotropie d'ordre

supérieure. Cette rotation planaire entraîne des interconnexions entre les bandes et peut même entraîner la formation de bulles.

Pour comprendre la formation de la structure en forme de labyrinthe, nous avons entrepris une série de désaimantations où nous avons fait varier l'angle entre le champ magnétique et le plan de la couche. Nous avons choisi d'étudier des structures obtenues après désaimantation car elles présentent les domaines les plus « propres » c'est à dire sans défauts magnétiques qui compliquent l'interprétation des images MFM. Nous savons déjà que lorsque le champ est appliqué dans le plan de la couche, des bandes magnétiques orientées dans la direction du champ appliqué sont créées. Lorsque l'angle est amené à 45° , nous constatons sur la figure 5.20a que les bandes commencent à onduler pour former des zig zag lorsque cet angle est égal 85° (figure 5.20b). Au niveau des angles vifs des zig zag, des défauts magnétiques sous forme de Y commencent à apparaître. Ces derniers se propagent pour donner naissance à la structure sous forme de labyrinthe lorsque l'angle approche 90° .

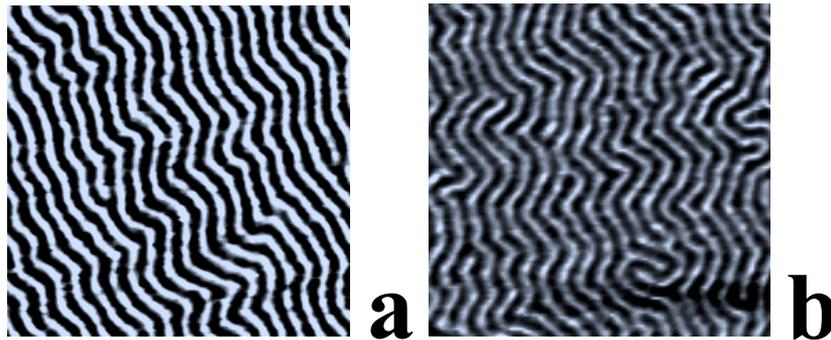


figure 5.20 : images MFM obtenues dans un état démagnétisé pour une couche de 500 nm d'épaisseur. L'angle entre le champ de désaimantation et le plan de la couche varie entre 45° (a) et 85° (b).

L'interprétation de la formation du labyrinthe réside dans la diminution de la composante planaire du champ. En effet, nous avons vu que pour minimiser son énergie Zeeman, la composante planaire d'aimantation s'oriente dans la direction du champ appliqué. Cependant, l'intensité de cette anisotropie magnétique planaire induite est liée à la composante planaire du champ par

$$- \int \vec{M}_{//} \cdot \vec{H}_{//} d^3\vec{r} \quad (5.17)$$

Lorsque nous diminuons $\vec{H}_{//}$ en augmentant l'angle entre le champ et le plan de la couche, nous restaurons l'isotropie magnétique planaire de la couche. La formation de connexions interbandes sous forme de Y est alors possible ainsi que la formation d'un labyrinthe.

Finalement, nous avons essayé de trouver quel était le mécanisme de passage d'une structure en bulles à une structure en bandes. Pour cela, nous avons entrepris une série de désaimantations avec le champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan de la couche où le champ est stoppé avant que sa valeur soit nulle. La valeur du champ suit une sinusoïde amortie puis, à une certaine valeur de champ \tilde{H} , elle est brusquement amenée à zéro. Nous savons déjà que lorsque \tilde{H} est proche du champ de saturation, la structure en domaines est constituée de bulles. Plus \tilde{H} devient proche de zéro, plus les bulles s'allongent comme nous pouvons le voir sur la figure 5.21 pour des valeurs de \tilde{H} égales à 13 (a) et 12 (b) kOe. Il semblerait donc que les bulles s'interconnectent pour former tout d'abord des bandes de plus en plus longues, puis des structures sous forme de Y. Nous montrerons un peu plus loin les mécanismes de transformation d'une structure de bandes en bulles.

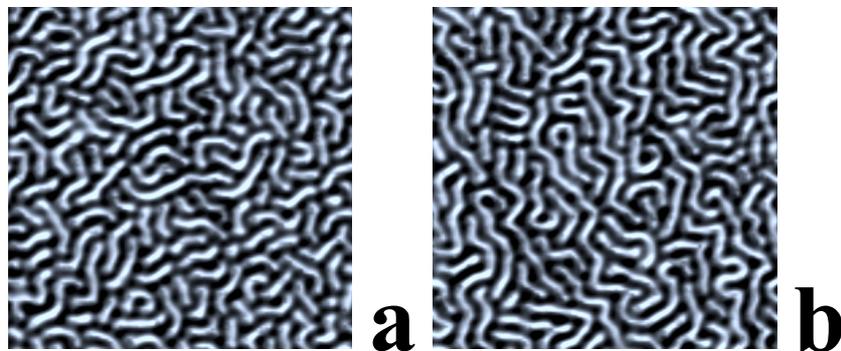


figure 5.21 : images MFM obtenues dans un état démagnétisé avec un arrêt pour un champ \tilde{H} égal à 13 kOe (a) et 12 kOe (b). Résultats pour une couche de 500 nm d'épaisseur.

La dernière question à laquelle il nous faut apporter des éléments de réponse concerne la structure rémanente en bulles. En effet, des travaux sur des monocristaux de grenats ont montré que la structure rémanente stable était constituée d'un labyrinthe [Moh 87] mais qu'une structure en bulles pouvait être obtenue dans des conditions bien particulières à l'aide d'un champ pulsé [Nem 69]. Pour cela, nous avons regardé la structure en domaines dans le cas d'un champ de saturation égal à 15 kOe et 80 kOe (figure 5.22). Dans le premier cas, nous retrouvons nos bulles telles qu'elles ont été décrites auparavant. Cependant, pour les échantillons saturés à 80 kOe, nous constatons que les bulles sont deux à trois fois plus allongées. L'interprétation de cet effet repose sur l'hypothèse des domaines résiduels utilisée pour l'explication de la courbe d'aimantation perpendiculaire. La densité de ces domaines doit raisonnablement diminuer lorsque la valeur du champ maximum appliqué augmente. Ainsi, à 80 kOe, la densité de domaines est plus faible qu'à 15 kOe et donc, lorsque le champ magnétique est ramené à zéro, la place disponible pour chaque domaine pour s'étendre est plus grande. C'est pour cela que les bulles sont d'autant plus longues que le champ maximum appliqué est plus grand. On peut penser que pour un champ infini, il n'y aura plus de domaines résiduels. Une seule bulle sera alors nucléée et cette dernière se transformera en une structure

labyrinthe par déformation elliptique. On retrouvera alors les résultats obtenus sur les monocristaux de grenats.

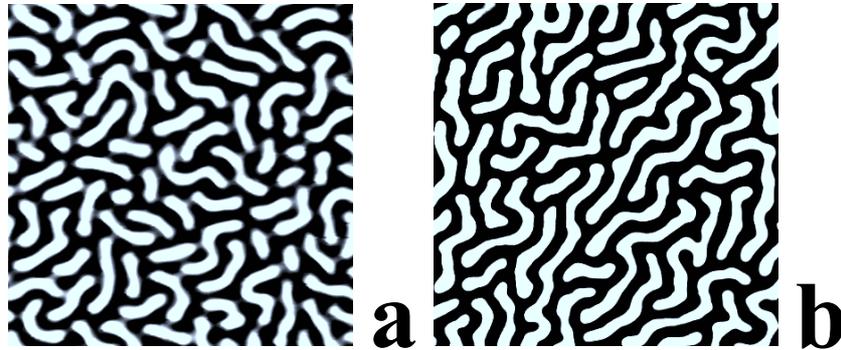


figure 5.22 : images MFM obtenues dans un état rémanent après avoir appliqué un champ perpendiculaire de 15 (a) et 80 (b) kOe.

1.3. Variation de la taille des domaines avec l'épaisseur du film

Ayant constaté que la période des domaines était indépendante de l'état magnétique de l'échantillon sauf dans le cas d'une structure en bulle où il est difficile d'en définir une, nous avons mesuré la période des domaines en fonction de l'épaisseur du film à partir des images MFM. La période des domaines augmente avec l'épaisseur du film et suit une loi de variation proportionnelle à la racine carrée de l'épaisseur du film comme nous pouvons le voir en trait plein sur la figure 5.23.

Une loi de variation théorique de la période des domaines avec l'épaisseur du film a été obtenue par Kittel pour des films très épais. Elle a été adaptée pour toutes les épaisseurs par Kooy et Enz (Annexe B). Le carré de la période des domaines est alors égal à

$$L^2 = \frac{2\pi^2 h \sigma_w (1 + \sqrt{\mu})}{16\epsilon M_s^2} \quad (5.18)$$

où $\mu = 1 + 2\pi M_s^2 / K$, ϵ est un facteur numérique qui dépend de μ , de l'épaisseur du film h et de la période des domaines L .

Nous avons montré que la variation de ϵ avec l'épaisseur du film était inférieure à 1%, c'est pourquoi ϵ a été considéré comme étant constant et égal à sa valeur moyenne 1.05. A partir de l'interpolation de la courbe, l'énergie de paroi a été évaluée à $\sigma_w = 25 \pm 3 \text{ erg-cm}^{-2}$. Cette valeur est beaucoup plus grande que celle que nous avons obtenue à partir des champs de nucléation et saturation perpendiculaires.

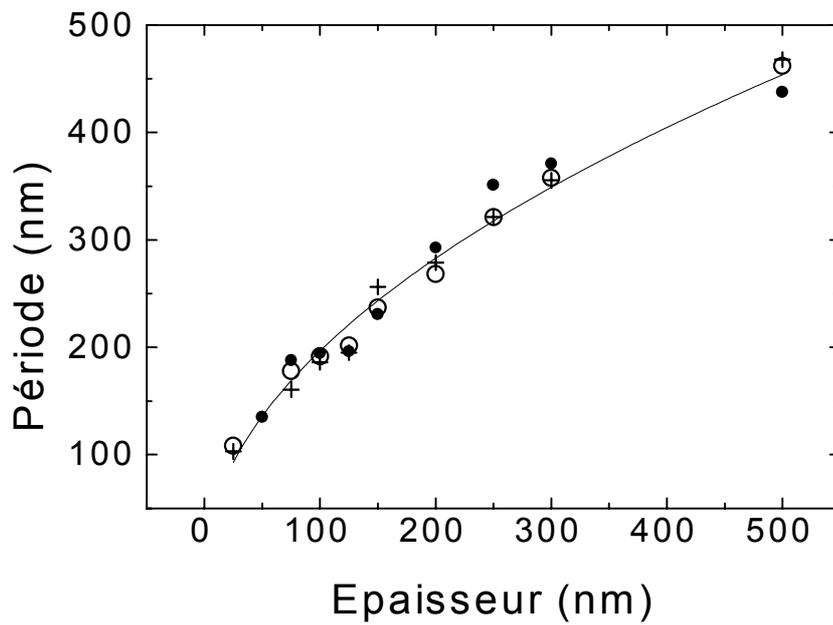


figure 5.23 : variation de la période des domaines en fonction de l'épaisseur du film dans l'état démagnétisé parallèle (O), démagnétisé perpendiculaire (●) et rémanent parallèle (+).

1.4. Variation de l'énergie de paroi avec le champ magnétique

Comme nous venons de le voir, l'énergie de paroi passe de 25 erg.cm^{-2} en champ nul à 8.7 erg.cm^{-2} pour des champs proches de la saturation. Généralement, il est admis que les énergies de paroi varient de 10% en fonction du champ magnétique appliqué [VDB 95]. Il est donc impossible qu'une telle variation soit uniquement due à la compression magnétique de la paroi. Cependant, un changement de sa structure interne, c'est à dire un passage d'une paroi de type Néel à une paroi de type Bloch, peut faire apparaître une forte variation d'énergie.

En effet, comme nous l'avons omis tout au long de cette étude, il est fort probable qu'au niveau des surfaces de la couche la paroi de Bloch séparant deux domaines d'aimantation opposée se transforme en une paroi de Néel afin d'éviter la formation de charges de surface [Lab 92, Fer 96b]. Lorsqu'un champ est appliqué perpendiculairement à la couche, son effet s'ajoute à l'anisotropie magnétocristalline de l'échantillon et entraîne une réorientation de l'aimantation du domaine de fermeture perpendiculairement à la surface faisant ainsi disparaître la paroi de Néel. Les énergies de paroi mesurées à bas et haut champ ne sont pas nécessairement invraisemblables. Près de la saturation, il ne subsistera dans la couche que des domaines de type Bloch et c'est pourquoi l'énergie de paroi mesurée est en bon accord avec celle du matériau massif. En champ nul, l'introduction d'une composante Néel augmente l'énergie de paroi qui peut alors atteindre des valeurs comprises entre 20 erg.cm^{-2} [Lab 92] et 35 erg.cm^{-2} [Fer 96b].

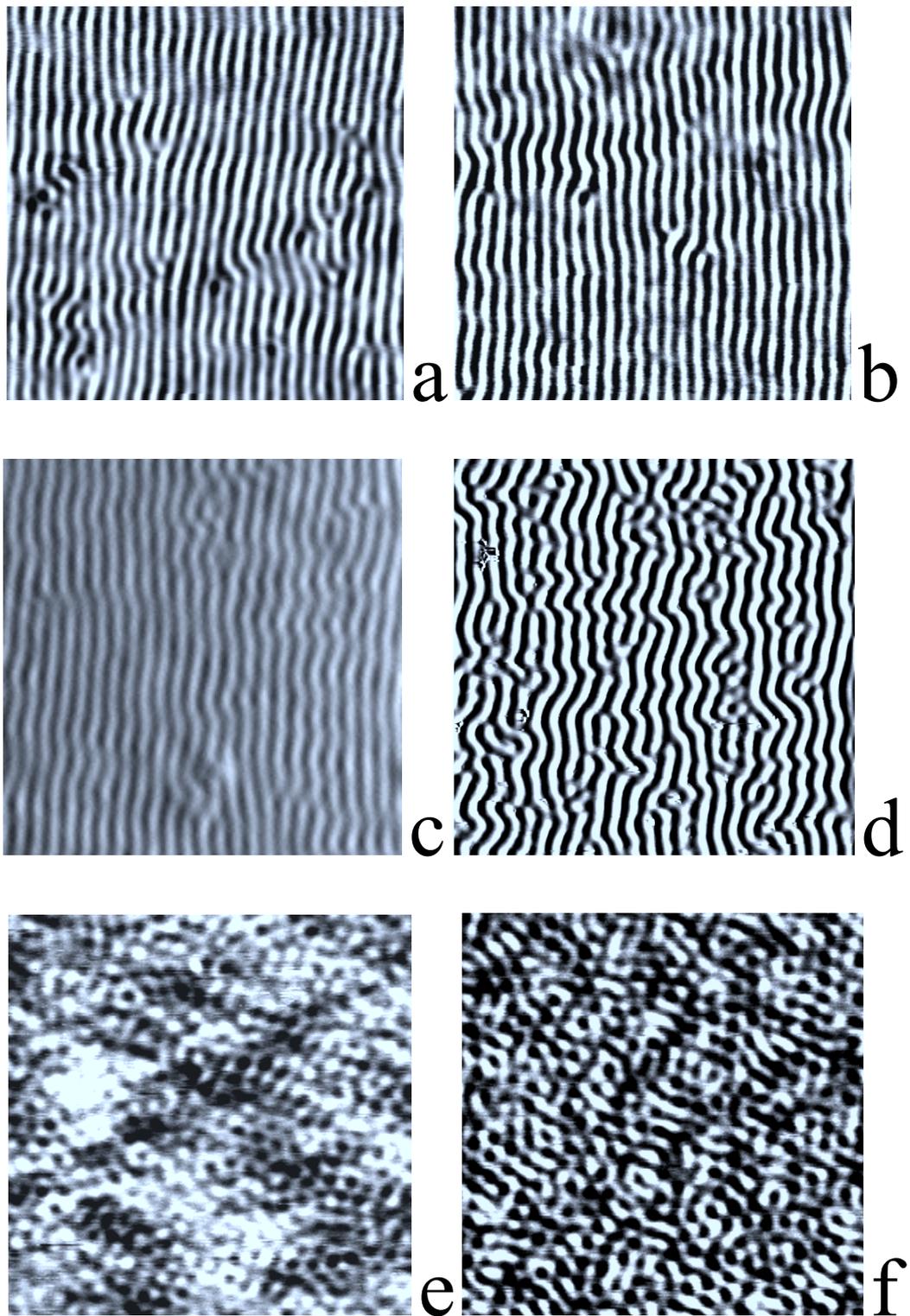


figure 5.24 : images MFM obtenues en champ appliqué nul pour une couche de 100 nm d'épaisseur après avoir appliqué un champ perpendiculaire de 5 kOe (a), 6 kOe (b), 7 kOe (c), 8 kOe (d), 10 kOe (e) et 12 kOe (f). La taille de chaque image est égale à $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$.

2. PREMIERE AIMANTATION : INSTABILITE DES DOMAINES

Dans l'ensemble des résultats présentés, nous avons essayé de décrire les structures de domaines pouvant exister dans une couche de cobalt tout en essayant de comprendre comment l'on pouvait passer de l'une à l'autre sur le cycle d'hystérésis. Dans ce qui suit, nous allons voir l'évolution de la structure des domaines sur la courbe de première aimantation.

2.1. Expérimentation

Partant d'un état désaimanté avec le champ appliqué dans le plan de la couche, nous regardons l'évolution de l'état rémanent en fonction du champ perpendiculaire maximum appliqué. L'ensemble de cette étude a été réalisé sur une couche de 100 nm d'épaisseur (figure 5.24).

