HAL
open science

Nanostructures auto-assemblées : des systèmes modèles pour le micromagnétisme de parois magnétiques

Fabien Cheynis

To cite this version:

Fabien Cheynis. Nanostructures auto-assemblées : des systèmes modèles pour le micromagnétisme de parois magnétiques. Matière Condensée [cond-mat]. Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2007. Français. NNT : . tel-00261038

HAL Id: tel-00261038

https://theses.hal.science/tel-00261038

Submitted on 6 Mar 2008

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.

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

N° attribué par la bibliothèque

□□□□□□□□□□□□

THESE

pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE L'INP Grenoble

***Spécialité** : Physique*

préparée à l'Institut Néel CNRS-UJF

dans le cadre de **l'École Doctorale de Physique**

présentée et soutenue publiquement

par

Fabien Cheynis

le 7 décembre 2007

Nanostructures auto-assemblées : des systèmes modèles pour le micromagnétisme de parois magnétiques

Directeur de thèse : Olivier Fruchart
Co-directeur de thèse : Jean-Christophe Toussaint

Composition du jury :

M. Giancarlo Faini	Rapporteur
M. Olivier Fruchart	Directeur de thèse
M. François Montaigne	Examinateur
M. Laurent Ranno	Examinateur
M. André Thiaville	Rapporteur et Président
M. Jean-Christophe Toussaint	Co-directeur de thèse

Remerciements

Une thèse est souvent le fruit de nombreuses collaborations. Ma thèse ne fait pas exception à cette règle, loin s'en faut ! J'aimerais donc par ces quelques lignes remercier toutes les personnes avec qui j'ai apprécié travailler, j'espère simplement ne pas en oublier.

Tout d'abord je voudrais remercier mes encadrants : Olivier Fruchart pour son dynamisme à toutes épreuves, son efficacité, et la multitude de ses idées et Jean-Christophe Toussaint pour son énergie communicative, sa rigueur et pour sa capacité à allier recherche et enseignement. J'ai beaucoup appris à leur côté.

Je tiens à remercier les membres du Jury. En particulier je suis reconnaissant envers Giancarlo Faini et André Thiaville pour avoir accepté d'être rapporteur de mon travail de recherche. Je remercie également François Montaigne d'être venu de Nancy et de l'intérêt qu'il a porté à mon travail ainsi que Laurent Ranno pour ses remarques constructives.

Dans le long processus qui mène à la mesure physique, il y a tout en amont l'élaboration de l'échantillon. Je voudrais donc remercier Philippe David et Valérie Santonacci pour leur soutien sur le bâti de dépôt laser pulsé. Je tiens ensuite à remercier Helge Haas avec qui nous avons sué pour mettre au point le procédé de contactage de plots individuels et Thierry Fournier pour sa disponibilité, ses conseils judicieux et son expertise en nanofabrication. Merci également à Laurent Ranno et Wolfgang Wernsdorfer qui m'ont fait part de leur expertise en magnéto-transport, j'ai beaucoup appris à leur contact. Une pensée également pour Mehdi Amara pour m'avoir laissé sournoisement détourner le cryostat de magnéto-striction de son utilisation première pour pouvoir réaliser mes mesures de transport. Un grand merci au passage à Didier Dufeu et Denis Maillard pour leurs compétences et leur aide sur la canne de transport.

Je voudrais également remercier toute la joyeuse équipe d'Elettra : Rachid Belkhou pour nous avoir généreusement accordé du temps de faisceau, Nicolas Rougemaille avec qui nos routes se sont plusieurs fois croisées et qui je l'espère se croiseront encore et Gilles Cauchon pour avoir accepté de soutirer dans un dernier élan d'espoir les ultimes photons du faisceau avant la nouvelle injection lors de notre premier run de manip.

De l'autre côté de la barrière, il y a bien évidemment la fabuleuse équipe

des Lorentziens : Aurélien Massebœuf pour son dynamisme, sa sympathie et la maîtrise de son bébé, Pascale Bayle-Guillemaud et Alain Marty pour leurs conseils lorsque le retournement des domaines de fermeture de Néel se faisait timide. Dans ce projet, je dois également associer Laurent Cagnon avec qui nous avons essayé en vain d'attaquer par voie chimique le saphir... costaud comme substrat !

Il y a aussi les inconditionnels du repas de 11h30 et de la pause café qui s'en suit : Florent Ingwiller, Baptiste Carvello, Benjamin Canals, Fabien Romanens, Julien Robert, Anthony Rousseau, Nicolas Hadacek, ... Il y a également toutes les forces vives des différents laboratoires avec qui j'ai eu plaisir à discuter : Bogdana Borca, Yasmina Dahmane, Helga Szambolics, Mihai Miron, Pierre-Jean Zermatten, Evaggelos Kritsikis...

Pour terminer, j'aimerais remercier chaleureusement ma famille, la joyeuse bande des Drômois ainsi que mon Amoureuse pour leur soutien et leur présence notamment pendant la difficile période de fin de thèse.

Table des matières

Introduction générale **1**

I État de l'art des plots de Fe(110) **5**
I.A Croissance et structure des plots de Fe(110) 6
I.A.1 Techniques de croissance et de caractérisation 6
I.A.2 Éléments de croissance épitaxiale 11
I.A.3 Croissance épitaxiale et propriétés structurales des plots de Fe(110) 14
I.B Outils théoriques : introduction au micromagnétisme 16
I.B.1 Micromagnétisme et énergies 17
I.B.2 Parois dans les couches minces 22
I.B.3 Parois dans les nanostructures 26
I.C Configurations en domaines des plots de Fe(110) 28
I.D Configuration en parois des plots de Fe(110) : étude des domaines de fermeture de Néel par microscopie magnétique XMCD-PEEM 31

II Prédictions des simulations micromagnétiques **35**
II.A Présentation du modèle 36
II.B Parois asymétriques sous champ transverse : aspects énergétiques dans un modèle 2D 38
II.C Retournement et hystérésis des domaines de fermeture de Néel sous champ transverse 42
II.C.1 Démonstration du retournement des domaines de fermeture de Néel 42
II.C.2 Hystérésis associée au retournement des domaines de fermeture de Néel 43
II.C.3 Retournement des domaines de fermeture de Néel observable à rémanence 44
II.C.4 Retournement des domaines de fermeture de Néel sous une combinaison de champs transverse et perpendiculaire 46

III Mise en évidence expérimentale, à rémanence, du retournement des domaines de fermeture de Néel par XMCD-PEEM 49
III.A Microscopies de surface PEEM-LEEM et signal XMCD 50
III.A.1 Low-Energy Electron Microscopy 51
III.A.2 PhotoElectron Emission Microscopy - X-ray Magnetic Circular Dichroism 52
III.B Résultats expérimentaux 58
III.B.1 Protocole expérimental de l'étude 58
III.B.2 Retournement des domaines de fermeture de Néel . . . 60
III.B.3 Champs de retournement et considérations géométriques 61

IV Évolution, sous champ, des parois étudiées par microscopie de Lorentz 67
IV.A Microscopie de Lorentz : Principe et aspects instrumentaux . . 68
IV.A.1 Microscopie électronique à transmission 68
IV.A.2 Contrastes magnétiques et modes d'imagerie 70
IV.A.3 Préparation des échantillons 73
IV.B Résultats expérimentaux 74
IV.B.1 Hystérésis des domaines de fermeture de Néel 74
IV.B.2 Transition paroi-vortex 79

V Procédé de contactage de plots de Fe(110) individuels 87
V.A Lithographies et techniques de micro- nanofabrication 88
V.B Définition du dispositif de contactage 96
V.C Choix technologiques 98
V.D Lithographie électronique : aspects instrumentaux 100
V.E Optimisation des différents niveaux de lithographie 102
V.E.1 Présentation des échantillons 102
V.E.2 Contacts inférieurs 103
V.E.3 Niveau « trous » 111
V.E.4 Contacts supérieurs 122

VI Transport, sous champ et en température, dans un plot de Fe(110) individuellement contacté 125
VI.A Introduction au magnéto-transport 126
VI.B Signal physique mesuré et études préliminaires 130
VI.B.1 Plots de Fe(110), domaines de fermeture de Néel et signaux magnéto-résistifs 130
VI.B.2 Étude électrocinétique préliminaire 132
VI.B.3 Évaluation du signal de mesure 134
VI.C Montage expérimental et mesure 134

VI.D Résultats expérimentaux 139
VI.D.1 Caractérisation des arrivées de courant/tension 139
VI.D.2 Magnéto-transport dans des nanostructures individuelles 142
VI.D.3 Bilan des problèmes rencontrés, interprétations et solutions envisageables 145

Conclusion générale **149**

A Procédés de fabrication **153**

Glossaire **155**

Bibliographie **168**

Introduction générale

Le retournement d'aimantation est un thème d'étude central du magnétisme. Traditionnellement réalisé par application d'un champ magnétique, il consiste généralement en le renversement de domaines par rotation de l'aimantation ou déplacement de parois. Outre dans les aimants permanents, le renversement d'aimantation a été particulièrement étudié dans les couches minces car, d'une part, l'utilisation de microscopies magnétiques renseigne sur l'essentiel de la configuration magnétique, d'autre part la géométrie quasi-2D facilite la modélisation des domaines et parois. Dans le cas d'un renversement par déplacement de parois, on considère parfois celles-ci comme des objets à part entière, que l'on peut déplacer par application d'un champ magnétique[1] ou d'un courant électrique[2].

La structure interne des parois magnétiques a fait l'objet de nombreuses études[3], notamment dans les couches minces pour les raisons mentionnées ci-dessus. L'effet d'un champ magnétique sur cette structure interne a été envisagée et étudiée, par extension de l'effet d'un champ magnétique sur les domaines[4, 5]. Ces études peuvent cependant être délicates car sous l'effet d'un champ les parois peuvent se déplacer et donc échapper au champ d'analyse, avant de montrer un effet sur leur structure interne. Ceci limite notamment l'intensité et les directions dans lesquelles l'effet d'un champ magnétique peut être étudié. Le piégeage des parois par des défauts ou une microstructure n'est pas une alternative satisfaisante car alors les propriétés du matériau aux abords de la paroi sont modifiées et peu fiables.

Pour ces études, il semble plus prometteur d'utiliser des nanostructures plates typiquement microniques, constituées de matériaux relativement doux. Ces structures présentent en effet, pour une taille latérale et une épaisseur suffisantes[6, 7, 8], une configuration dite *à fermeture de flux*, présentant une ou un nombre très limité de parois magnétiques. Citons par exemple l'état dit *vortex* dans des plots circulaires[9, 10] et les configurations dites *Landau* ou *losange* dans des plots allongés[11, 12, 13]. Ainsi, des études récentes ont mis en évidence le retournement du cœur de vortex magnétiques dans des nanostructures circulaires par application d'un champ perpendiculaire de forte

intensité[14, 15] ou par application d'un champ planaire de moindre intensité pulsé[16] ou oscillant dans le domaine des hyperfréquences[17]. Notons que les premières études analogues utilisant un courant polarisé en spin ont été publiées cette année[18].

Nous présentons ici les résultats d'une étude, à caractère fondamental, portant sur le contrôle par application d'un champ magnétique des propriétés internes d'un objet plus complexe que les vortex adressés jusqu'à présent : une paroi de Bloch asymétrique. En particulier, nous nous sommes intéressés au retournement d'une composante interne de la paroi de Bloch asymétrique : les *domaines de fermeture de Néel*. Nous avons également étudié un cas de transition entre un vortex et une paroi. Au sein de l'équipe Micro- Nanomagnétisme de l'Institut Néel, ce projet se situe dans la continuité de la thèse de Pierre-Olivier Jubert[19] et des études ultérieures[12, 20] portant sur les propriétés de croissance et micromagnétiques hors-champ de plots microniques de Fe(110) auto-assemblés, de forme allongée.