En partant d'un état désaimanté sous forme de bandes et en appliquant des champs perpendiculaires inférieurs à 7 kOe, la structure en domaines observée est identique à celle observée après désaimantation. Pourtant, à 7 kOe, les bandes commencent à onduler. Puis à 8 kOe, en plus de l'amplification des ondulations, il apparaît des bulles qui ne peuvent provenir que de la segmentation des bandes. Plus le champ maximum appliqué devient grand, plus la segmentation des bandes devient visible à tel point qu'à 9 kOe, les bandes se sont totalement transformées en bulles allongées. Sur les images obtenues après une aimantation à 10 et 12 kOe, on peut même trouver des bulles disposées en réseaux hexagonaux qui est la distribution spatiale la moins coûteuse en énergie [Cap 71].

2.2. Interprétations

L'interprétation de ces images repose sur l'évolution des transformées de Fourier bidimensionnelles (TF) en fonction du champ appliqué. Les images obtenues dans cette étude représentent l'amplitude de la composante de Fourier en fonction de k_x et k_y qui sont les vecteurs d'onde selon x et y respectivement, y étant parallèle à la direction du champ. Comme nous venons de le voir, l'image MFM après désaimantation est constituée de bandes allongées dans la direction du champ appliqué lors de la désaimantation. Le motif n'est pas parfait c'est à dire que l'on observe des dislocations magnétiques analogues aux dislocations mécaniques que l'on peut observer dans des cristaux.

L'apparition de ces défauts magnétiques peut être attribuée à des défauts de structure (rugosité de surface, défaut cristallin...) mais aussi à un angle non nul entre la direction du champ de désaimantation et le plan de la couche. La transformée de Fourier présente deux taches selon l'axe des vecteurs d'onde k_x qui sont symétriques par rapport à l'axe des k_y (image similaire à la figure 5.25b).

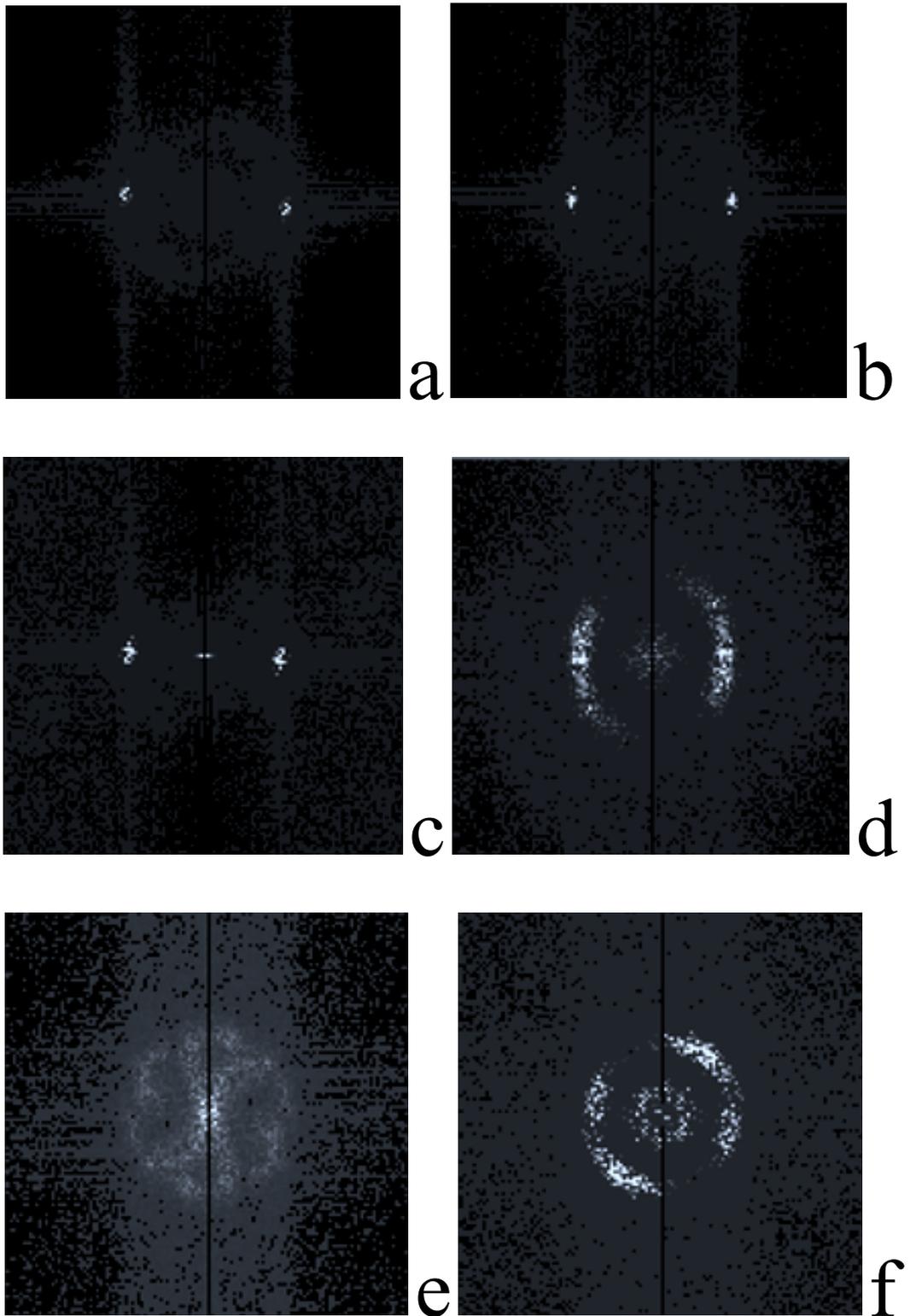


figure 5.25 : transformées de Fourier bidimensionnelles des images MFM mesurées en champ appliqué nul pour une couche de 100 nm d'épaisseur après avoir appliqué un champ perpendiculaire de 5 kOe (a), 6 kOe (b), 7 kOe (c), 8 kOe (d), 10 kOe (e) et 12 kOe (f).

Le vecteur d'onde de la modulation des bandes n'a donc qu'une seule composante appelée longitudinale car elle est orthogonale aux bandes de l'espace direct. Cette composante est inversement proportionnelle à la période des domaines qui est estimée à 210 nm.

Lorsque le champ appliqué n'excède pas 7 kOe, nous voyons que les TF continuent à être formées de deux taches symétriques par rapport à l'origine des k . En fait, il y a un léger angle entre la droite passant par les points et l'axe des k_x . Ce dernier est dû au fait que les bandes ne sont pas parallèles aux côtés de l'image ce qui entraîne l'apparition d'une composante k_y non nulle.

Lorsque le champ appliqué est égal à 7 kOe, il apparaît des ondulations dans les bandes. Ces ondulations entraînent l'apparition d'une composante de Fourier non nulle dans la direction des bandes c'est à dire selon k_y . Les taches, qui étaient localisées uniquement sur l'axe des k_x , s'étendent maintenant également selon k_y . De plus, des taches commencent à apparaître à l'origine des k . Elles traduisent la création d'une structure à grande périodicité. L'apparition des ondulations se confirme pour un champ de 8 kOe. Les bandes deviennent plus courtes, ondulent et peuvent même se segmenter en bulles. La distribution des composantes selon k_y s'accroît et devient indiscutable.

Nous constatons également que sur la série d'images que nous venons de discuter, la densité des dislocations a fortement chuté. Cette disparition ainsi que l'apparition des ondulations en champ nul sont liées l'une à l'autre comme nous allons le voir. Le rôle joué par les dislocations dans l'évolution de la structure en domaines est prépondérant. En effet, lorsque l'on applique un champ magnétique perpendiculairement à une couche dans le sens opposé à un domaine se terminant par une dislocation, un couple s'exerce sur les moments magnétiques qui composent la paroi de Bloch délimitant le domaine. Ce couple tend à aligner ces moments dans la direction du champ ce qui se traduit par un déplacement de la paroi et donc à un rétrécissement du domaine à aimantation opposée au champ appliqué. A terme, cette propagation entraîne la disparition du domaine par propagation de la dislocation jusqu'au bord de l'échantillon.

Lorsque le champ est ramené à zéro pour faire l'acquisition de l'image, la ou les dislocations disparues ne sont plus recréées. Ainsi, la période des bandes devrait devenir plus grande que celle mesurée après désaimantation. C'est alors que les bandes commencent à onduler comme cela a été décrit dans [Seu 92] pour maintenir la période des bandes selon l'axe k_x . La composante k_y est d'autant plus grande que le nombre de dislocations disparues est grand et donc que le champ maximum appliqué est grand. C'est pourquoi les ondulations s'amplifient lorsque la valeur du champ devient grande.

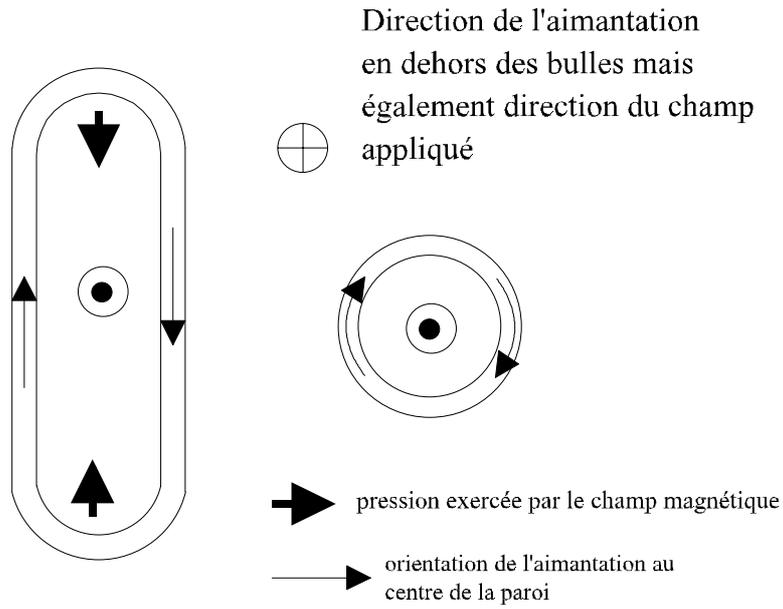


figure 5.26 : formation d'une bulle par rétrécissement d'un domaine.

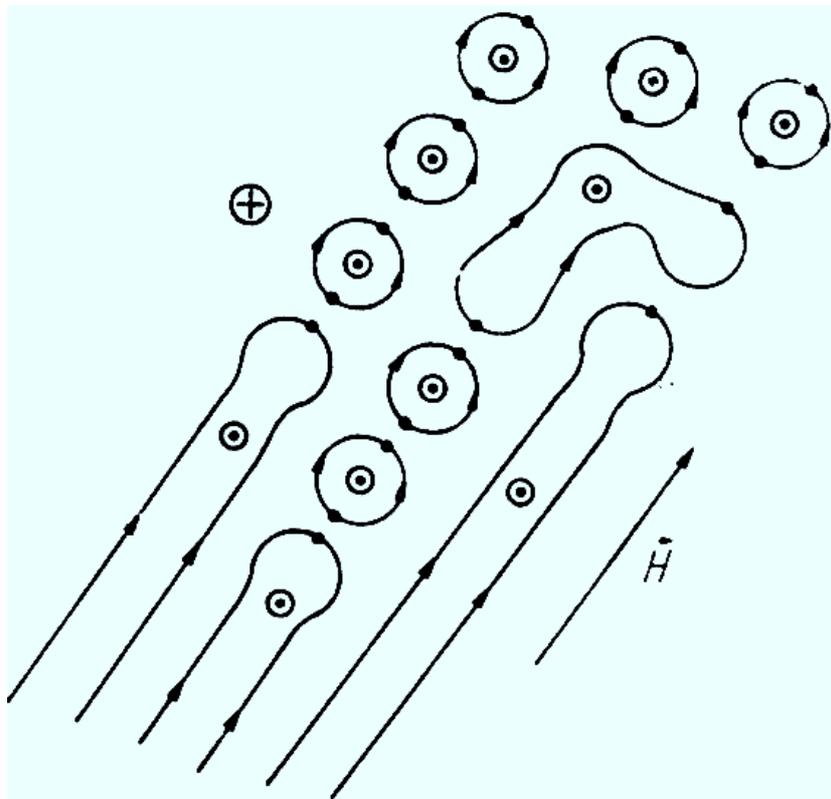


figure 5.27 : formation d'une bulle par pincement d'un domaine.

Un nouveau phénomène apparaît pour des champs appliqués supérieurs à 10 kOe pour lesquels des bandes se transforment en bulles qui ont tendance à se regrouper sous forme d'hexagones comme nous pouvons le voir sur la figure 5.25e. Deux types de mécanisme sont à l'origine de cette transformation et ont été mis en évidence par Grundy [Gru 72] et Shimada [Shi 73]. Ils dépendent de l'orientation de l'aimantation au centre des parois. Le premier a déjà été décrit. Il est dû au mouvement des parois sous l'action d'un champ magnétique dans le cas de parois adjacentes d'aimantation de centre de paroi opposée : le mouvement des extrémités du domaine entraîne la formation d'une bulle dont la paroi est constituée d'une paroi de Bloch pure (figure 5.26). Le second se produit lorsque les aimantations de centre de paroi de parois adjacentes sont de même sens. Le pincement d'un domaine entraîne la formation d'une bulle qui contient deux lignes de Bloch (figure 5.27)

3. APPLICATION D'UN CHAMP PERPENDICULAIRE IN-SITU : STRUCTURE AUTOUR DU CHAMP COERCITIF

A la lueur de l'ensemble des résultats qui ont été présentés dans les précédents paragraphes, nous avons compris les différents processus qui permettent de passer d'une structure de bulles blanches à une structure en labyrinthe blanc ou en bandes blanches. Il nous reste maintenant à comprendre quels sont les mécanismes qui permettent de passer d'une structure de bulles blanches à une structure de bulles noires.

Pour cela, nous avons étudié la configuration des domaines pour des champs appliqués proches du champ coercitif. C'est là où l'aimantation change de signe et donc là où il peut y avoir une inversion du contraste des domaines. Juste au dessous de l'échantillon, nous avons mis en place une petite bobine en cuivre dont le flux est canalisé par un noyau de fer doux. Cette dernière, alimentée en courant continu, permet d'obtenir des champs magnétiques de ± 500 Oe au niveau de l'échantillon sans dégagement de chaleur. Etant donné que le champ coercitif est de l'ordre de 200 Oe, cette bobine est idéale pour cette étude.

Lorsqu'une telle étude est entreprise, il faut pouvoir décorrélérer les changements de contraste liés à la pointe de ceux liés à l'échantillon. Tout d'abord, lorsqu'un champ magnétique est appliqué sur la pointe, son point de fonctionnement change en l'absence de correction. Nous avons donc toujours pris garde à ce que la fréquence de conduite et donc le signe de la pente de la courbe de résonance au point de fonctionnement ne change pas. Ainsi, comme nous pouvons le voir à partir de l'équation (4.14b), il n'y aura pas de changement de contraste lié à une inversion de signe de la pente. Puis, une attention particulière doit être portée à la possibilité de retournement de l'aimantation de la pointe qui entraînerait également une inversion du contraste magnétique. Pour cela, nous avons réalisé une expérience pour laquelle la configuration est décrite dans la figure 5.28.

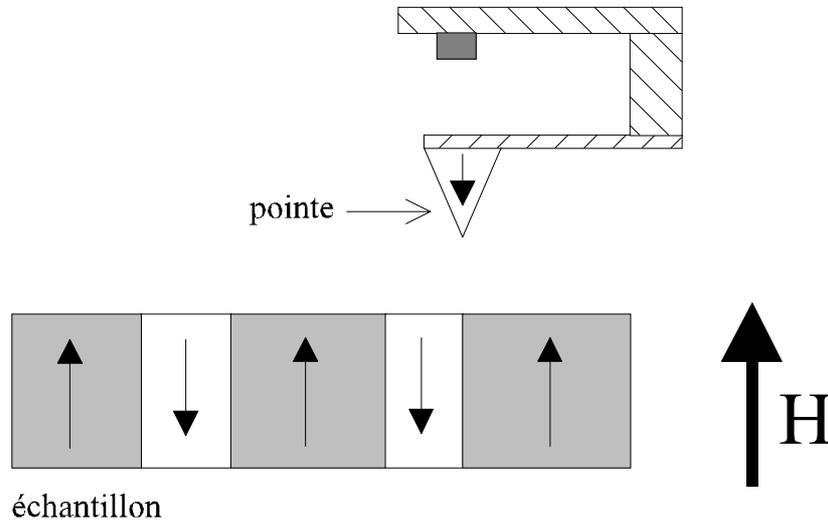


figure 5.28 : configuration magnétique de la pointe et de l'échantillon dans l'étude de l'effet induit par le retournement de l'aimantation de la pointe sur le contraste de l'image MFM.

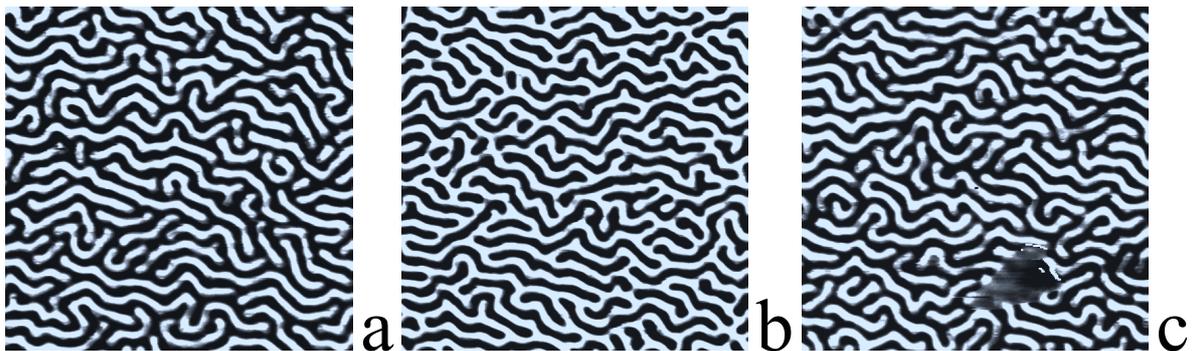


figure 5.29 : mise en évidence du retournement de l'aimantation de la pointe à cause du champ magnétique appliqué. Le contraste magnétique de l'état rémanent perpendiculaire (a) s'inverse pour un champ de 220 Oe (b) et se maintient en champ nul. Lors de la réaimantation de la pointe (c) le contraste s'inverse à nouveau montrant que l'aimantation de la pointe s'était retournée.