Dans le chapitre I de ce manuscrit, nous rappelons les propriétés de croissance épitaxiale ainsi que les propriétés structurales du système Fe/cc(110) (cc=Mo,W) dans le régime où des plots facettés auto-assemblés de Fe(110) sont obtenus. Après avoir introduit les notions de micromagnétisme requises pour la compréhension de la suite du manuscrit, nous présentons les différentes configurations micromagnétiques observées au cours de la thèse de Pierre-Olivier Jubert[19] dans les plots de Fe(110). Une attention particulière est apportée à la configuration de *Landau* caractérisée par la présence d'une *paroi de Bloch asymétrique*.

Le chapitre II présente les prédictions des configurations micromagnétiques de plots de Fe sous champ obtenues par simulations micromagnétiques. Ces simulations ont été réalisées en collaboration avec Jean-Christophe Toussaint. Dans le chapitre III, nous détaillons une étude par microscopie magnétique XMCD-PEEM sur le retournement, observé à rémanence et de manière statistique sur une assemblée de plots, des domaines de fermeture de Néel. Ces expériences ont été menées sur la ligne de lumière *Nanospectroscopy* du synchrotron *Elettra* (Trieste, Italie) sur l'instrument PEEM/LEEM français. Une étude afin de corréler champ de retournement et paramètres géométriques (hauteur, rapport d'aspect) a été menée.

Le chapitre IV traite des résultats obtenus sur l'évolution des configurations micromagnétiques de plots de Fe(110) individuels, sous champ, par microscopie électronique à transmission en mode imagerie magnétique (dite *microscopie de Lorentz*). Nous avons également étudié la transition entre une paroi de domaine de longueur finie et un vortex magnétique. Ce travail a été

réalisé en collaboration avec Aurélien Massebœuf, Pascale Bayle-Guillemaud et Alain Marty du CEA \ DRMFC \ SP2M - Grenoble.

Les chapitres V et VI traitent de mon activité centrale de recherche au cours de cette thèse. L'idée originale de ce projet était d'étudier la dépendance en température du phénomène de retournement des domaines de fermeture de Néel sur des plots individuels. Pour ce faire une procédure de contactage en mode *4 pointes* basée sur la lithographie électronique a été développée en collaboration avec Helge Haas et Thierry Fournier au sein de la plateforme Nanofab. Les étapes du développement de cette procédure sont développées dans le chapitre V. Le chapitre VI présente les résultats obtenus sur les propriétés de transport sous champ et en température de plots de Fe(110) individuels.

Chapitre I

État de l'art des plots de Fe(110)

Sommaire

I.A Croissance et structure des plots de Fe(110) . . 6

I.A.1 Techniques de croissance et de caractérisation . . . 6

I.A.1.a Dépôt laser pulsé (PLD) 6

I.A.1.b Diffraction d'électrons rapides en incidence rasante (RHEED) 9

I.A.1.c Microscope à force atomique (AFM) . . . 11

I.A.2 Éléments de croissance épitaxiale 11

I.A.2.a Paramètres régissant la croissance 12

I.A.2.b Modes de croissance 13

I.A.3 Croissance épitaxiale et propriétés structurales des plots de Fe(110) 14

I.B Outils théoriques : introduction au micromagnétisme 16

I.B.1 Micromagnétisme et énergies 17

I.B.2 Parois dans les couches minces 22

I.B.3 Parois dans les nanostructures 26

I.C Configurations en domaines des plots de Fe(110) 28

I.D Configuration en parois des plots de Fe(110) : étude des domaines de fermeture de Néel par microscopie magnétique XMCD-PEEM 31

La croissance des couches et nanostructures épitaxiées de Fe/Mo(110) et Fe/W(110) et leurs propriétés magnétiques (hors champ pour les nanostructures) est un sujet arrivé à maturité au sein de l'équipe Micro- et Nanomagnétisme (MNM) de l'Institut Néel[19, 21, 22]. Au cours de ma thèse l'essentiel de mon travail a traité des plots de Fe(110) auto-asssemblés. La présente partie de ce manuscrit sera donc l'occasion de présenter l'état de l'art de ce système au sein de notre équipe ainsi que plus largement au sein de la communauté internationale. En particulier, après une présentation des techniques de croissance sous ultra-vide et de caractérisation structurale, la croissance épitaxiale ainsi que les propriétés structurales des plots de Fe(110) seront abordées. Leurs configurations en domaines et parois magnétiques seront ensuite détaillées en ayant préalablement introduit des notions du micromagnétisme.

I.A Croissance et structure des plots de Fe(110)

I.A.1 Techniques de croissance et de caractérisation

Des informations complémentaires aux éléments apportés dans cette partie notamment concernant les techniques du vide et d'analyses des surfaces/interfaces se trouvent dans les références [23, 24].

I.A.1.a Dépôt laser pulsé (PLD)

Chambre ultra-vide(UHV) L'ensemble ultra-vide (*Ultra-High Vacuum, UHV*) utilisé au cours de ma thèse pour le dépôt des échantillons est constitué de trois enceintes distinctes (Fig. I.1). La première est dédiée au dépôt à proprement parler. Elle contient un porte-échantillon monté sur un four résistif situé à l'arrière de l'échantillon (l'échantillon peut ainsi être chauffé jusqu'à 950 °C), un cache automatisé permettant la réalisation de dépôts en coin, une micro-balance à quartz donnant une estimation de la vitesse de dépôt, un ensemble de quatre porte-cibles, également automatisé ce qui autorise la réalisation de multicouches, et un système de caractérisation RHEED (*Reflection High-Energy Electron Diffraction*) permettant une étude cristallographique de la surface de l'échantillon (cf. I.A.1.b).

La seconde enceinte est consacrée au stockage, à la préparation et à l'analyse des échantillons. Elle comporte un carrousel autorisant le stockage de huit cibles ou échantillons, un système de spectroscopie d'électrons Auger (*Auger Electron Spectroscopy*, AES) permettant la quantification des éléments chimiques présents en surface. Afin de réaliser un recuit des échantillons, un four de même conception que celui de l'enceinte de dépôt est disposé sur

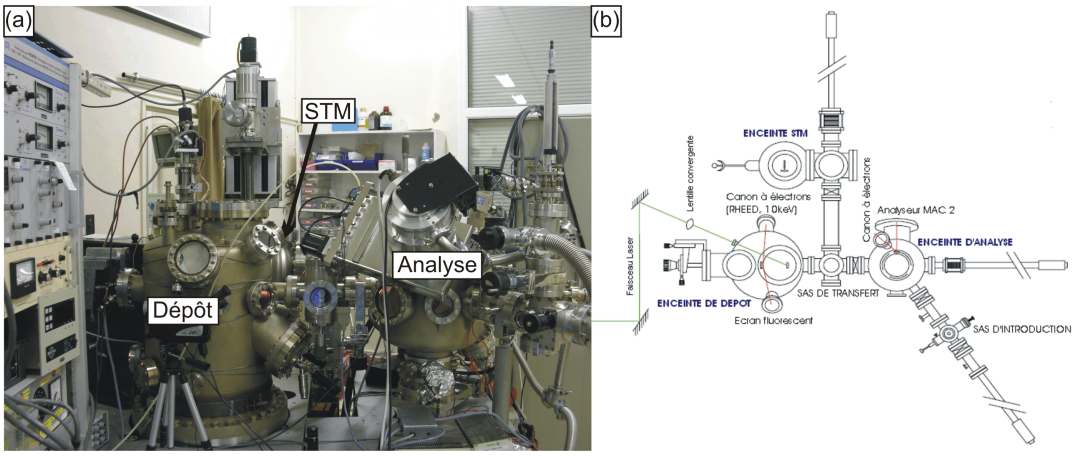

FIG. I.1 – Photographie (a) et schéma - vue de dessus - (b) des chambres UHV.

l'un des porte-échantillons et permet un chauffage allant jusqu'à 950 °C. La température des échantillons est mesurée sur les deux fours présents dans la chambre d'évaporation et d'analyse à l'aide d'un thermocouple. Ce dernier n'étant pas en contact direct avec le substrat, une différence de température existe entre la température du thermocouple et celle du substrat. La correspondance entre ces deux températures a été calibrée à l'aide d'un pyromètre. Un canon à ions permet le décapage des échantillons. La troisième enceinte est dédiée à la caractérisation par Microscopie à Effet Tunnel (*Scanning Tunneling Microscopy*, STM).

Le transfert des cibles et échantillons d'une enceinte à l'autre est assuré par un ensemble de cannes magnétiques manuelles. Enfin, la présence d'un sas permet l'introduction des échantillons et des cibles dans la chambre d'analyse, un pompage secondaire de quelques heures, à l'aide d'une pompe primaire sèche et d'une pompe turbo-moléculaire, est nécessaire pour minimiser la dégradation du vide dans l'enceinte d'analyse. En ce qui concerne le vide dans les enceintes, il est typiquement de l'ordre de 5×10^{-11} Torr dans l'enceinte de dépôt (avant dépôt) et de 4×10^{-10} Torr dans la chambre d'analyse. En cours de dépôt, le vide typique est de $1 - 2 \times 10^{-10}$ Torr. Ce vide est assuré par la présence dans chaque chambre d'une pompe ionique à sublimateur de titane. De plus, la présence d'une garde d'azote liquide permet éventuellement d'améliorer le vide de la chambre d'évaporation en adsorbant les contaminants.

Présentation de la technique de dépôt Le dépôt laser pulsé (*Pulsed Laser Deposition, PLD*) est un procédé de dépôt permettant l'obtention de

couches minces. Lors du dépôt, la surface d'une cible est amenée localement au-dessus de sa température de fusion sur une épaisseur de 100 à 1000 nm par une impulsion laser, de sorte qu'une partie des atomes de la surface se trouvent évaporés. La largeur de l'impulsion laser est de 10 ns pour une fréquence de 10 Hz. Le laser utilisé dans la chambre UHV est un laser Nd-YAG doublé en fréquence ($\lambda = 532$ nm), d'une puissance moyenne maximale de 1.5 W, soit une puissance instantanée maximale de 15 MW durant les impulsions.

Lors d'une impulsion, la phase d'évaporation des atomes de la cible se déroule schématiquement en trois étapes :

1. absorption de l'énergie du faisceau par les atomes de la cible et évaporation thermique d'atomes individuels. Il existe un seuil d'énergie par unité de surface de cible, seuil en dessous duquel l'évaporation n'a pas lieu. Ce seuil dépend de la capacité calorifique et de la conductivité thermique du matériau constituant la cible. Pratiquement, la densité d'énergie par unité de surface est réglée en focalisant ou défocalisant le faisceau sur la cible à l'aide d'une lentille. Cependant, ce réglage influe sur deux effets qui jouent un rôle inverse : en focalisant le faisceau sur la cible, la densité d'énergie par unité de surface augmente mais la surface d'évaporation diminue.

2. interaction entre le faisceau laser et le gaz d'atomes évaporés. Cette interaction conduit à la formation d'un gaz d'atomes partiellement ionisés ou plasma, également appelé *plume*. L'inconvénient de cette interaction est la diminution de la densité d'énergie effective par unité de surface puisqu'une partie de l'énergie fournie par le faisceau est absorbée par les atomes de la plume. On observe donc une saturation du taux d'ablation en fonction de la puissance laser.