Après avoir appliqué un champ magnétique de +12 kOe en perpendiculaire suivant l'axe z positif, l'échantillon est observé avec une pointe dont l'aimantation est orientée selon l'axe z négatif. Les contrastes blancs sont, sans ambiguïté, dus à des domaines dont l'aimantation est orientée suivant -z car c'est le contraste noir qui prédomine et que la rémanence est positive (figure 5.29a). Nous avons alors appliqué *in situ* un champ positif de 220 Oe et nous avons observé un changement de contraste des domaines comme nous pouvons le voir sur la figure 5.29b. Ce dernier ne peut pas être dû à un renversement des domaines car, pour des champs appliqués positifs, le contraste noir devrait être accentué. Cette inversion de contraste persiste même lorsque le champ appliqué est réduit à zéro. L'aimantation de la pointe s'est donc inversée et le reste car elle était orientée dans la direction opposée au champ. Cette inversion est confirmée lorsque nous avons réaimanté la pointe dans la direction -z et que nous avons refait l'acquisition d'une image en champ nul (figure 5.29c). Le contraste était à nouveau identique à celui obtenu tout au début de l'expérience. Dans la suite, pour éviter les artefacts liés aux effets de renversement de pointe, nous avons toujours aimanté la pointe dans la direction du champ appliqué. Cette technique est d'ailleurs parfois utilisée pour augmenter le contraste en MFM et pour s'assurer que l'aimantation de la pointe n'est pas perturbée par le champ de fuite de l'échantillon.

Cette étude, réalisée avec une pointe douce de faible aimantation à saturation, a été reproduite pour une pointe dure de forte aimantation à saturation. Dans ce cas, nous n'avons pas observé de retournement de la pointe pour des champs compris entre ± 500 Oe. Dans la suite de l'étude sous champ magnétique, nous avons toujours utilisé une pointe dure pour pouvoir acquérir des images pour toutes les valeurs de champ à un même emplacement de l'échantillon.

Nous partons donc d'une structure en bulles blanches telle qu'elle a été obtenue après avoir appliqué un champ de +12kOe en perpendiculaire et nous appliquons un champ magnétique négatif à l'aide de la petite bobine, orienté dans le même sens que l'aimantation de la pointe. En prenant toujours garde que la fréquence de conduite ne change pas, nous obtenons à -400 Oe des bulles noires sur un fond blanc.

Même s'il est difficile de dire s'il y a coexistence d'une rotation cohérente d'aimantation et d'un déplacement de parois, autour du champ coercitif, le passage d'une structure de bulles blanches à noires se fait de manière continue sans qu'il y ait disparition ou apparition brutale de l'une ou l'autre des espèces (figure 5.30).

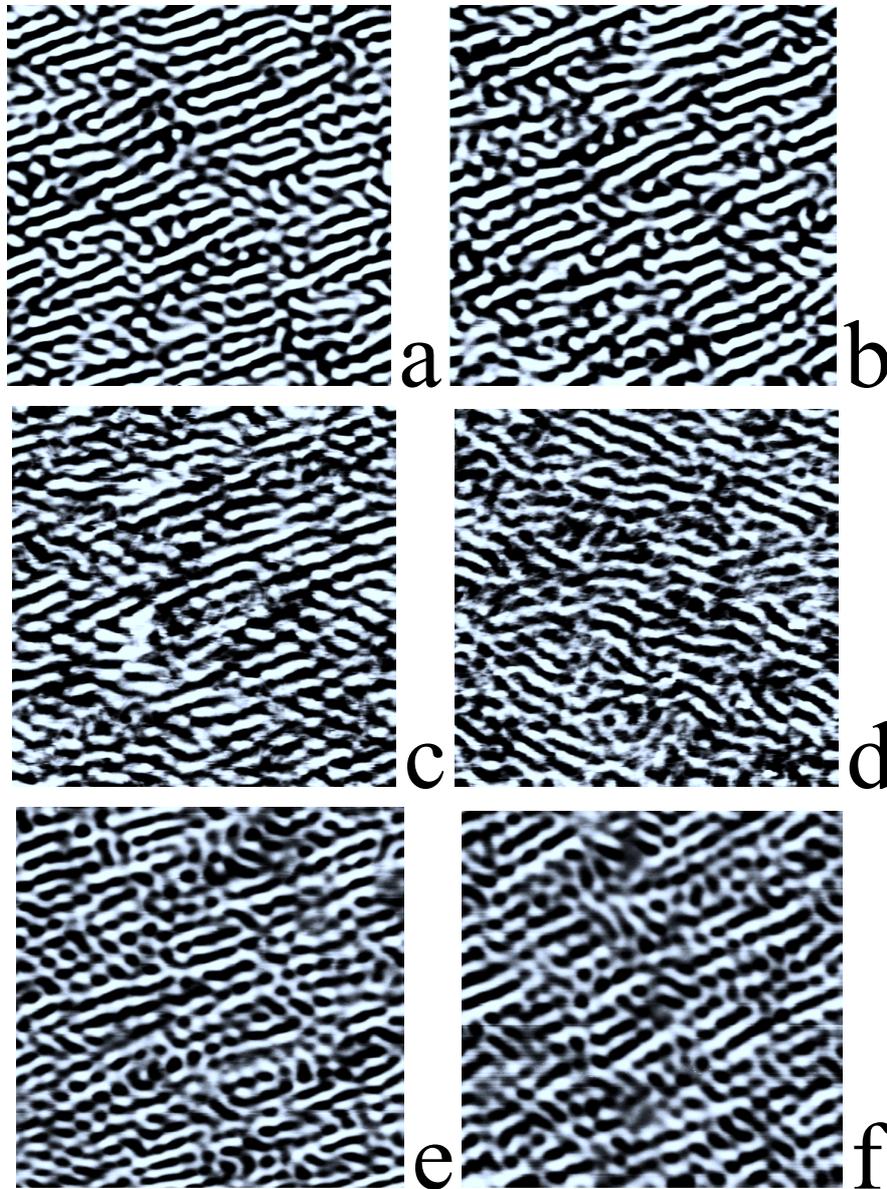


figure 5.30 : variation de la structure en domaines avec un champ appliqué in situ égal à (a) 200 Oe (b) 100 Oe (c) -60 Oe (d) -100 Oe (e) -300 Oe (f) -400 Oe

4. INFLUENCE DE LA TEMPERATURE SUR LA STRUCTURE EN DOMAINES

Finalement, nous avons étudié l'évolution de ces structures en domaines en fonction de la température. En effet, des calculs réalisés par Garel [Gar 82] ont montré que l'existence des bulles et des bandes dans un matériau dépendait à la fois du champ magnétique appliqué mais également de la température du système selon le diagramme de phase représenté dans la figure 5.31. La température de transition d'une structure à l'autre dépend du champ appliqué. Dans notre cas, il faut que la température soit proche de la température de Curie, égale à 1130°K, pour espérer voir la transition.

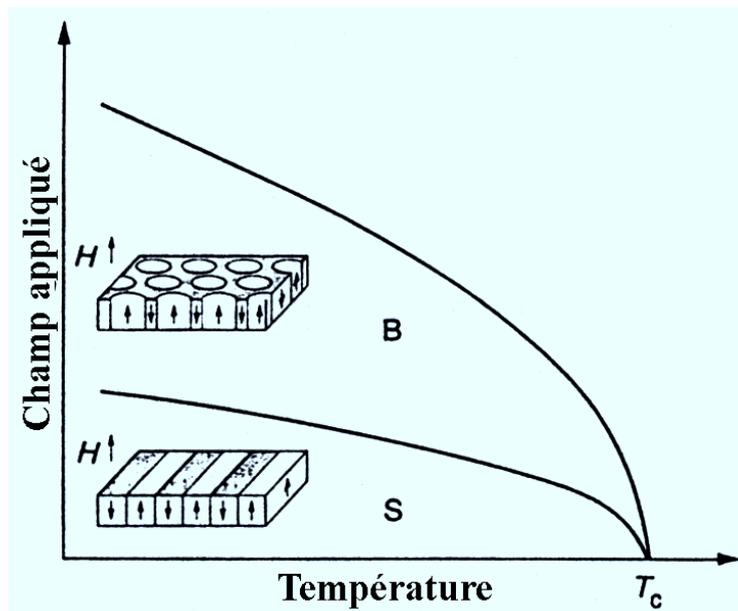


figure 5.31 : diagramme de phase calculé par Garel et Doniach dans un modèle d'Ising [Gar 82]

Malheureusement une telle température ne peut être atteinte que difficilement et dans une atmosphère d'azote pour éviter l'évaporation du cobalt. Nous nous sommes alors contentés d'étudier l'évolution de la taille des domaines avec la température. Une étude semblable avait été réalisée par Grundy [Gru 66] à l'aide d'un microscope en transmission. Il avait montré qu'il y avait une légère diminution de la taille des domaines lorsque la température augmentait. C'est pour cela que nous avons placé en dessous de l'échantillon un élément peltier d'encombrement minimum qui permet d'atteindre des températures de l'ordre de 150°C [Dem 96].

Les résultats obtenus sur la structure en bande, qui est énergétiquement la plus stable [Tom 84], ne montrent aucune évolution de la taille ou de la forme des domaines pour des températures comprises entre 30 et 100°C. Suite à ces résultats, nous avons décidé de recommencer ces expériences avec la structure la moins stable, celle qui est composée de bulles. La superposition de

deux images obtenues à 40 et 80°C montre bien qu'il y a un changement dans l'image mesurée (figure 5.32). Les niveaux noirs et blancs correspondent aux parties communes des deux images alors que les niveaux de gris font apparaître les différences. Cependant, nous ne savons pas à quoi attribuer ce changement. D'une part, nous avons vu lors de l'expérience que, sous la chaleur émise par le peltier, le cantilever était soumis à une torsion latérale. La pointe n'étant plus perpendiculaire à la surface de l'échantillon peut devenir sensible à une composante planaire d'aimantation. D'autre part, l'aimantation de la pointe peut changer avec la température comme cela a été le cas lorsqu'elle était soumise à un champ magnétique. A l'heure actuelle, nous sommes donc incapables de dire si la température affecte la structure en domaines sous forme de bulles.



figure 5.32 : superposition des images obtenues à 40 et 80°C.

5. CONSEQUENCES ET UTILISATION DE LA STRUCTURE EN DOMAINES

Nous avons montré tout au long de ce chapitre que, pour une épaisseur de couche de cobalt supérieure à 50 nm et une histoire magnétique donnée, nous étions capables de connaître avec exactitude les champs caractéristiques des courbes d'aimantation ainsi que la structure en domaines. De plus, nous avons pu extrapoler le comportement dynamique des domaines à la base de mesures d'états rémanents en l'absence de champ magnétique appliqué. Il apparaît donc que ces couches sont des systèmes modèles qui vont nous permettre d'étudier des phénomènes physiques liés à ces structures en domaines très particulières.

Dans ce paragraphe, seulement trois exemples seront présentés même si la potentialité des propriétés magnétiques des couches de cobalt sont bien plus étendues. En effet, de nouveaux projets sont à l'étude et ils nous permettront d'introduire des effets magnétiques localisés dans les semi-

conducteurs et de mettre à jour le lien intime entre les propriétés électriques des cristaux liquides et magnétiques des domaines dans le cobalt.

5.1. Effets de la nanostructuration sur la distribution des domaines

Ce thème sera développé tout au long du chapitre suivant. Il consiste à observer l'évolution des propriétés magnétiques des couches de cobalt lorsque leur taille latérale est réduite. Les effets induits sur le magnétisme technique sont alors liés à la diminution et l'augmentation du champ démagnétisant perpendiculaire et parallèle respectivement. L'orientation des domaines est également fortement corrélée à cette réduction de taille comme le montrera l'analyse des propriétés microscopiques par microscopie de force magnétique.

5.2. Mise en évidence de la magnéto-résistance dépendante du spin

Lorsque nous regardons une image MFM obtenue après désaimantation planaire (figure 5.33), nous ne pouvons nous empêcher de penser à une vue en coupe d'une multicouche magnétique. En microscopie électronique en transmission, les contrastes blancs correspondraient à la couche de cobalt et les contrastes noirs à celle de ruthénium [Mic 95].

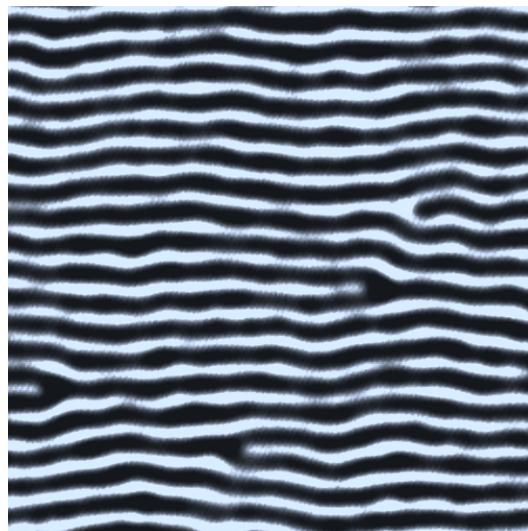


figure 5.33 : image MFM obtenue après désaimantation planaire pour une couche de 200 nm d'épaisseur.

Nous pouvons alors nous demander si une couche de cobalt unique pourrait présenter de la magnéto-résistance dépendante du spin. En fait, par rapport à une multicouche magnétique où deux couches magnétiques successives séparées par une couche non magnétique sont couplées antiferromagnétiquement, deux domaines successifs possèdent bien des aimantations antiparallèles

multicouches magnétiques / domaines magnétiques

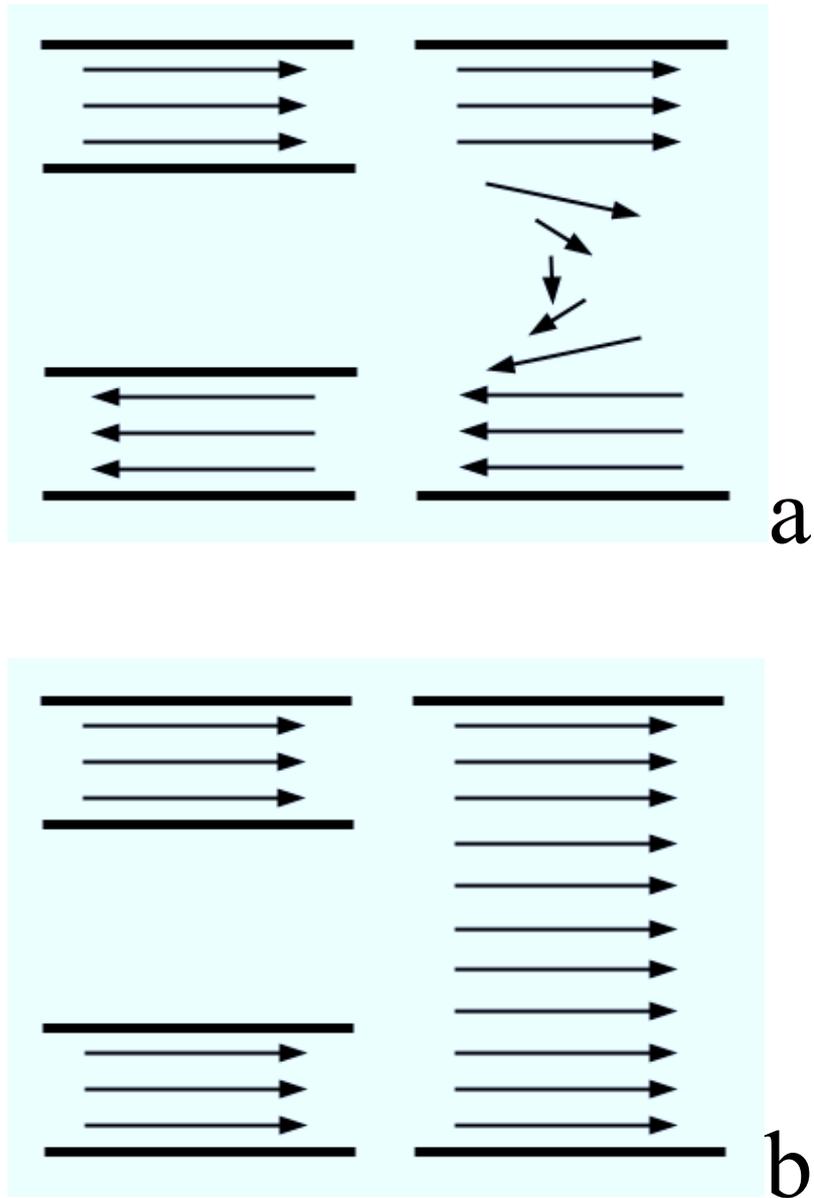


figure 5.34 : configuration des moments magnétiques dans le cas d'une multicouche de type « valve de spin » et d'une couche de cobalt pour un champ appliqué nul (a) et à la saturation (b).

mais sont séparés par une paroi de domaine (figure 5.34a). Lorsqu'un champ est appliqué, l'aimantation du domaine orientée dans le sens opposé au champ se retourne pour présenter à la saturation une configuration d'aimantation semblable à celle de la multicouche saturée (figure 5.34b). Si l'information magnétique transportée par l'électron peut être transmise à travers la paroi en étant peu ou pas altérée, il est possible d'avoir un effet de magnétorésistance géante. De plus, dans le cas des couches de cobalt, ces effets sont maximum car nous nous trouvons dans la géométrie CPP : le courant est appliqué dans le plan de la couche et perpendiculairement aux domaines.