3. expansion adiabatique du gaz partiellement ionisé.

Spécificités du PLD Le PLD présente plusieurs différences par rapport à la méthode plus largement utilisée permettant d'obtenir des échantillons mono-cristallins : l'épitaxie par jet moléculaire (*Molecular Beam Epitaxy*, MBE) et dont il est parfois utile de tirer parti pour faciliter la croissance. D'une part, compte-tenu de l'interaction plasma-laser, les atomes et ions évaporés possèdent une énergie comprise entre 1 eV et potentiellement plusieurs centaines d'eV ce qui favorise leur diffusion une fois adsorbés et, de ce fait, l'épitaxie (dans notre cas, les particules incidentes ont une énergie comprise entre 0.1 et 10 eV)[25, 26]. Dans le cadre du procédé PLD, il est ainsi possible de jouer sur un autre paramètre que la température pour favoriser la diffusion

des adatomes (ce qui peut, le cas échéant, permettre de contourner le problème de formation d'alliage). De plus, le caractère pulsé de l'ablation induit une densité de sites de nucléation plus importante pour le PLD que pour la MBE[27, 28]. En effet, à vitesse de dépôt moyenne équivalente (ex. : 1 Å/min), le taux de dépôt instantané du PLD, lors des impulsions, est beaucoup plus fort (ex. : $\simeq 1\,\mu$m/s) que celui de la MBE. Cette forte densité de sites de nucléation ne favorise pas la croissance par flux de marches mais permet plus facilement de stabiliser des phases métastables. Par ailleurs, puisque le gaz de particules est partiellement ionisé, il est possible d'introduire des dispositifs électromagnétiques à des fins de déviation ou de concentration, citons, par exemple, le travail effectué par Clarisse Ducruet au laboratoire Louis Néel sur ce sujet[29]. Enfin, la création d'un plasma provoquée par le laser assure une conservation correcte de la stoechiométrie. L'ensemble de ces différences justifie le fait que le PLD est souvent utilisé pour des composés complexes, notamment les oxydes épitaxiés. Il est utilisé moins communément pour les métaux, mais permet néanmoins une bonne épitaxie[27].

Le PLD possède également des inconvénients notamment la projection possible sur l'échantillon de gouttelettes ou de débris solides du matériau constituant la cible due à une forte pression de radiation sur la surface fondue[30]. Différentes méthodes permettent de réduire ces risques d'éjections. Tout d'abord, il est essentiel d'optimiser la densité d'énergie. En effet une forte densité d'énergie par unité de surface favorise la projection de gouttelettes microniques mais, inversement, une pression de radiation proche du seuil d'ablation (donc faible) est à l'origine de projections de débris submicroniques. Ensuite, il est possible d'utiliser des dispositifs mécaniques ou électromagnétiques pour séparer ces débris du gaz d'atomes partiellement ionisé par déviation. Enfin, l'utilisation de laser à faible longueur d'onde permet de réduire les risques de projections[30].

I.A.1.b Diffraction d'électrons rapides en incidence rasante (RHEED)

La Diffraction d'Electrons Rapides en Incidence Rasante (*Reflection High Energy Electron Diffraction*, RHEED) est une technique, *in situ*, permettant d'avoir accès, après ou en cours de croissance, à l'ordre cristallin d'une surface et notamment de déterminer son paramètre de maille. De ce fait, une étude des phénomènes de croissance, reconstruction de surface, de relaxation et de la présence de différentes orientations cristallographiques est rendue possible.

Un canon à électrons génère un flux d'électrons à forte énergie (10 keV pour notre bâti) et les envoie en incidence rasante (0.5 ° à 5 °) sur la surface à étudier. Puisque l'incidence du flux d'électrons est rasante, la composante du vecteur d'onde incident perpendiculaire à la surface est très faible. Or

cette composante est directement reliée à la profondeur de pénétration des électrons. On en conclut donc que le faisceau incident ne pénétrera que faiblement dans l'échantillon (le libre parcours moyen des électrons est de quelques dizaines d'angström) et que le faisceau diffracté caractérisera essentiellement le dernier plan atomique de l'échantillon.

Par ailleurs, il est possible de définir pour une surface un réseau réciproque. La condition de diffraction reste toujours $\mathbf{q} \cdot \mathbf{d} = 2\pi n$, où $\mathbf{d}$ est le vecteur distance entre deux rangées d'atomes de surface. Dans la mesure où le vecteur $\mathbf{d}$ n'a pas de composante perpendiculaire à la surface, la relation de diffraction n'impose pas de conditions sur la composante perpendiculaire à la surface du vecteur $\mathbf{q}$. Le réseau réciproque de la surface est donc constitué de droites, appelées *tiges de troncature*, perpendiculaires à la surface de l'échantillon. Satisfaisant au critère de diffusion élastique, la diffraction sera observée lorsque des lignes du réseau réciproque de la surface rencontreront la sphère d'Ewald. Comme cette dernière possède un rayon très important ($k >> q$, où k est la norme du vecteur d'onde incidente), elle est presque tangente aux lignes et leur intersection n'est pas ponctuelle. On s'attend donc à observer des clichés dont les éléments de base ne sont plus des points (ou des tâches) mais des segments allongés, d'autant plus fins et courts que la surface sondée est de bonne qualité cristalline.

Enfin notons que, comme dans toute technique de diffraction « non idéale », la longueur de cohérence du faisceau incident est finie. Dans notre cas, du fait de la taille du faisceau, de sa divergence et de la taille de l'échantillon, les structures de période supérieure à typiquement 10 nm ne pourront être résolues. Par la méthode RHEED, nous serons donc insensibles à un désordre dont la taille caractéristique est supérieure à cette valeur. Par ailleurs, la précision sur la valeur des paramètres de maille déterminés à partir de clichés RHEED atteint difficilement un pour-cent de la valeur théorique dans notre cas. Pour des caractérisations plus fines, des études par diffraction de rayons X sont nécessaires.

Lors de la diffraction sur une surface, ce sont les rangées d'atomes perpendiculaires au vecteur de diffusion qui diffractent. Dans un échantillon massif, ce sont les plans d'atomes perpendiculaires à ce même vecteur de diffusion. La « loi » : l'échantillon est de dimension n et l'élément perpendiculaire au vecteur de diffusion responsable de la diffraction est de dimension $n - 1$ est donc respectée pour une surface. Dans le cas des surfaces à symétrie tétragonale, ce qui sera notre cas, le vecteur de diffusion est aussi selon une direction du réseau réel. Les réseaux de surface s'indexent donc naturellement à partir des réseaux du massif. La direction du faisceau d'électrons (perpendiculaire à celle du vecteur de diffusion) est appelée *azimut*.

I.A.1.c Microscope à force atomique (AFM)

Le microscope à force atomique (*Atomic Force Microscope*, AFM)[31, 23], est un microscope de la famille des « Scanning Probe Microscopes » (SPM) ou microscopes à pointe et à balayage et permet d'obtenir des images de l'échantillon à grande échelle (qq μm jusqu'à environ 80 μm). Afin de déterminer la topographie de la surface, l'AFM sonde les forces de Van der Waals qui s'exercent entre la pointe et la surface. Pour cela deux modes d'acquisition sont possibles : le mode non-contact et le mode contact.

Le premier mode exploite le comportement d'oscillation du levier. En première approximation, on peut assimiler le levier à une poutre (certes de dimensions réduites !) encastrée à une extrémité. Il existe une fréquence d'excitation pour laquelle la poutre rentre en résonance. En fonction de la distance à laquelle se trouve la pointe de la surface, la composante verticale de la force de Van der Waals est attractive ou répulsive, ce qui modifie sa fréquence de résonance et l'amplitude d'oscillation à fréquence d'excitation fixée. Dans le second mode, la pointe est amenée au contact de la surface et le levier subit une déflexion du fait des forces répulsives. Une boucle de régulation sur l'amplitude de vibration du levier ou la force exercée sur la pointe, selon le mode d'imagerie, permet d'asservir l'altitude de l'échantillon. La topographie de la surface est ainsi obtenue à partir du signal de rétroaction.

Il est utile de noter que le mode contact comporte un risque accru de dégradation de la pointe lorsque la surface présente de fortes irrégularités (par exemple des plots de quelques centaines de nanomètres de hauteur) du fait de la proximité pointe-surface et du gain fini de la boucle d'asservissement. D'une manière générale, la qualité de l'image obtenue par AFM (ou tout autre SPM) dépend de la finesse de la pointe. Si le rayon de courbure de la pointe est supérieur à la taille des détails à observer, alors des effets de pointes modifient la topographie observée. Ces effets incluent : dédoublement d'un détail, marche atomique non verticale, ...

Dans notre cas, la détection de la déflexion de la pointe est réalisée par l'intermédiaire de photodiodes (Fig. I.2). Un faisceau laser réfléchi par le levier de la pointe illumine deux photodiodes. La variation de la différence de tension entre les deux photodiodes traduit une variation de la déflexion de la pointe.

I.A.2 Éléments de croissance épitaxiale

Pour quelques techniques d'élaboration de couches minces, il est possible dans certaines conditions (pression, température, ...) d'obtenir une couche monocristalline par dépôt sur une surface elle-même monocristalline : c'est

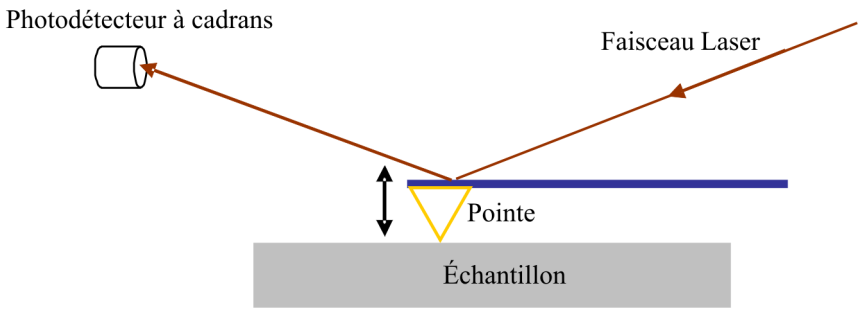

FIG. I.2 – Schéma de l'AFM et du principe de détection utilisés pour cette étude.

la croissance épitaxiale. On appelle alors *relation d'épitaxie*, la relation qui existe entre les axes cristallins des deux monocristaux

I.A.2.a Paramètres régissant la croissance

Deux paramètres sont essentiels dans la croissance cristalline. (1) Les énergies de surface (interfaces substrat/vide, γ_s et couche/vide, γ_c), et d'interface (couche/substrat, γ_{int}) reliées, au niveau macroscopique, à la notion de mouillage de l'élément déposé sur le substrat. (2) Le désaccord de paramètre de maille, voire de symétrie, entre couche et substrat, implique un coût en énergie élastique dans le système.