Etant donné que la magnétorésistance, tout comme pour les multicouches magnétiques, est due essentiellement aux interfaces, la densité des parois doit être grande et donc la taille des domaines petite pour avoir un effet mesurable. Dans le cas contraire, les signaux sont de très faible amplitude [Vir 96]. Dans le cas des couches de cobalt à l'étude, la taille des domaines est de l'ordre de 90 nm qui est bien plus faible que celle d'une couche mince à aimantation planaire estimée à 1 μm . En plus, dans la géométrie CPP, il n'y a pas d'effet de magnétorésistance anisotrope dont il faut s'affranchir [Vir 96] et les effets induits par l'effet Hall anormal peuvent être évités en prenant garde à la position des électrodes de mesure sur l'échantillon. Un dernier atout de ces couches de cobalt est la connaissance de la structure en domaine magnétique en fonction du champ appliqué. Comme nous allons le voir, les courbes de magnétorésistance peuvent s'expliquer de manière simple à l'aide des changements de configuration des domaines induits par le champ magnétique appliqué.

Dans la figure 5.35, nous montrons le résultat d'une mesure de magnétorésistance réalisée sur une couche de 100 nm d'épaisseur en partant d'un état démagnétisé sous forme de bandes. Le courant est appliqué perpendiculairement aux bandes et le champ est appliqué perpendiculairement au plan de la couche. Nous voyons que, pour des champs inférieurs à 7 kOe, la résistance varie peu avec le champ appliqué. Elle augmente légèrement mais cet effet est dû à la trajectoire cyclotron des électrons soumis au champ magnétique. Elle augmente la probabilité de collision entre électrons et donc la résistance. La résistance de paroi ne change pas car nous avons vu que pour des champs magnétiques inférieurs à 7 kOe, il n'y avait pas ou peu de disparition de paroi de domaine. Puis, la résistance chute lorsque le champ est supérieur à 7 kOe. Cette chute est attribuée tout d'abord à la disparition des domaines qui forment les dislocations magnétiques à cause de la pression qui s'exerce sur la paroi comme cela est décrit au paragraphe C.2, puis à la segmentation des bandes en bulles et la disparition progressive des bulles. Nous constatons qu'il n'y a pas de saturation de la résistance car, même pour des champs très élevés, des bulles résiduelles restent coincées sur des défauts de la couche. Ceci est une seconde évidence de l'existence de domaines résiduels à haut champ.

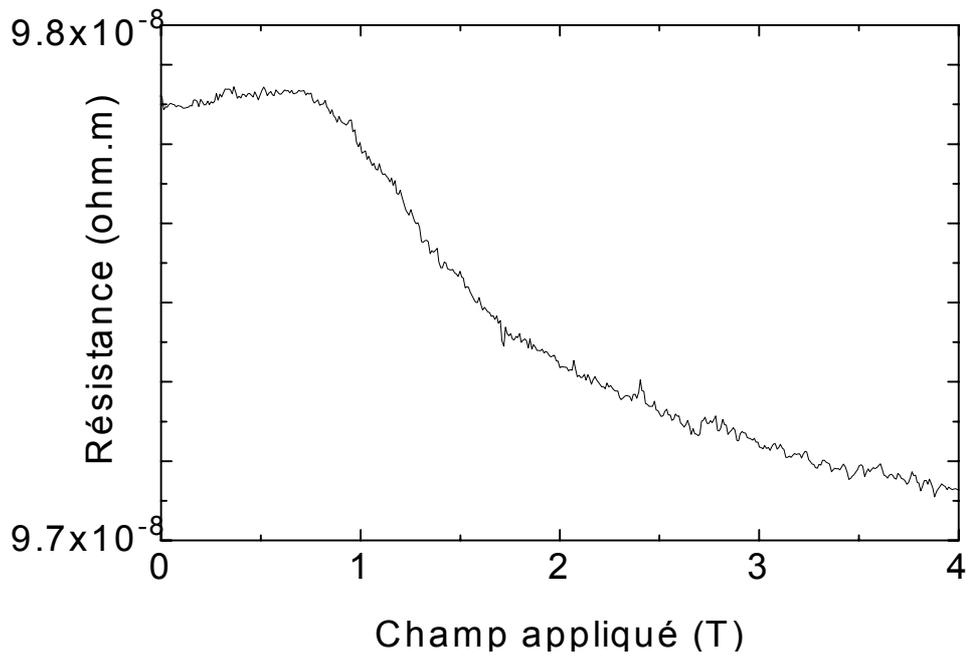


figure 5.35 : variation de la résistance pour un courant appliqué perpendiculairement aux bandes en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement à la couche lors d'une première aimantation en partant d'un état démagnétisé parallèle.

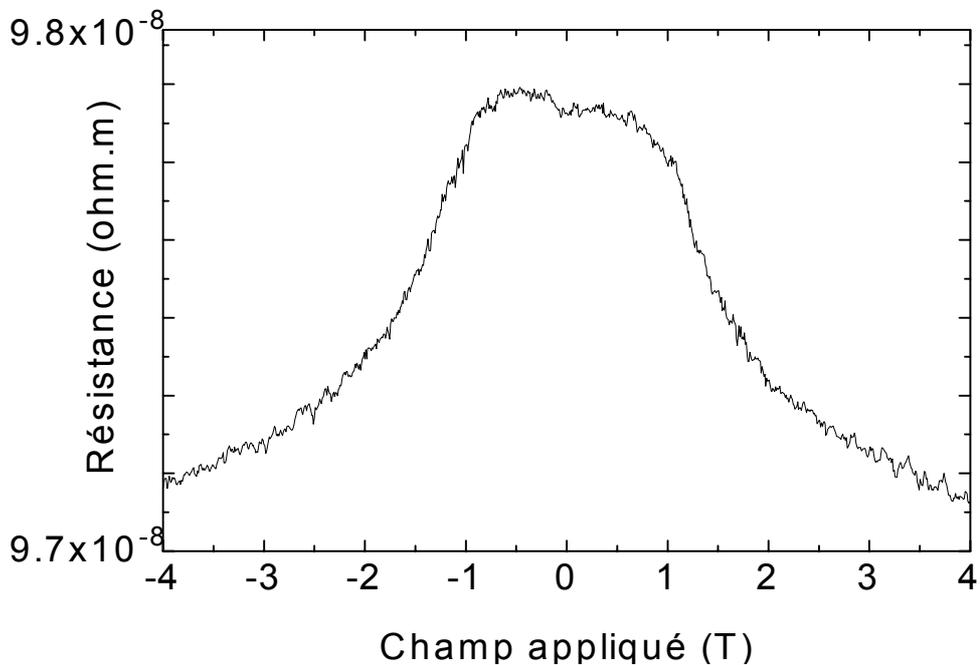


figure 5.36 : variation de la résistance pour un courant appliqué dans le plan de la couche en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement à la couche lors d'un trajet H_s vers $-H_s$.

Lorsque le champ est réduit et porté à la saturation négative, le même type de comportement de la courbe de résistance a été observé comme le montre la figure 5.36. Lorsque le champ diminue à partir de la saturation positive, le diamètre des bulles et donc la densité de paroi vue par les électrons augmente progressivement. S'il y avait une brusque nucléation de bulle, c'est à dire si des bulles résiduelles n'avaient pas disparu même pour le champ appliqué le plus élevé, un saut de la résistance devrait apparaître dans la courbe de magnétorésistance. Au fur et à mesure que la valeur du champ diminue, l'espace entre les bulles diminue, la densité de paroi sature ainsi que la résistance. La résistance mesurée par paroi, égale à 7.8×10^{-17} ohm.m², est comparable à la résistance par interface d'une multicouche Co/Cu en géométrie CPP.

Les courbes de magnétorésistance s'interprètent bien dans le modèle de résistance de paroi. Cependant, le rapport entre la variation de résistance du cobalt et du nickel [Vir 96] est en désaccord avec celui prédit théoriquement par Cabrera [Cab 74] dont le modèle tient compte uniquement d'un potentiel de diffusion dépendant du spin.

C'est pourquoi, un nouveau modèle de résistance de paroi a dû être développé. Ce dernier tient compte à la fois des mécanismes fondamentaux de la magnétorésistance géante décrite par la diffusion dépendante du spin et de la précession du spin de l'électron dans le champ d'échange de la paroi [Vir 96, Gre 96]. A l'aide de ce modèle, nous avons réussi à obtenir théoriquement le rapport de la variation de résistivité entre le cobalt et le nickel mesuré expérimentalement montrant ainsi que le modèle est en accord avec l'expérience.

L'étude approfondie de la théorie développée autour de ces expériences n'étant pas du ressort de cette thèse, le lecteur pourra trouver son développement dans la thèse de W. Allen [All 97] portant sur l'étude de la résistance de parois dans les films minces de matériaux magnétiques. Si l'effet est en lui même fort intéressant et pour la première fois mis en évidence sans qu'il n'y ait aucune ambiguïté, son explication qualitative par la disparition de parois de domaines reste au coeur de ce mémoire. En effet, l'origine de l'explication de la variation de résistance repose sur l'étude approfondie du changement de la structure en domaines en fonction du champ appliqué.

5.3. Mise en évidence d'une résonance de parois

Les couches de cobalt sont également de bons candidats pour l'étude de résonances de parois dans les matériaux ferromagnétiques grâce à la structure en domaines régulière sur quasiment toute la surface de l'échantillon. Dans l'équipe de P. Wigen, les premières résonances de parois ont été mises en évidence dans un matériau métallique. Les expériences sont actuellement en cours et elles ouvrent un nouveau champ d'investigation dans les matériaux métalliques.

Références chapitre V

- [All 90] R. Allenspach, M. Stampanoni et A. Bischof, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 3344 (1990).
- [All 94] R. Allenspach, *J. Mag. Mag. Mat.* **129**, 160 (1994).
- [All 97] W. Allen, thèse de doctorat en préparation, Université d'Oxford, 1997.
- [Arm 96] C. Armand *et al*, *Phys. Stat. Sol. B* **195**, 167 (1996).
- [Bai 88] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich et J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988).
- [Blo 31] F. Bloch et G. Gentile, *Z. Phys.* **70**, 395 (1931).
- [Cab 74] G. G. Cabrera et L. M. Falicov, *Phys. Stat. Sol. (b)* **61**, 539 (1974).
- [Cap 71] J. A. Cape et G. W. Lehman, *J. Appl. Phys.* **42**, 5732 (1971).
- [Dem 96] M. Demand, rapport de stage de DEA Physique de la Matière Condensée et des Matériaux, Université Louis Pasteur, Strasbourg, 1996.
- [Don 95] D. M. Donnet, K. M. Krishnan et Y. Yajima, *J. Phys. D : Appl. Phys.* **28**, 1942 (1995).
- [Fer 96b] R. Ferré, communication privée.
- [Gar 82] T. Garel et S. Doniach, *Phys. Rev. B* **26**, 325 (1982).
- [Gra 96] W. Grange, rapport de stage de DEA Physique de la Matière Condensée et des Matériaux, Université Louis Pasteur, Strasbourg, 1996.
- [Gre 96] J. F. Gregg, W. Allen, K. Ounadjela, M. Viret, M. Hehn, S. M. Thompson et J. M. D. Coey, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1580 (1996).
- [Gru 66] P. J. Grundy, *Phil. Mag.* **x**, 901 (1966).
- [Gru 72] P. J. Grundy, D. C. Hothersall, G. A. Jones, B. K. Middleton et R. S. Tebble, *Phys. Stat. Sol. (a)* **9**, 79 (1972).
- [Hub 67] A. Hubert, *Phys. Stat. Sol.* **22**, 709 (1967).
- [Jon 94] W. J. M. de Jonge, P. J. H. Bloemen et F. J. A. den Broeder, « Ultrathin Magnetic Structures », Vol. I, Chap. 1.3, Springer Verlag, 1994.
- [Kac 59] J. Kaczer et R. Gemperle, *Czech. J. Phys.* **9**, 306 (1959).
- [Kit 46] C. Kittel, *Phys. Rev.* **70**, 965 (1946).
- [Koo 60] C. Kooy et U. Enz, *Philips Res. Rep.* **15**, 7 (1960).
- [Lab 92] M. Labrune, J. Miltat, J. P. Jakubovics, A. M. Thompson et J. N. Chapman, *J. Mag. Mag. Mat.* **104**, 343 (1992).
- [Lil 50] B. A. Lilley, *Phil. Mag.* **41**, 792 (1950).
- [Mic 95] A. Michel, thèse de doctorat, Université Louis Pasteur, 1995
- [Moh 87] P. Mohlo, J. L. Porteseil, Y. Souche, J. Gouzerh et J. C. S. Levy, *J. Appl. Phys.* **61**, 4188 (1987).
- [Mul 67] M. Muller, *J. Appl. Phys.* **38**, 2413 (1967).

-
- [Mye 51] H. P. Myers et W. Sucksmith, Proc. roy. Soc. Lond. **A 207**, 427 (1951).
- [Nem 69] J. M. Nemchik, J. Appl. Phys. **40**, 1086 (1969).
- [Pai 84] D. M. Paige, B. Szpunar et B. K. Tanner, J. Mag. Mag. Mat. **44**, 239 (1984).
- [Pau 62] R. Pauthenet, Y. Barnier et G. Rimet, J. of Phys. Soc. Japan **17**, Supp. B-I, 309 (1962).
- [Pen 93] G. Penissard, thèse de doctorat, Université Paris XI, Orsay, 1993 et références incluses.
- [Per 96] N. Persat, H. A. M. van den Berg et A. Dinia, accepté pour publication dans J. Mag. Mag. Mat.
- [Rod 61] D. S. Rodbell, J. of Phys. Soc. Japan **17**, Supp. B-I, 313 (1962).
- [Sai 64] N. Saito, H. Fujiwara et Y. Sugita, J. Phys. Soc. Jpn. **19**, 1116 (1964).
- [Seu 92] M. Seul et R. Wolfe, Phys. Rev. A **46**, 7519 (1992).
- [Shi 73] Y. Shimada et H. Kojima, J. Appl. Phys. **44**, 5125 (1973).
- [Spe 95] M. Speckmann, H. P. Oepen et H. Ibach, Phys. Rev. Lett. **75**, 2035 (1995).
- [Tan 61] P. E. Tannenwald et R. Weber, Phys. Rev. **121**, 715 (1961).
- [Tom 84] I. Tomas, G. Vertesy et M. Balasko, J. Mag. Mag. Mat. **43**, 287 (1984).
- [VDB 95] H. van den Berg, communication privée.
- [Vir 96] M. Viret, D. Vignoles, D. Cole, J. M. D. Coey, W. Allen, D. S. Daniel et J. F. Gregg, Phys. Rev. B **53**, 8464 (1996).
- [Zep 91] W. B. Zeper, H. W. van Kesteren, B. A. J. Jacobs, J. H. M. Spruit et P. F. Garcia, J. Appl. Phys. **70**, 2264 (1991) et références incluses.

CHAPITRE VI

Magnétisme des plots de cobalt

L'élaboration de supports de stockage à base de nanostructures magnétiques [Kra 94] passe par une étape d'étude du comportement magnétique de particules contenant un bit d'information c'est à dire de particules monodomaines. Cette étude repose sur la compréhension du mécanisme de retournement de l'aimantation en fonction d'un champ magnétique appliqué [Wer 95, Fru 97] mais également sur la stabilité de l'information stockée vis à vis de perturbations extérieures telle que la température [Wer 95]. C'est pour cela qu'une grande partie des travaux fondamentaux se porte sur l'étude de structures monodomaines.

Cependant, la stabilisation de structures multidomaines contraintes par les dimensions latérales réduites d'une couche magnétique devrait nous permettre d'étudier des configurations de domaines indépendantes les unes des autres. Cette étude est impossible dans le cas d'une couche infinie à cause de la mobilité des domaines soumis à des gradients de champ ou de température. De plus, en variant la forme des nanostructures, il est possible de réduire le nombre de domaines par particules et donc de mettre en évidence les conditions de passage d'une structure multidomaine à une structure monodomaine.

Cette étude fait suite à celle réalisée sur les couches de cobalt dont nous connaissons à présent les caractéristiques magnétiques macroscopiques et microscopiques. C'est pour cela que nous allons suivre le même cheminement que dans le précédent chapitre et, à chaque niveau, nous soulignerons l'influence de la réduction de la taille latérale sur le magnétisme des couches. Nous montrerons tout au long de ce chapitre que la stabilisation de structures en domaines indépendantes les unes des autres est à l'origine de nouvelles propriétés de renversement ou d'orientation d'aimantation.

A. MOTIVATION DE CETTE ETUDE

En fait, l'un des plus importants résultats pour l'étude du confinement des domaines, issu de l'étude du magnétisme microscopique des couches de cobalt, est la loi d'évolution de la période des domaines en fonction de l'épaisseur du film de cobalt (figure 5.23). En effet, si nous voulons contraindre géométriquement les domaines à aimantation perpendiculaire avec pour objectif ultime d'atteindre un état monodomaine, nous avons tout intérêt à réduire la taille latérale de la couche à des dimensions comparables à la période maximale des domaines, c'est à dire $0.5 \mu\text{m}$. C'est pour cela que nous avons choisi de graver des plots de $0.5 \mu\text{m}$ de côté dans les couches de cobalt.

A l'autre extrême, pour les couches les plus fines, il n'y aura pas d'effet de confinement géométrique des domaines lié à la composante d'aimantation perpendiculaire car la taille de ces domaines est environ dix fois plus petite que la taille latérale du plot. Cependant, dans le cas d'un plot, les facteurs de champ démagnétisant planaires ne peuvent plus être considérés comme nuls. La réduction de la taille latérale induit une composante planaire du champ démagnétisant qui va influencer l'orientation de la composante planaire d'aimantation. Ainsi, des réorientations d'aimantation liées à la géométrie des plots sont également attendues pour les plots de faible épaisseur.

B. MAGNETISME MACROSCOPIQUE DES PLOTS DE COBALT

1. PARAMETRES INTRINSEQUES DU MATERIAU

Comme dans le cas de la couche mince de cobalt, nous avons étudié l'évolution des paramètres intrinsèques du matériau en fonction de l'épaisseur des plots et de la température.

1.1. Variation de l'aimantation à saturation, M_s

A partir des courbes d'aimantation qui seront présentées dans le paragraphe 2, nous avons accès à la mesure du moment magnétique à saturation du cobalt en fonction de l'épaisseur du plot. Cette mesure est cependant entachée d'une grande erreur provenant du faible volume magnétique à mesurer. De plus, la visualisation des réseaux de plots à l'aide d'un microscope optique nous a montré qu'un certain nombre de plots avaient disparu dès l'élaboration du réseau. C'est pourquoi, il est difficile de déterminer le volume magnétique des échantillons et donc de donner la valeur exacte de l'aimantation à saturation en fonction de l'épaisseur du plot.

Une évaluation moyenne de M_s en prenant le volume magnétique théorique du réseau de plots a montré que l'aimantation à saturation était inférieure à celle de la couche mince non gravée de même épaisseur. En fait, nous pensons que l'aimantation à saturation n'a pas variée mais que le volume magnétique théorique du réseau est bien plus élevé que le volume magnétique réel. Le volume magnétique théorique est égal au quart du volume de la couche de $0.5 \mu\text{m} \times 0.5 \mu\text{m}$ qui a été gravée.

1.2. Variation des constantes d'anisotropie

L'expression de l'énergie d'anisotropie par unité de volume dans le cas des plots de cobalt est identique à celle qui a été utilisée pour les couches de cobalt étant donné que la structure cristalline n'a pas été altérée par la gravure ionique. Elle s'écrit sous la forme

$$E_K^V = K_1^{eff} \sin^2 \varphi + K_2 \sin^4 \varphi \quad (6.1)$$

où

φ est l'angle de l'aimantation avec l'axe d'anisotropie et

$$K_1^{eff} = K_1^{MC} + 2\pi(N_{//} - N_{\perp})M_s^2 + \frac{3}{2}\lambda\sigma + 2\frac{K_s}{d} \quad (6.2)$$

avec $N_{//}$ et N_{\perp} égaux aux facteurs de champ démagnétisant parallèle et perpendiculaire à la base du plot.

Les différents termes de la somme sont identiques à ceux de l'équation (5.4). Cependant, l'expression de l'énergie de champ démagnétisant est plus générale que dans le cas d'une couche mince où $N_{//} = 0$ et $N_{\perp} = 2\pi$.

Les résultats des calculs sur la théorie du couple sont identiques à ceux du chapitre V en remplaçant l'expression de K_1^{eff} de l'équation (5.4) par celle de l'équation (6.2). Les mesures de couple magnétique sont réalisées dans la même géométrie que celle des couches et pour les mêmes raisons évoquées au chapitre précédent, il est théoriquement possible de reproduire une courbe de couple à l'aide d'une combinaison linéaire de $\sin(2n\varphi)$ où n est un entier et d'en déduire les valeurs des différentes constantes d'anisotropie.

En guise de comparaison, nous avons tracé les lois d'évolution de K_1 pour les couches et les plots en fonction de l'épaisseur dans la figure 6.1. Nous voyons que pour toutes les épaisseurs, K_1 a chuté après la gravure ionique pour atteindre des valeurs communément mesurées dans des échantillons massifs. En effet, $K_1 = K_1^{MC} + \frac{3}{2}\lambda\sigma$ est constante et égale à $5.3 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$. Cette valeur est quasiment égale à celle donnée dans la littérature [Pai 84] égale à $5.2 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$.

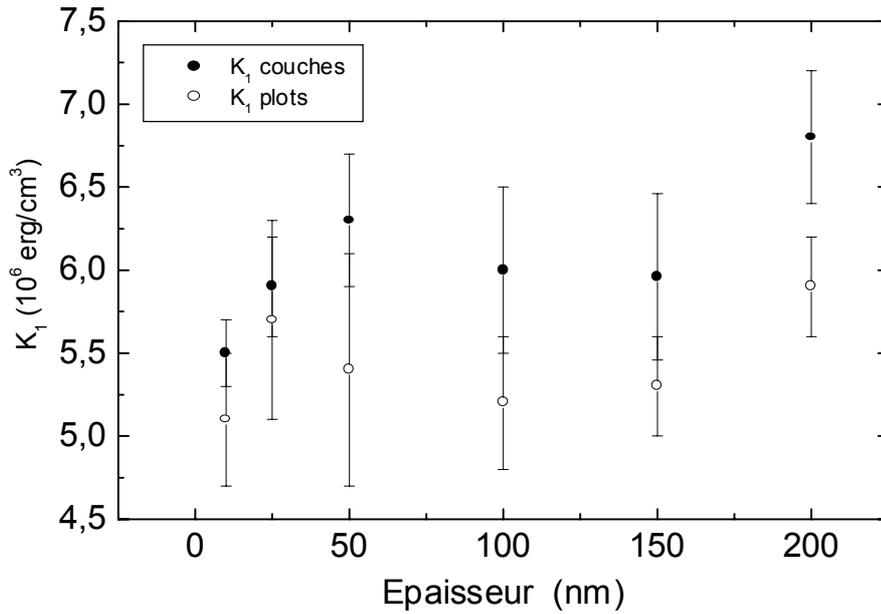


figure 6.1 : variation de K_1 avec l'épaisseur des plots (○). A titre de comparaison, nous avons reporté sur le même graphe les points obtenus pour les couches (●).

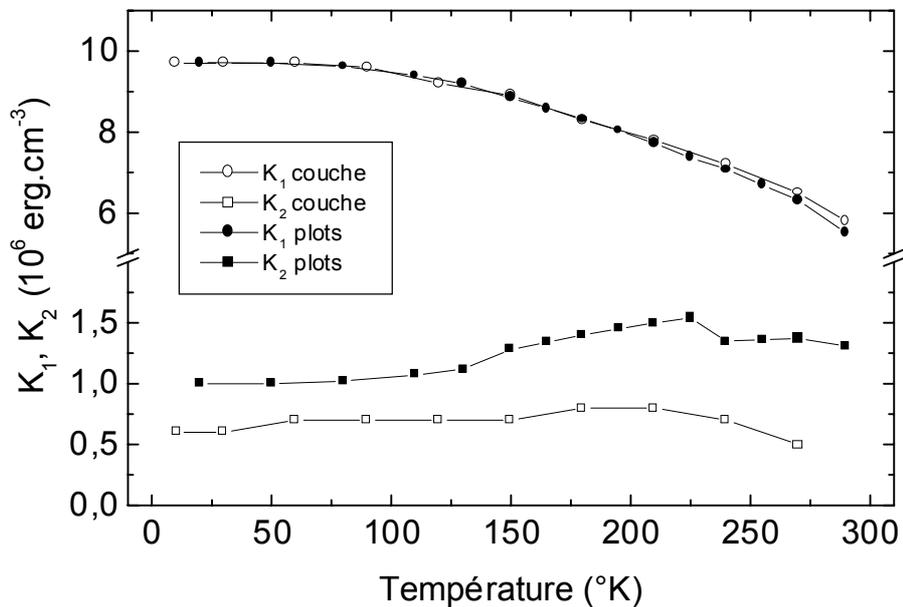
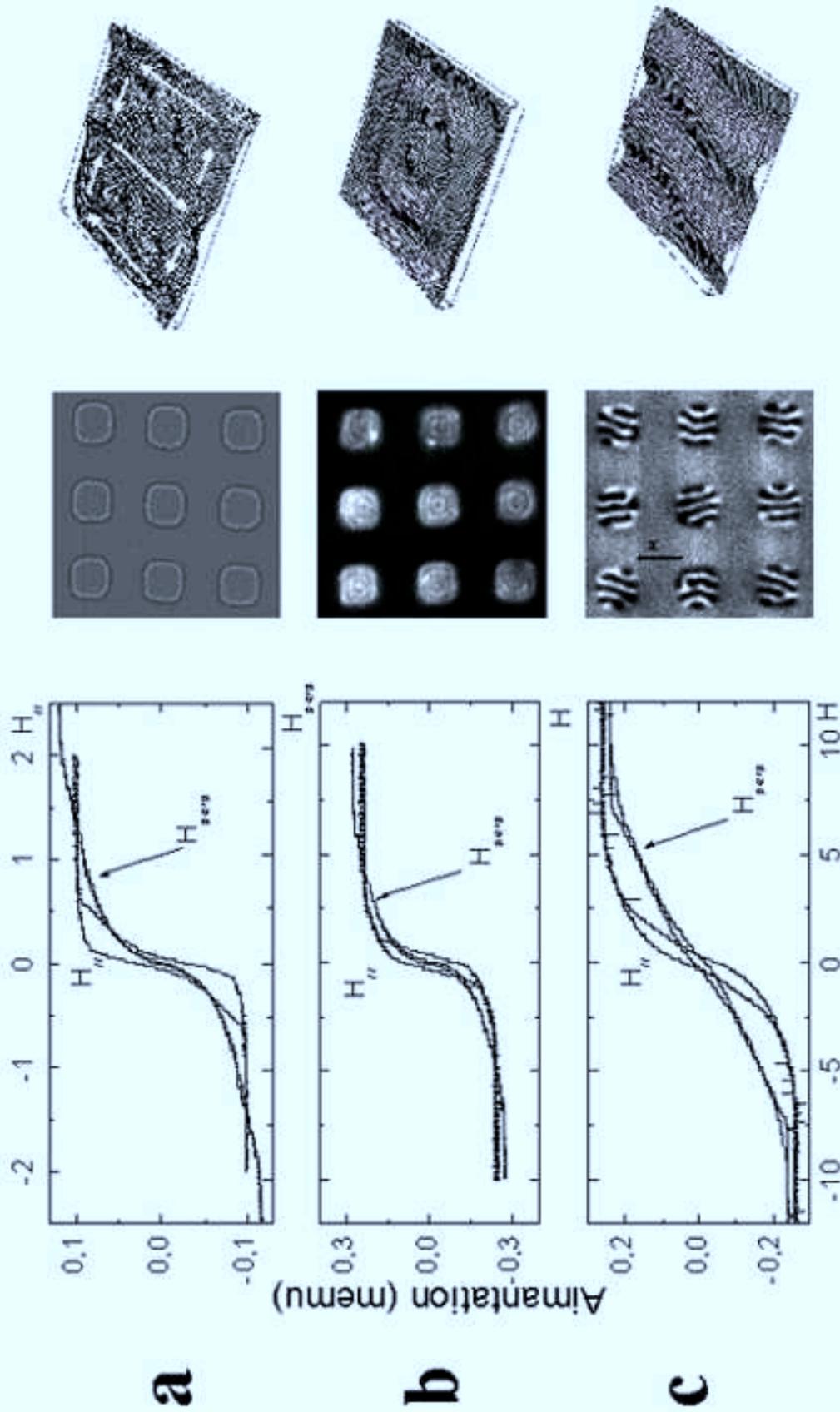


figure 6.2 : variation des constantes d'anisotropie K_1 (●) et K_2 (■) pour un réseau de plots d'épaisseur 25 nm en fonction de la température. En guise de référence, les mesures obtenues pour K_1 (○) et K_2 (□) dans la couche de même épaisseur ont également été reportées sur le graphe.

Deux hypothèses peuvent expliquer cette chute d'anisotropie. La première consiste à dire que les contraintes planaires de la couche de cobalt ont pu relaxer puisque la taille latérale de la couche a été réduite. Cependant, aucune évidence expérimentale de cette relaxation n'a pu être obtenue même si la position du pic de RMN a subi un décalage vers les basses fréquences tout en conservant sa largeur de raie [Gra 96]. Cet effet peut s'interpréter par d'autres phénomènes tels que la réduction de la taille latérale des plots ou l'introduction de défauts dans le matériau. C'est d'ailleurs cette seconde hypothèse que nous invoquons pour expliquer la diminution de la constante d'anisotropie. En effet, nous savons que la largeur des plots est plus grande que celle que nous aurions dû obtenir et que cette augmentation est due au redépôt de cobalt le long des flancs des plots. Nous avons montré par RMN que ce redépôt n'est pas constitué de cobalt cristallisé dans une phase cfc. Nous pouvons raisonnablement penser que ce redépôt est amorphe. Ainsi, pour un volume magnétique donné, la constante d'anisotropie a diminué car seulement une partie de ce volume est anisotrope.

Ce qui est bien plus étonnant, ce sont les lois de variation de K_1 et de K_2 en fonction de la température données dans la figure 6.2 pour les plots de 25 nm d'épaisseur. Dans la même figure, nous avons tracé la variation des constantes d'anisotropie de la couche de même épaisseur. Nous voyons que pour des températures inférieures à 250 K, les lois de variation de la constante d'anisotropie K_1 sont identiques pour les plots et les couches dans la limite des incertitudes de mesure. D'après le chapitre précédent, nous attribuons l'augmentation de l'anisotropie de la couche de cobalt par rapport à celle du cobalt massif à des contraintes entre le cobalt et le ruthénium. Si la constante d'anisotropie des plots suit la même loi de variation que celle de la couche, il est probable que les contraintes ne se soient pas relaxées et que la diminution de la constante d'anisotropie K_1 à température ambiante lors du passage de la couche aux plots provienne du redépôt de cobalt.



Champ appliqué (kOe)

figure 6.3 : composante d'aimantation perpendiculaire des structures en domaines calculées par simulation micromagnétique tridimensionnelle, images MFM mesurées après désaimantation planaire et courbes d'aimantation avec le champ magnétique appliqué parallèlement et perpendiculairement à la base des plots pour un réseau de plots de (a) 10 nm (b) 25 nm et (c) 50 nm d'épaisseur. Les dimensions des images sont égales à $3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$. Les flèches blanches indiquent l'orientation de la composante planaire d'aimantation.

2. DE 10 A 50 NM : TRANSITION D'UNE AIMANTATION PLANAIRE A PERPENDICULAIRE

Nous avons d'abord choisi d'étudier le domaine d'épaisseur compris entre 10 et 50 nm pour voir l'influence de la réduction de la taille latérale de la couche sur la réorientation de la direction d'aimantation. L'ensemble des résultats est rassemblé sur la figure 6.3 ou pour chaque épaisseur nous avons représenté les courbes d'aimantation pour des champs appliqués parallèlement et perpendiculairement à la base du plot, les images MFM de surface égale à $3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$ et la composante perpendiculaire d'aimantation calculée à l'aide de simulations micromagnétiques tridimensionnelles [Fer 95, Fer 96] (Annexe D).

2.1. Plots de 10 nm d'épaisseur

Regardons tout d'abord les courbes d'aimantation obtenues pour l'échantillon le plus fin (figure 6.3a). Lorsque le champ est appliqué perpendiculairement à la base du plot, la variation de l'aimantation est caractéristique d'une rotation cohérente telle qu'elle a pu être décrite par Stoner et Wohlfarth (Annexe B). L'axe de croissance est donc un axe difficile et l'aimantation est orientée dans la base du plot. Par contre, dans la base du plot, le cycle d'aimantation est caractéristique d'une aimantation planaire avec un champ coercitif égal à 60 Oe. Alors que le champ de saturation perpendiculaire est quasiment identique à celui de la couche non gravée, le champ de saturation planaire, quant à lui, a fortement augmenté. Cette augmentation est directement liée à l'introduction d'un champ démagnétisant planaire. En effet, la différence des champs de saturation entre une couche infinie et un plot de taille latérale égale à $0.5 \mu\text{m}$, $\Delta H_s^{//}$, est égale au champ démagnétisant planaire du plot. Ainsi

$$\Delta H_s^{//} = 4\pi N_{//} M_s \quad (6.3)$$

A l'aide des coefficients de l'annexe C, nous estimons cette variation à 530 Oe qui est en bon accord avec la mesure expérimentale égale à 520 Oe. L'image MFM ne présente pas assez de contraste pour pouvoir déterminer la structure en domaines. Cette dernière a pu être obtenue par simulation micromagnétique.