En considérant les énergies de surface seules, le mouillage est favorisé lorsque :

$$\Delta\gamma = \gamma_s - \gamma_c - \gamma_{int} > 0, \tag{I.1}$$

Considérons maintenant le désaccord de paramètre de maille, qui peut être défini par la relation suivante :

$$f = \frac{a_c - a_s}{a_s}, \tag{I.2}$$

où a_c et a_s sont respectivement les paramètres de maille, dans une direction du plan de croissance où les mailles cristallines des deux matériaux coïncident, de l'élément à déposer et du substrat. Notons que pour des matériaux de même symétrie d'épitaxie, f est isotrope. Analysons les conséquences du désaccord paramétrique, dans une image d'équilibre thermodynamique. Lors du premier stade de la croissance, le coût de la création de dislocations est

trop fort et la couche minimise son énergie élastique totale en adoptant le paramètre de maille du substrat ; on parle de *pseudomorphisme*. Cependant, l'énergie ainsi stockée croît proportionnellement avec l'épaisseur déposée, de sorte qu'à partir d'une certaine épaisseur, dite critique (e_c), il est préférable d'introduire des dislocations souvent à l'interface couche/substrat. Le paramètre de maille de la couche *relaxe* alors, progressivement, vers le paramètre du matériau massif. Dans leur étude[32], Jesser et Kuhlmann-Wilsdorf ont démontré, dans le cas d'une couche de Pt sur Au, que la déformation d'une couche décroît de manière exponentielle avec l'épaisseur de cette même couche au-delà de l'épaisseur critique e_c.

I.A.2.b Modes de croissance

Une revue des modes de croissance de couches métalliques ferromagnétiques sur des substrats métalliques non magnétiques peut être trouvée dans la référence [33]. D'un point de vue macroscopique, trois modes de croissance peuvent être observés lorsque le système est à l'équilibre thermodynamique (Fig. I.3). Tout d'abord, le mode Frank-Van der Merwe[34] (a) : la couche se dépose plan atomique par plan atomique sur une épaisseur théoriquement infinie. A l'inverse se trouve le mode Volmer-Weber[35] (c) où des structures tridimensionnelles apparaissent dès le début du dépôt. Enfin, il existe un mode intermédiaire ou mode Stranski-Krastanov[36] (b) où, après un ou plusieurs plans atomiques pseudomorphes, des structures tridimensionnelles apparaissent. Schématiquement, lorsque le désaccord paramétrique est grand, les modes (b) et (c) sont favorisés. Lorsque $\Delta\gamma > 0$, les modes (a) et (b) sont alors favorisés.

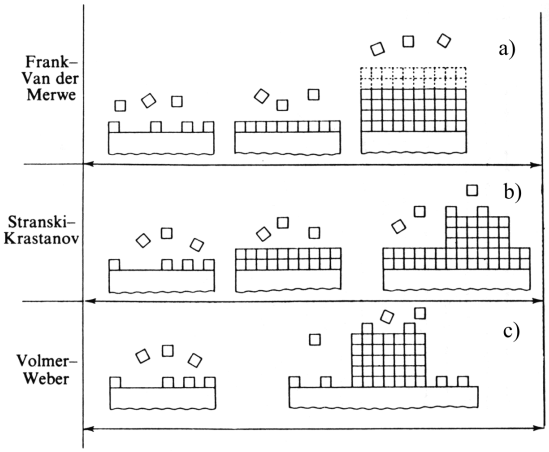

FIG. I.3 – Les trois modes de croissance épitaxiale[37].

Les phénomènes microscopiques impliqués dans la croissance épitaxiale ne seront pas développés dans ce manuscrit. Une revue détaillée de ces phénomènes peut être trouvée dans les références [38, 39].

I.A.3 Croissance épitaxiale et propriétés structurales des plots de Fe(110)

Dans la gamme de température 325-575 °C, la croissance épitaxiale de Fe/W(110) et Fe/Mo(110) est de type *Stranski-Krastanov* : des plots tridimensionnels auto-assemblés croissent sur une couche de Fe pseudomorphe. Les conditions de dépôt ont été optimisées par Pierre-Olivier Jubert [19, 40] au cours de sa thèse. Une revue détaillée des modes de croissance du système Fe(110) étudié au laboratoire et en particulier des plots de Fe(110) utilisés au cours de cette thèse peut être trouvée dans [22].

Les plots de Fe(110) sont facettés et allongés selon la direction [001] du substrat, indépendamment de la direction des marches atomiques du substrat. La microscopie AFM permet d'imager dans l'espace direct ces facettes [Fig. I.4(a)] qui correspondent à des plans cristallographiques, comme l'indique la présence de réseaux de tiges de diffraction sur la figure I.4(b). Les clichés RHEED permettent en outre d'indexer les facettes à partir des angles mesurés entre les différents réseaux de tiges de diffraction [Fig. I.4(b)]. Les angles des facettes attendues pour différents azimuts avec le plan (110) sont résumés tableau I.1 (cf. Appendice II de [22] pour le calcul détaillé).

Azimut [001]		Azimut $[1\bar{1}0]$		Azimut $[1\bar{1}\bar{1}]$	
Plan	Angle	Plan	Angle	Plan	Angle
(240)	$\simeq 18.43°$	$(33\bar{2})$	$\simeq 25.23°$	$(23\bar{1})$	$\simeq 19.11°$
(130)	$\simeq 26.57°$	$(22\bar{2})$	$\simeq 35.26°$	$(12\bar{1})$	30°
(020)	45°	$(11\bar{2})$	$\simeq 54.74°$	$(13\bar{2})$	$\simeq 40.89°$
				$(01\bar{1})$	60°

Tab. I.1 – Angles des facettes cristallographiques attendues avec le plan (110) en fonction de l'azimut .