Nous ne nous sommes pas contentés de simuler la structure en domaines en champ nul mais nous avons essayé de comprendre quels étaient les mécanismes de nucléation à l'origine de la structure en domaines à champ nul. Pour cela, nous avons calculé l'état rémanent après saturation de l'aimantation de l'échantillon avec le champ orienté dans la base du plot pour un plot de $0.45 \mu\text{m}$ de côté et 20 nm de hauteur. Dans les premiers stades de la nucléation pour un champ magnétique égal à 3 kOe, une seule oscillation d'aimantation à composante perpendiculaire se forme au milieu des côtés du plot qui sont perpendiculaires à la direction du champ appliqué. En même temps, la composante d'aimantation planaire tend très rapidement à s'orienter parallèlement aux côtés du plot

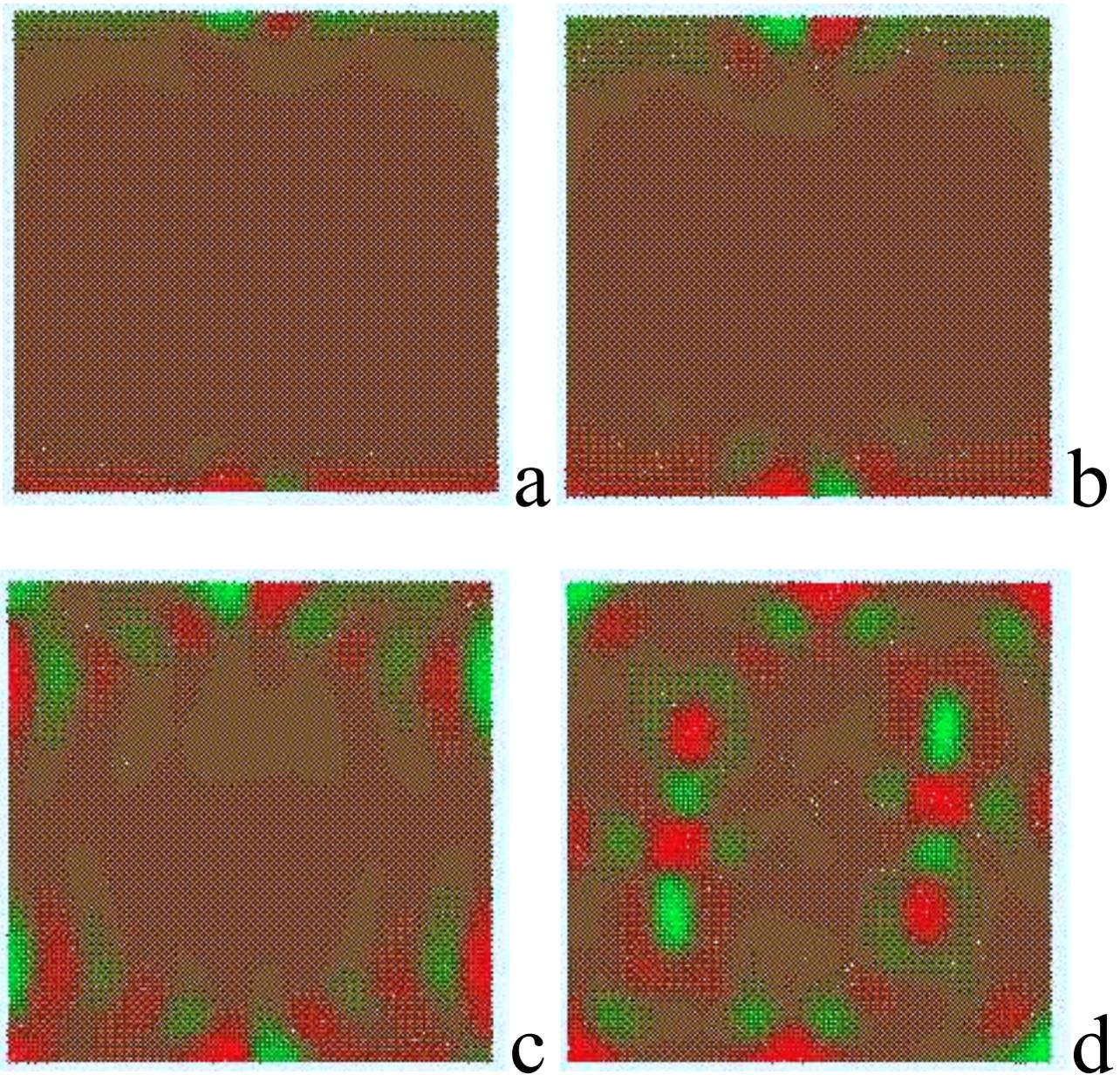


figure 6.4 : processus de nucléation et état rémanent planaire calculés pour un champ magnétique appliqué dans la base d'un plot de 25 nm d'épaisseur et de $0.45 \mu\text{m}$ de largeur. Les images représentent les structures en domaines pour des champs de (a) 3 kOe (b) 1 kOe (c) 250 Oe et (d) 0 Oe. Les couleurs rouge et respectivement verte représentent une aimantation perpendiculaire positive et respectivement négative.

(figure 6.4a). Lorsque le champ magnétique est réduit à 1 kOe (figure 6.4b) puis à 250 Oe (figure 6.4c), cette oscillation se propage à l'intérieur du plot donnant ainsi naissance à deux vortex à aimantation perpendiculaire dont la structure interne est très complexe. Ils sont entourés de trois grands domaines à aimantation planaire d'aimantation alternée de domaine à domaine (figure 6.4d). A partir de cette structure en domaines, nous montrons que l'aimantation des plots s'oriente majoritairement dans le plan du plot confirmant ainsi le caractère difficile de l'axe perpendiculaire à la base des plots. D'autre part, l'observation de la structure en champ nul montre que les dimensions des régions à aimantation perpendiculaire sont à la limite de la résolution du MFM. C'est certainement l'une des raisons pour laquelle nous n'avons pas pu obtenir de contraste dans notre mesure.

Nous avons également simulé l'état rémanent obtenu après avoir appliqué un champ perpendiculairement à la base du plot. Dans ce cas, nous avons montré que l'aimantation s'oriente dans la base du plot par un processus de renversement d'aimantation proche du « curling » qui est un processus d'aimantation cohérent. Ainsi, nous avons pu stabiliser une structure en domaines de type vortex simple déjà observée dans des plots de permalloy [Ker 94].

2.2. Plots de 25 nm d'épaisseur

Pour des plots de plus forte épaisseur (25 nm), l'aimantation se décompose en une composante d'aimantation planaire et perpendiculaire. Comme nous pouvons le voir sur les courbes d'aimantation par rapport aux plots de 10 nm d'épaisseur, cette décomposition entraîne l'apparition d'un hystérésis dans la courbe d'aimantation perpendiculaire pour des champs compris entre -1.5 et 1.5 kOe. Comme dans le cas d'une couche de 25 nm d'épaisseur, le contraste MFM provient essentiellement de la composante d'aimantation perpendiculaire qui s'arrange en une structure de domaines circulaires à aimantation alternée. Il faut noter que l'image MFM de la figure 6.3 a été obtenue après désaimantation planaire. Nous présenterons l'origine de cette distribution d'aimantation assez particulière lors de la description des images MFM en fonction de l'histoire magnétique.

Les calculs de micromagnétisme ont permis de montrer que cette structure était stable et pouvait être obtenue dans un état rémanent perpendiculaire. En effet, lorsque le champ magnétique est appliqué perpendiculairement à la base du plot, les premiers stades de renversement de l'aimantation consistent à former un anneau d'aimantation inverse à la direction et au sens du champ appliqué. La formation de cet anneau est suivie par celle d'un second. On voit alors que l'aimantation a essentiellement une composante planaire tournante avec une composante perpendiculaire alternativement positive et négative d'anneau à anneau (figure 6.5).

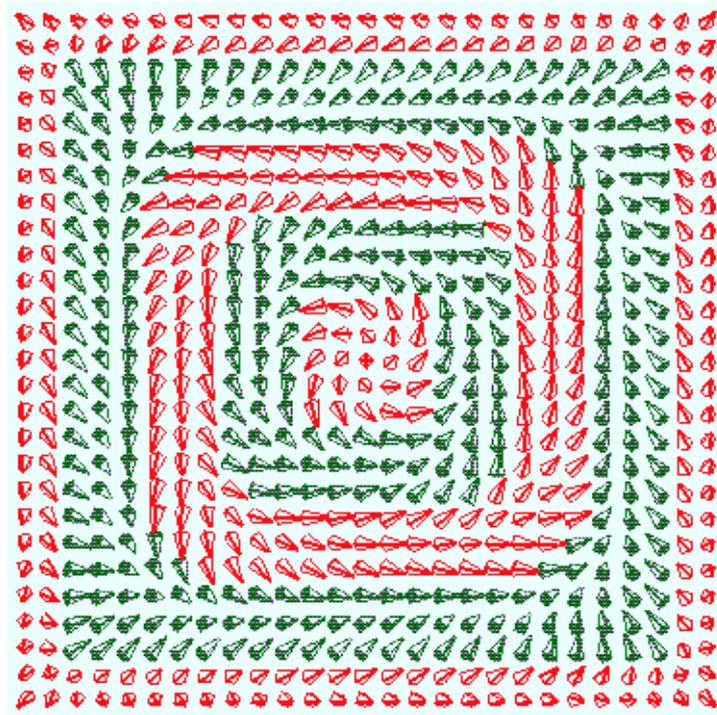


figure 6.5 : configuration de domaines en champ appliqué nul pour un plot de $0.2 \mu\text{m}$ de côté et 28 nm de haut obtenue dans l'état rémanent perpendiculaire.

Cependant, expérimentalement, la structure sous forme de domaines concentriques a été obtenue après avoir appliqué un champ magnétique dans le plan du plot. C'est pourquoi nous avons simulé l'évolution de l'aimantation lorsque un champ magnétique était appliqué parallèlement à la base du plot. Dans ce cas, lorsque le champ appliqué est inférieur au champ de nucléation, des oscillations d'aimantation à composante perpendiculaire se forment sur les côtés perpendiculaires à la direction du champ appliqué (figure 6.12a). Ce phénomène de nucléation est identique pour toutes les épaisseurs supérieures à 25 nm. Nous ne le présentons donc qu'une seule fois dans la figure 6.12. Ces oscillations se propagent légèrement vers l'intérieur du plot sous forme de bandes lorsque le champ magnétique diminue (figure 6.12b). Cependant, deux bulles se détachent des coins et se rapprochent peu à peu du centre du plot en augmentant la courbure des bandes (figure 6.6a). Pour un champ appliqué égal à zéro, deux bulles coexistent dans le plot et sont entourées par des domaines dont la composante d'aimantation est à la fois planaire et perpendiculaire (figure 6.6b). Lorsque le champ appliqué devient négatif, les bulles s'évitent lors du passage au centre du plot à cause de leur interaction répulsive et sont expulsées du plot lors de la saturation négative. Il semblerait donc que, lors d'un cycle d'aimantation, il ne puisse pas y avoir formation d'une structure de domaines concentriques. La désaimantation aura pour effet soit de privilégier une bulle par rapport à l'autre, soit de les faire fusionner.

2.3. Plots de 50 nm d'épaisseur

Lorsque l'épaisseur des plots est égale ou supérieure à 50 nm, la courbe d'aimantation perpendiculaire est caractéristique d'une structure en domaines à aimantation perpendiculaire telle qu'elle a pu être décrite par Rhodes et Rowland (Annexe B). En effet, l'ouverture d'un cycle d'hystérésis pour des champs proches de la saturation perpendiculaire nous montre que le processus de renversement de l'aimantation passe par la nucléation d'un domaine dans le plot. Elle entraîne un brusque saut dans la courbe d'aimantation. La direction de l'aimantation est parallèle à l'axe de croissance au centre de chaque domaine et l'orientation de domaine à domaine est alternativement positive et négative. La courbe d'aimantation planaire est caractéristique d'une rotation cohérente selon un axe difficile et présente une forte contribution de la seconde constante d'anisotropie et de la structure en domaines. L'image MFM obtenue après désaimantation planaire présente des bandes dans le cas des plots de 50 nm.

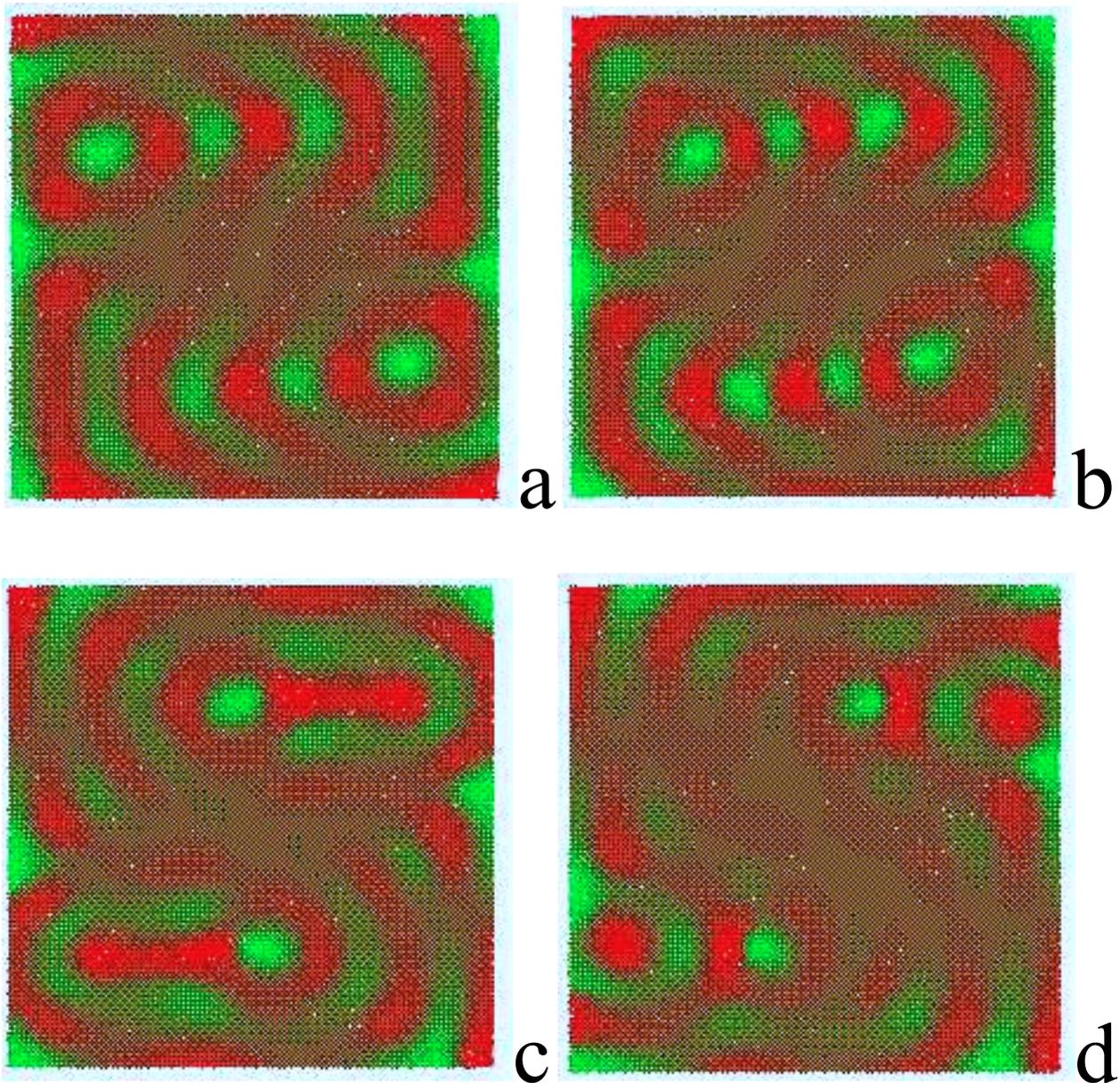


figure 6.6 : processus de nucléation et état rémanent planaire calculés pour un champ magnétique appliqué dans la base d'un plot de 28 nm d'épaisseur et de 0.45 μm de largeur. Les images représentent les structures en domaines pour des champs de (a) 250 Oe (b) 0 Oe (c) -250 Oe et (d) -500 Oe. Les couleurs rouge et respectivement verte représentent une aimantation perpendiculaire positive et respectivement négative.

Dans le cas des plots d'épaisseur supérieure ou égale à 50 nm, le processus de nucléation des domaines sur le bord des plots est identique à celui qui a été présenté dans le cas des plots de 25 nm d'épaisseur. La seule différence réside dans le fait que les bulles ne se détachent pas des coins du plot. Les bandes continuent à se propager vers le centre du plot. Nous exposerons les différentes étapes de la formation des domaines dans le prochain paragraphe. A ce niveau, il est important de noter que, pour des épaisseurs supérieures à 50 nm, l'aimantation est perpendiculaire dans chaque domaine mais que nous ne pouvons pas exclure l'existence de domaines de fermeture.

Dans ce paragraphe, nous avons donc montré que la réorientation de l'aimantation en fonction de l'épaisseur de la couche est conservée pour des réseaux de plots de cobalt. Les cycles d'aimantation sont similaires à ceux de la couche non gravée même si leurs paramètres caractéristiques n'évoluent pas de la même manière en fonction de l'épaisseur des plots.

3. DE 50 A 200 NM : STRUCTURE EN DOMAINES A AIMANTATION PERPENDICULAIRE

Dans cette gamme d'épaisseur, la forme des courbes d'aimantation est indépendante de l'épaisseur des plots comme nous pouvons le constater sur la figure 6.7. Les processus de nucléation et de propagation des domaines sont presque identiques à ceux des couches mais les effets qui leur sont liés sont accentués à cause des dimensions réduites du système étudié. Nous allons d'abord décrire les processus d'aimantation pour passer très rapidement aux effets induits par la réduction de la taille latérale de la couche.

3.1. Variation de l'aimantation avec le champ appliqué perpendiculairement à la base du plot

Les courbes d'aimantation lorsque le champ magnétique est appliqué perpendiculairement à la base du plot peuvent s'interpréter à l'aide de deux modèles. Le premier, déjà utilisé pour des couches infinies, est le modèle développé par Kooy et Enz [Koo 60]. Dans ce cas, on suppose que le processus de nucléation est indépendant de la taille latérale du plot. Le second peut prendre place dans des structures de taille latérale comparable à celle d'un domaine magnétique et peut stabiliser une structure en domaines similaire en champ nul : c'est le mode de retournement d'aimantation par « curling ». Ce processus a été mis en évidence par les calculs de micromagnétisme.

Selon le modèle utilisé, le cycle d'aimantation s'interprète de manière différente.

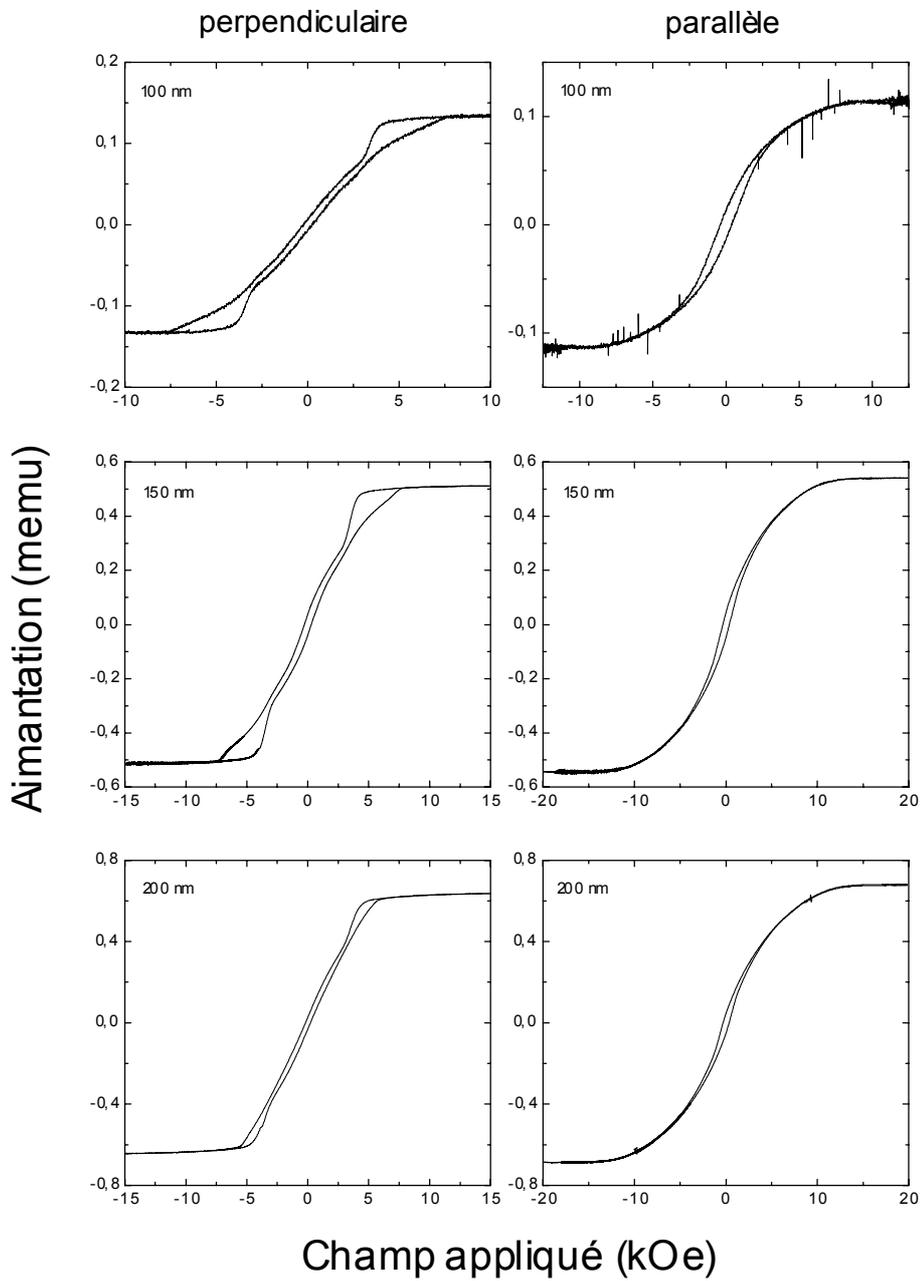


figure 6.7 : évolution de la forme des cycles d'aimantation avec le champ appliqué parallèlement et perpendiculairement à la base du plot en fonction de l'épaisseur.

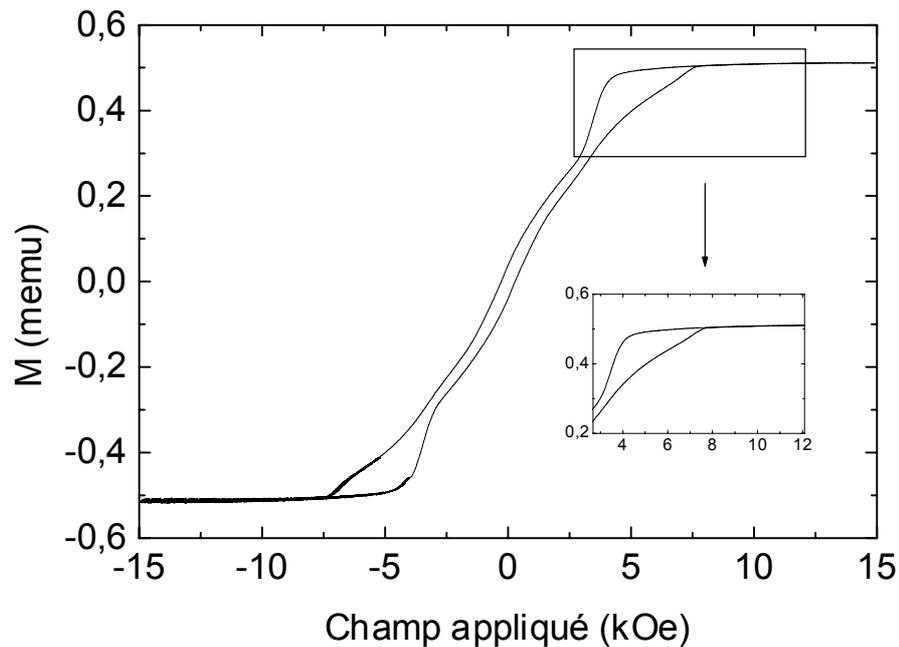


figure 6.8 : cycle d'aimantation obtenu avec le champ appliqué perpendiculairement à la base d'un réseau de plots de 150 nm d'épaisseur. La courbe incrustée montre l'évolution de l'aimantation près de la saturation.

❶ Explication à l'aide du modèle de Kooy et Enz

Comme nous le voyons sur la figure 6.8, l'aimantation du réseau de plots décroît légèrement lorsque le champ appliqué diminue de H_s jusqu'au champ de nucléation H_n pour lequel une singularité apparaît dans la courbe d'aimantation. Cette décroissance ne peut pas être expliquée à l'aide du modèle théorique de Kooy et Enz comme nous l'avons déjà vu dans le cas des couches de cobalt. Elle provient de l'augmentation du diamètre de bulles résiduelles qui n'ont pas été éliminées lors du passage du champ appliqué à son maximum. Elle a déjà été mise en évidence dans les couches de cobalt et peut persister après la gravure ionique.

Lorsque le champ appliqué diminue, nous obtiendrons, dans le cas des plots, la même évolution de la structure en domaines en fonction du champ appliqué que celle qui a été décrite dans le cas des couches de cobalt. L'arrangement des domaines peut cependant être légèrement différent que dans une couche à cause des contraintes géométriques du plot.

❷ Explication utilisant le calcul micromagnétique

Dans ce modèle, la décroissance de l'aimantation du plot lorsque le champ appliqué diminue de H_s jusqu'au champ de nucléation H_n provient de l'amorce du processus de retournement dans un mode de type « curling ».

En effet, comme nous le voyons sur la figure 6.9a, alors que l'aimantation du plot est dirigée dans le sens du champ appliqué, un domaine circulaire sous forme d'un anneau commence à se former par une rotation d'aimantation cohérente. Cette rotation s'effectue de manière lente jusqu'à ce que le champ appliqué soit égal au champ de nucléation. L'aimantation de cet anneau s'inverse alors brutalement donnant naissance à un saut dans la courbe d'aimantation [Fer 96] pour un champ de 5 kOe.

Lorsque le champ appliqué diminue, l'anneau se déforme afin de minimiser son énergie magnétostatique. Dès 3 kOe, la déformation est symétrique et mène à la stabilisation d'une structure en trèfle à quatre feuilles. Puis, un axe de propagation des parois est privilégié par rapport aux autres donnant naissance à une structure qui ressemble étrangement à un papillon. Cette dernière se transforme finalement en un C à champ nul.

Ces deux modèles sont complémentaires l'un de l'autre car lorsque l'on regarde l'état rémanent perpendiculaire d'un réseau de plots, la structure en domaines est à la fois composée de bulles et de domaines sous forme de C. Les deux processus de nucléation peuvent alors prendre place simultanément dans le réseau de plots, à raison d'un processus par plot.

Pour des champs négatifs, les bulles allongées dont l'aimantation est parallèle au champ appliqué se connectent pour former des bulles allongées dont l'aimantation est inverse et de sens opposé au champ appliqué par un processus de rotation d'aimantation. Ces dernières se transforment en bulles cylindriques et bulles résiduelles lorsque le champ appliqué excède $-H_s$.

Comme nous pouvons le constater sur la figure 6.7, les champs caractéristiques, c'est à dire H_s et H_n , varient avec l'épaisseur de la couche de cobalt. Dans la suite de ce paragraphe, nous essaierons de modéliser leurs variations à partir du modèle de Rhodes et Rowlands (Annexe B).

3.1.1. Variation du champ de saturation perpendiculaire

La variation du champ de saturation perpendiculaire en fonction de l'épaisseur du plot est présentée dans la figure 6.10 (▼). Nous voyons qu'il diminue avec l'épaisseur du plot à partir de 8.8 kOe pour les plots de 50 nm jusqu'à 6.3 kOe pour les plots les plus épais.

Dans le cas des structures en domaines à dimension latérale réduite, il n'est plus possible d'utiliser les modèles développés dans le cas de films magnétiques pour décrire l'évolution des champs de saturation avec l'épaisseur du plot. En effet, ces modèles ne tiennent pas compte des facteurs de champ démagnétisant perpendiculaire et planaire d'une structure latérale réduite.

La première approche consiste à négliger la structure en domaines tout en considérant que l'aimantation est perpendiculaire à la base du plot. Dans ce cas, l'expression du champ de saturation perpendiculaire se réduit à

$$H_s^\perp = 4\pi N_\perp M_s \quad (6.4)$$

Cette expression nous donne la limite supérieure du champ de saturation lorsque le champ est appliqué perpendiculairement à la base du plot. Ce modèle consiste à dire que, dans le cas des couches minces, le champ de saturation est toujours égal à $4\pi M_s$ alors que nous avons vu qu'il est toujours inférieur à cette valeur tout en s'en rapprochant pour des couches très épaisses. Pour ces raisons, nous pouvons affirmer qu'il s'agit d'une limite supérieure. L'évaluation de cette expression en fonction de l'épaisseur du plot est reportée sur le figure 6.10 (---●---).

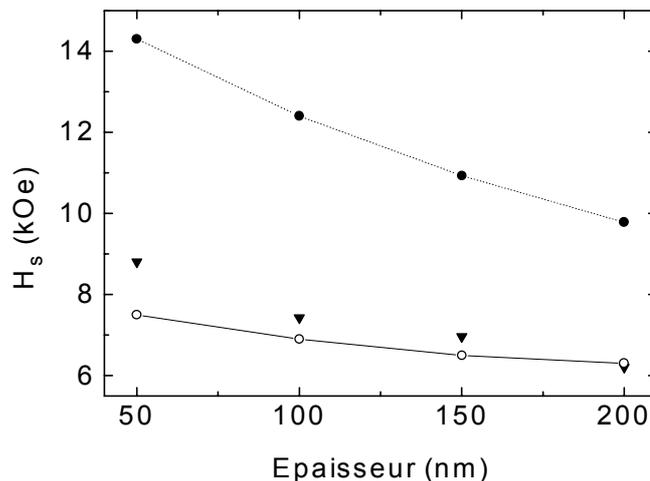


figure 6.10 : variation du champ de saturation perpendiculaire en fonction de l'épaisseur des plots. La courbe théorique obtenue dans le modèle de Rhodes et Rowlands (—○—) est en bon accord avec les points expérimentaux (▼) pour les plots les plus épais. La courbe théorique obtenue pour un plot monodomaine (---●---) donne une limite supérieure au champ de saturation.

Une meilleure approche consiste à calculer le champ de saturation perpendiculaire à l'aide du modèle de Rhodes et Rowlands. Grâce à celui-ci, il est possible de calculer l'énergie totale d'une structure en domaines à aimantation perpendiculaire dans un système à dimensions latérales réduites en fonction de l'épaisseur et du champ appliqué. Cette énergie, comparée à celle de la structure monodomaine, permet de déterminer le champ de saturation. Un bon accord entre les valeurs théorique et expérimentale a pu être obtenu pour les épaisseurs supérieures à 100 nm.

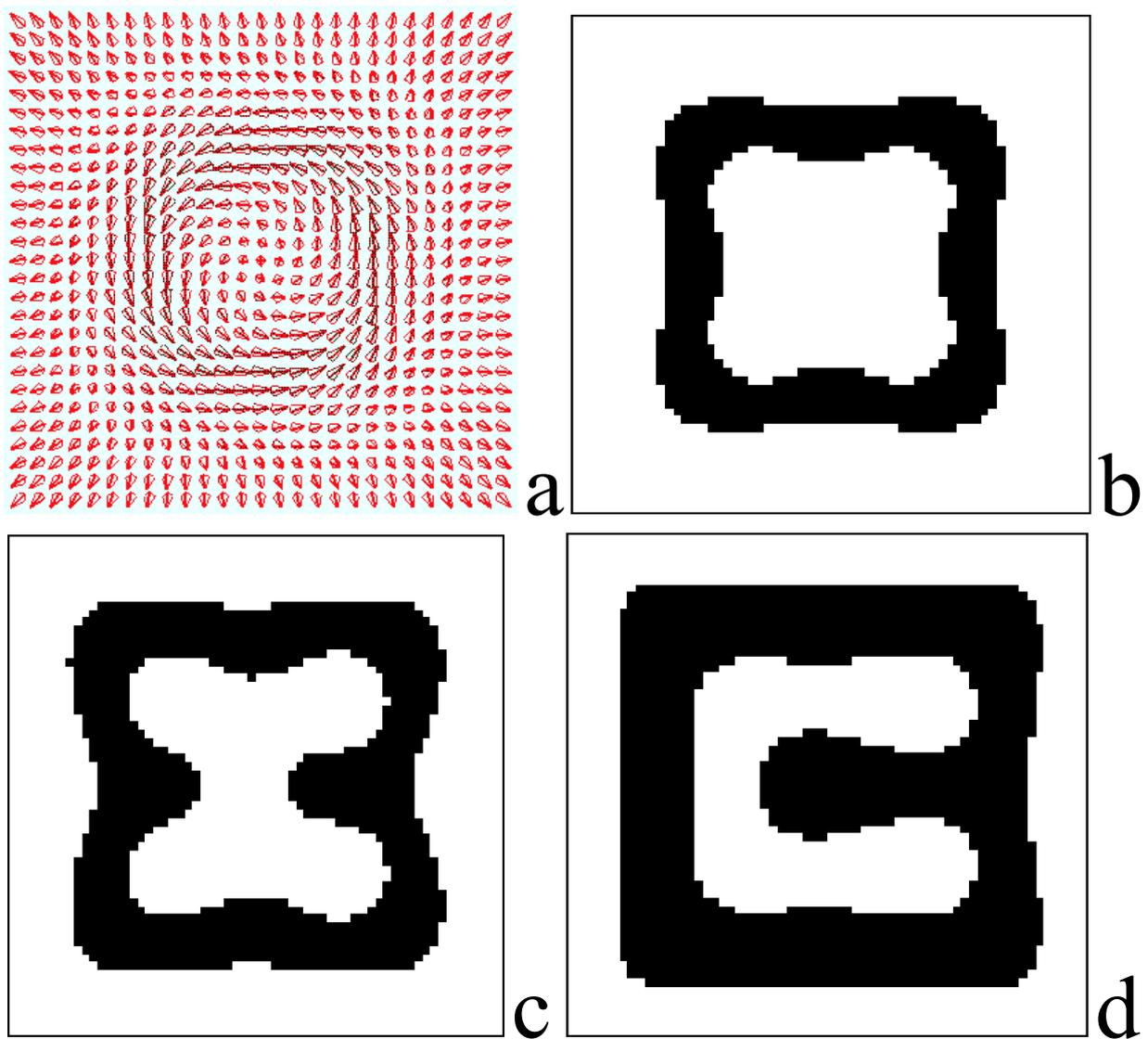


figure 6.9 : mécanisme de nucléation de domaines pour un champ appliqué perpendiculairement à la base d'un plot de $0.2 \mu\text{m}$ de côté et 23.3 nm de haut et des champs appliqués égaux à (a) 5 kOe , (b) 3 kOe , (c) 1.75 kOe et (d) 0 kOe . Dans les figures b à d, seule la composante perpendiculaire a été tracée.

A 50 nm, l'aimantation contenue dans les domaines de fermeture est du même ordre de grandeur que celle contenue dans les domaines à aimantation perpendiculaire. Cette situation s'écarte fortement de celle décrite par le modèle entraînant un fort désaccord entre les valeurs mesurées et calculées. Plus l'épaisseur des plots augmente, plus la contribution des domaines de fermeture devient petite et plus l'évaluation du champ de saturation est en accord avec la valeur expérimentale comme nous pouvons le constater sur la figure 6.10 (—○—).

Dans les deux modèles exposés ci-dessus, la diminution du champ de saturation perpendiculaire est toujours liée à la diminution du facteur de forme du plot. Le comportement du champ de saturation perpendiculaire dans les plots est donc inverse de celui d'une couche mince qui lui augmente avec l'épaisseur de la couche.

3.1.2. Variation du champ de nucléation perpendiculaire

La variation du champ de nucléation en fonction de l'épaisseur des plots est présentée dans la figure 6.11. Nous voyons qu'il diminue avec l'épaisseur des plots à partir de 6.7 kOe pour les plots de 50 nm pour se stabiliser à environ 4.0 kOe pour les plots d'épaisseur supérieure à 100 nm.

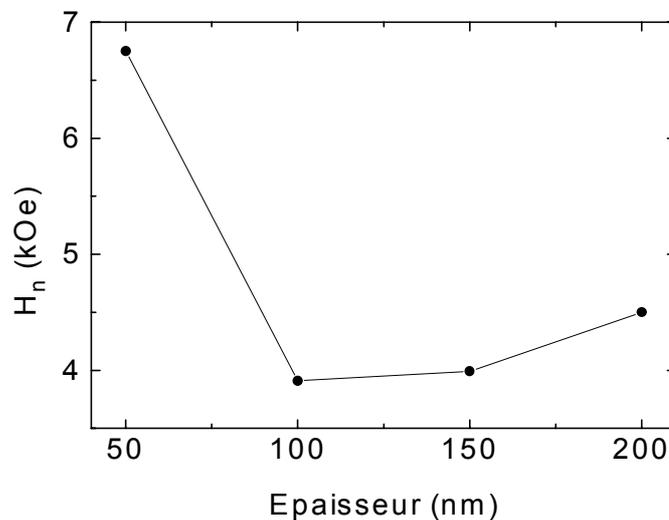


figure 6.11 : variation du champ de nucléation en fonction de l'épaisseur des plots (—●—).

Comme nous l'avons fait remarquer au début du paragraphe 3.1, le champ de nucléation est égal soit au champ magnétique pour lequel les bulles résiduelles subissent une déformation elliptique et se transforment en de courtes bandes (Annexe B) soit au champ pour lequel le domaine circulaire obtenu par « curling » se renverse. A l'aide des modèles développés pour les films infinis, il n'est

pas possible de reproduire le comportement du champ de nucléation en fonction de l'épaisseur des plots. C'est pourquoi, nous nous contenterons de donner une explication de la loi de variation à l'aide d'une analyse énergétique. Cette dernière repose sur l'égalité entre la variation d'énergie Zeeman à partir du champ de saturation et la somme des énergies de paroi et de champ démagnétisant. Il vient alors que

$$(H_s^\perp - H_n)V_{bulle} M_s = \sigma_w S_{bulle} + \Delta E_d^v(h) V_{bulle} \quad (6.5)$$

où

H_s^\perp et H_n sont les champs de saturation et nucléation perpendiculaires, V_{bulle} et S_{bulle} sont les volume et surface latérale du cylindre de la bulle nucléée, h est l'épaisseur du plot et ΔE_d^v est la variation d'énergie de champ démagnétisant par unité de volume pour le plot lorsqu'une bulle y est nucléée. L'équation (6.5) peut se mettre sous la forme

$$H_s^\perp - H_n = \frac{\sigma_w}{hM_s} + \frac{\Delta E_d^v(h)}{M_s} \quad (6.6)$$

D'après les calculs présentés dans l'annexe C, nous savons que la loi de variation de ΔE_d^v avec l'épaisseur du plot est une fonction décroissante de l'épaisseur. Ainsi, nous montrons que le champ de nucléation est une fonction décroissante de l'épaisseur du plot. L'explication de la saturation du champ de nucléation n'est pas pour autant trouvée. Cependant, à partir des cycles d'aimantation, il est difficile de définir sans ambiguïté le champ auquel nucléent les bulles car il est beaucoup moins marqué que dans le cas des couches de cobalt. C'est pourquoi, une erreur dans la détermination exacte du champ de nucléation est possible.

3.1.3. Variation de l'aimantation rémanente, M_r

L'interprétation de l'existence d'une aimantation rémanente est à nouveau liée à la structure en domaines mesurée en champ nul par microscopie de force magnétique. Comme nous allons le voir dans le paragraphe C, son origine est la même que celle qui a été exposée pour les couches de cobalt c'est à dire qu'elle est due à l'absence de connexions entre les bulles à l'état rémanent perpendiculaire. La valeur de l'aimantation rémanente, quasiment constante pour toutes les épaisseurs, est de l'ordre de 5% de l'aimantation à saturation des plots.

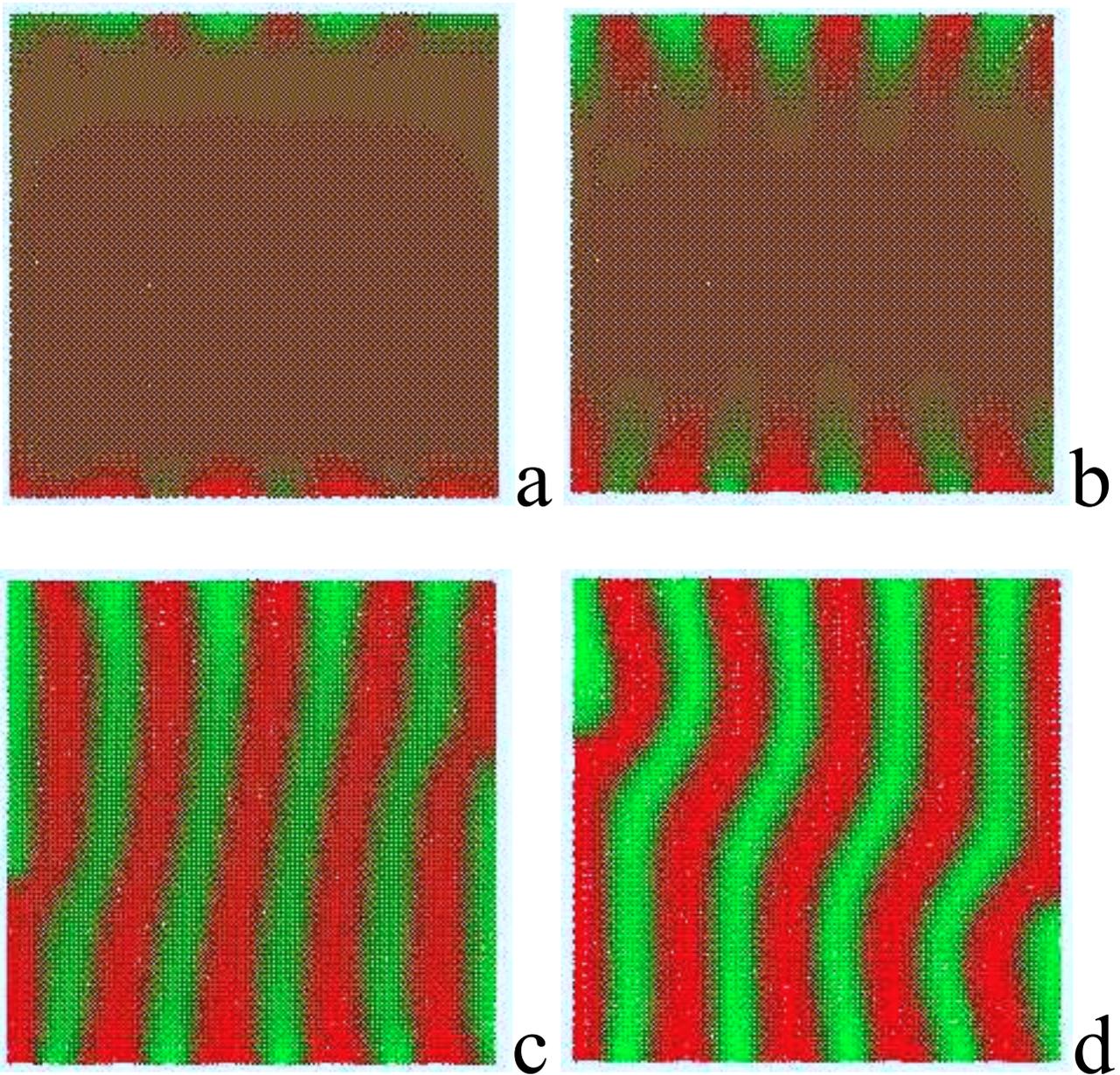


figure 6.12 : processus de nucléation et état rémanent planaire calculés pour un champ magnétique appliqué dans la base d'un plot de 35 nm d'épaisseur et de 0.45 μm de largeur. Les images représentent les structures en domaines pour des champs de (a) 4.5 kOe (b) 2.5 kOe (c) 1 kOe et (d) 0 kOe. Les couleurs rouge et respectivement verte représentent une aimantation perpendiculaire positive et respectivement négative.

3.2. Variation de l'aimantation avec le champ appliqué parallèlement à la couche

Le processus d'aimantation lorsque le champ magnétique est appliqué parallèlement à la base du plot est complètement différent de celui évoqué au paragraphe précédent. En effet, tout comme dans le cas d'une couche de cobalt, la courbe d'aimantation planaire est caractéristique d'une rotation d'aimantation cohérente pour des champs proches de la saturation décrite par Stoner et Wohlfarth dans le cas d'un échantillon monodomaine et par Muller dans le cas d'un échantillon comportant une structure en domaines [Mul 67]. C'est pourquoi, il est nécessaire d'utiliser une théorie différente de celle développée par Thiele, Kooy et Enz, Rhodes et Rowlands.

Afin de saisir toutes les subtilités des images MFM que nous allons présenter dans le paragraphe C de ce chapitre, nous avons décidé de simuler le comportement magnétique des plots dans cette géométrie à l'aide d'un code micromagnétique tridimensionnel. Le résultat de la simulation a été reporté dans la figure 6.12.

On part du champ de saturation positif où toute l'aimantation est orientée dans la direction du champ appliqué. Lorsque le champ décroît en dessous du champ de nucléation, une oscillation de la composante perpendiculaire d'aimantation est visible sur les côtés des plots perpendiculaires à la direction du champ appliqué. On peut immédiatement noter que l'aimantation au centre du plot reste toujours orientée dans la base du plot et que la composante perpendiculaire d'aimantation s'inverse d'un côté à l'autre du plot. Cet effet est lié aux interactions dipolaires entre charges de surface créées sur les côtés opposés et n'a donc pas été observé dans le cas des couches de cobalt en raison de l'éloignement des bords de la couche.

Plus le champ magnétique appliqué diminue, plus les oscillations de l'aimantation se propagent à l'intérieur du plot en réorientant la composante d'aimantation planaire perpendiculairement à la base du plot. Comme nous pouvons le voir sur la figure 6.12b pour un champ appliqué de 2.5 kOe, des bandes à aimantation positive se trouvent en regard avec des bandes à aimantation négative. Pour minimiser l'énergie de cette structure en domaines, les bandes de même « polarité » vont s'interconnecter entre elles pour former des domaines sous forme de S. Ainsi, en l'absence de champ appliqué, la structure en domaines est constituée de bandes en S à aimantation perpendiculaire séparées par des parois dont l'aimantation au centre est dirigée dans le sens du champ de saturation initial. Comme dans le cas des couches, nous constatons que l'aimantation rémanente est non nulle. Elle est à nouveau attribuée à la rémanence de paroi.

3.2.1. Variation du champ de saturation planaire

Nous avons évalué le champ de saturation planaire à l'aide du modèle de Muller étendu à des systèmes de forme ellipsoïdale [Mul 69]. Dans cette publication, Muller montre que la détermination du champ de saturation passe par la résolution d'un système d'équations dont les paramètres sont des constantes connues du matériau (M_s , K_1 et K_2) mais aussi des facteurs de champ démagnétisant du système étudié. Comme nous le montrons sur la figure 6.13 et dans le tableau 6.1, un bon accord entre les valeurs calculées et mesurées a pu être obtenu.

épaisseur (nm)	H_s (calculé) (kOe)	H_s (expérience) (kOe)
50	7.5	7.1
100	10.5	9.5
150	11.4	11.2
200	13.3	13.3

tableau 6.1 : comparaison des champs de saturation planaire obtenus par une mesure directe et par un calcul théorique.

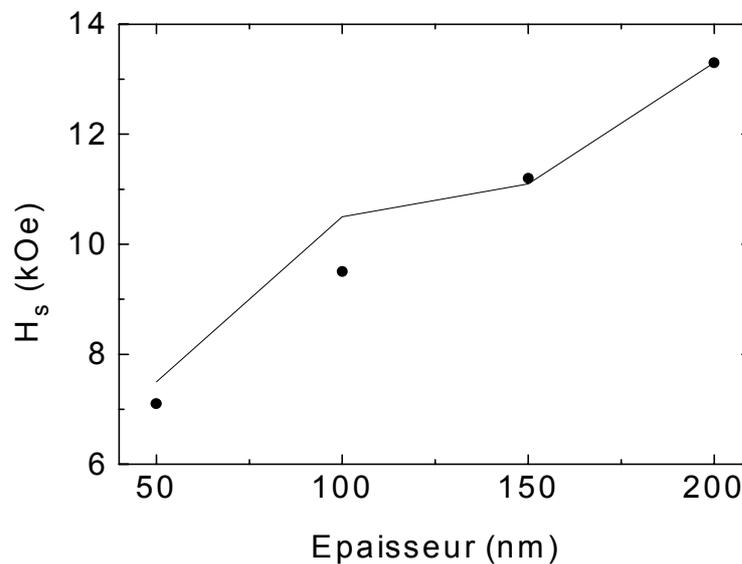


figure 6.13 : variation du champ de saturation planaire en fonction de l'épaisseur des plots de cobalt. La courbe théorique (—) est en bon accord avec les points expérimentaux (●).

3.2.2. Variation de l'aimantation rémanente planaire, M_r

La variation de l'aimantation rémanente planaire en fonction de l'épaisseur des plots est reportée sur la figure 6.14. Comme nous pouvons le constater, M_r décroît lorsque l'épaisseur du plot augmente comme nous l'avons déjà mis en évidence dans le cas des couches minces. L'origine de cette rémanence est attribuée à la rémanence de paroi tout comme dans les films de cobalt. Cependant, en comparaison avec les couches, sa valeur est beaucoup plus faible.

Cette réduction est liée à la diminution de la taille latérale de la couche et au rétrécissement du coeur de la paroi près des côtés des plots. En effet, pour minimiser l'énergie magnétostatique de la paroi lorsque celle-ci intercepte un côté du plot, la composante d'aimantation parallèle au côté du plot augmente réduisant ainsi l'étendue du coeur de la paroi. C'est pourquoi, la composante d'aimantation parallèlement à la direction du champ appliqué est diminuée. Lorsque le champ appliqué diminue, ce rétrécissement se propage dans le plot. Nous appellerons Λ la distance entre le côté du plot et l'intérieur du plot à partir de laquelle le rétrécissement disparaît et l la longueur d'une bande sous forme de S.

Dans le cas où $l \gg \Lambda$, c'est à dire dans le cas d'une couche mince, l'influence de la réduction de rémanence à cause de l'apparition du rétrécissement des parois est négligeable devant l'étendue de la paroi de Bloch et le modèle de rémanence de paroi développé pour les couches minces s'applique avec succès. Cependant, lorsque l et Λ sont du même ordre de grandeur, c'est à dire dans le cas des plots, la rémanence est fortement diminuée et le modèle, même s'il continue à décrire qualitativement l'évolution en épaisseur, ne permet plus d'obtenir des résultats quantitatifs.

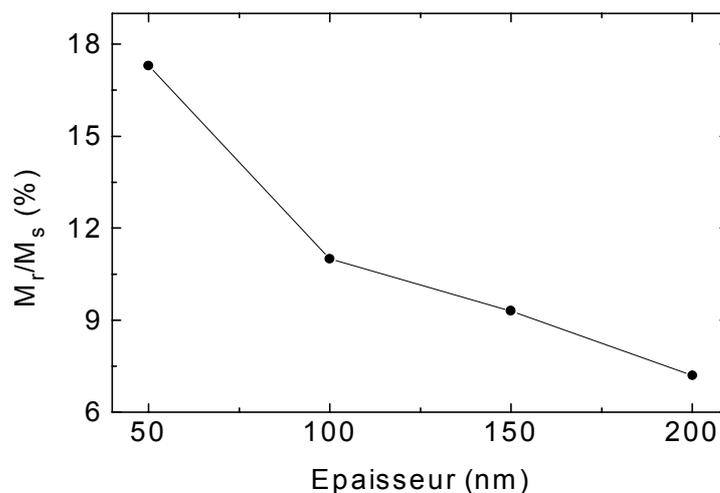


figure 6.14 : variation de l'aimantation rémanente planaire en fonction de l'épaisseur des plots.

3.3. Variation de l'aimantation avec le champ appliqué en fonction de la température

Nous avons également étudié l'évolution des courbes d'aimantation en fonction de la température. Nous ne présenterons ici que les courbes obtenues pour les plots de 150 nm d'épaisseur afin de pouvoir comparer les résultats avec ceux obtenus pour la couche de cobalt de même épaisseur.

Pour les deux cycles d'aimantation de cet échantillon, la descente en température a été réalisée sous un champ de 8 Teslas afin de mettre en évidence une éventuelle couche d'oxyde. Comme nous pouvons le constater sur les figures 6.15 et 6.16, les cycles d'aimantation ne sont pas décalés en champ, c'est à dire qu'ils restent centré autour du champ nul. Nous montrons ainsi que le rapport entre les volumes de cobalt oxydé et non oxydé est très petit.

On peut noter sur la figure 6.15, qui présente une comparaison des cycles d'aimantation obtenus en champ perpendiculaire à l'ambiante et à 4.2°K, que la forme du cycle reste inchangée mais que les valeurs des champs de saturation et nucléation ont diminué à basse température. Pour les mêmes raisons que celles qui ont été évoquées pour les couches de cobalt, cette diminution provient de l'augmentation de l'énergie de paroi lorsque la température diminue.

On peut noter sur la figure 6.16, qui présente une comparaison des cycles d'aimantation obtenus en champ planaire à l'ambiante et à 4.2°K, que la forme du cycle reste inchangée bien que la courbure du cycle diminue et que la valeur du champ de saturation augmente. Ces deux effets sont liés à l'augmentation des constantes d'anisotropie avec la diminution de la température. Nous utilisons à nouveau le modèle de Stoner-Wohlfarth pour montrer l'origine de cet effet. Le champ de saturation planaire est égal à

$$H_s^{//} = \frac{2}{M_s} (K_1^{eff} + 2K_2) \quad (6.7)$$

Dans le cas d'un plot uniformément aimanté, $K_1^{eff} = K_1 + 2\pi(N_{//} - N_{\perp}^{mono})M_s^2$ où N_{\perp}^{mono} est le facteur de champ démagnétisant perpendiculaire pour un plot monodomaine. Cependant, dans notre cas, la structure en domaines est constituée de bandes ce qui a pour effet de diminuer le champ démagnétisant perpendiculaire qui n'est pas égal à $4\pi N_{\perp}^{mono} M_s$ mais à $4\pi N_{\perp}^{multi} M_s$ où N_{\perp}^{multi} est le facteur de champ démagnétisant perpendiculaire d'une structure multidomaine. Ainsi, le champ de saturation parallèle est égal à

$$H_s^{//} = \frac{2}{M_s} (K_1 + 2K_2 + 2\pi(N_{//} - N_{\perp}^{multi})M_s^2) \quad (6.8)$$

et il augmente lorsque la température diminue.