Cette forme facettée est en accord avec la construction géométrique de *Wulf-Kaishev* qui prédit la forme d'un cristal déposé sur un substrat *à l'équilibre thermodynamique*[41, 42, 23]. Cette construction établit que les différentes familles i de plans cristallographiques vérifient la relation :

$$\frac{\gamma_{\mathrm{i}}}{h_{\mathrm{i}}} = \frac{\gamma_{\mathrm{int}} - \gamma_{\mathrm{s}}}{h_{\mathrm{int}}} = \mathrm{Const.} \tag{I.3}$$

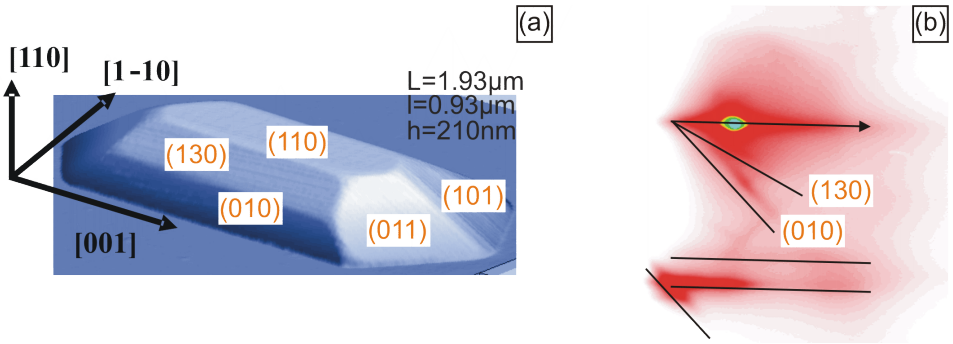

FIG. I.4 – Image AFM d'un plot Fe/W(110) obtenu pour 15 nm de Fe déposés à 530 °C sur une couche tampon de W(110) (a). Image RHEED obtenue pour 3 nm de Fe déposés sur Mo(110) à 530 °C (b). Le cliché est légèrement désorienté par rapport à l'azimut [001] afin de mettre en évidence les réseaux de tiges de diffraction associés aux facettes {020} et {130}. La flèche blanche indique le plan d'incidence avec une tache intense correspondant au faisceau réfléchi. Les autres lignes blanches soulignent les différentes tiges de diffraction observées.

où γ_i et h_i sont l'énergie de surface et la distance entre le centre du cristal et la famille i de plans cristallographiques considérée (Fig. I.5). D'après le théorème de Wulf-Kaishev, les facettes qui constituent le plot sont donc celles dont l'énergie de surface est la plus faible.

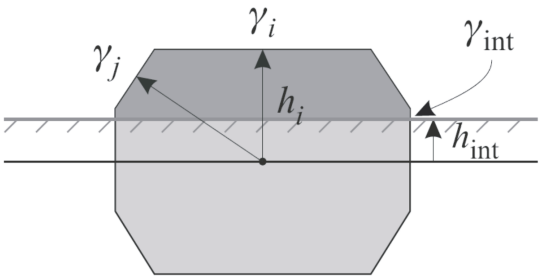

FIG. I.5 – Illustration de la construction de Wulf-Kaishev. La ligne hachurée représente la surface du substrat sur laquelle repose le cristal (zone sombre).

Typiquement, un échantillon déposé pendant ma thèse a été réalisé de la manière suivante :

- Dégazage du substrat de saphir $Al_20_3(11\bar{2}0)$ dans la chambre d'analyse pendant 45 min à ≃750 °C.
- Dépôt d'une couche tampon de typiquement 8 nm de Mo(110) ou W(110) à ≃200 °C suivi d'un recuit à ≃820 °C

– Dépôt de Fe à typiquement 530 °C avec un taux de couverture $\Theta = 1 - 10$ nm.
– Dépôt d'une couche de couverture (3-5 nm) à température ambiante.

La figure I.6 représente des plots de Fe obtenus pour une couche de Fe/W(110) de 15 nm déposée à 530 °C.

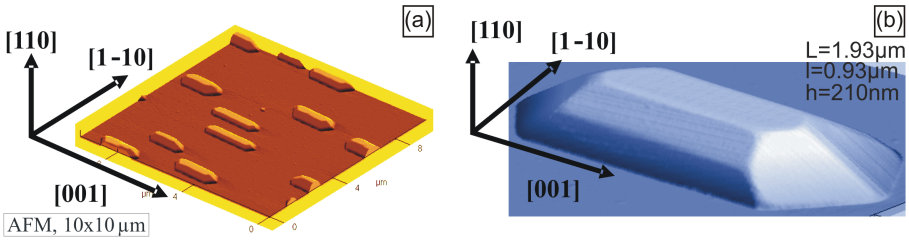

FIG. I.6 – Images AFM d'une assemblée de plots Fe/W(110) (a), d'un plot individuel (b) obtenues pour un dépôt de 15 nm Fe à 530 °C sur une couche tampon de W(110).

La densité surfacique de plots décroît avec la température de dépôt. Elle évolue typiquement de $\simeq 0.5\,\mu\text{m}^{-2}$ pour un dépôt à 325 °C à $\simeq 0.05\,\mu\text{m}^{-2}$ pour un dépôt à 575 °C. Dans la gamme de taux de couverture $\Theta = 1-10$ nm, la densité de plots évolue peu au cours du dépôt de sorte que la croissance des plots se déroule de manière homothétique : chaque dimension du plot (longueur L, largeur l, hauteur h) croît comme $\sqrt[3]{\Theta}$ [Fig. I.7]. Notons que les dimensions L, l et h ainsi que les rapports d'aspect latéraux $r = L/l$ et verticaux $\eta = h/l$ varient de manière significative d'un échantillon à l'autre ce qui suggère que la température de dépôt n'est pas le seul paramètre intervenant dans la nucléation des plots mais que d'autres paramètres tels que la densité de marches atomiques du substrat et leur orientation peuvent intervenir[43].

I.B Outils théoriques : introduction au micromagnétisme

Les plots de Fe(110) auxquels nous nous sommes intéressés dans cette étude ont des dimensions typiquement tout juste sub-microniques, soit suffisamment grandes pour que les configurations magnétiques à rémanence soient multi-domaines. En effet au-delà de qqs 10 nm de hauteur, on retrouve les propriétés du matériau massif à savoir pour le Fe, celles d'un matériau relativement doux. La théorie permettant de décrire en détail les configurations en domaines d'objets magnétiques est appelée *micromagnétisme*. Une hypothèse fondamentale de cette théorie est d'approximer l'échantillon par un *mi-*

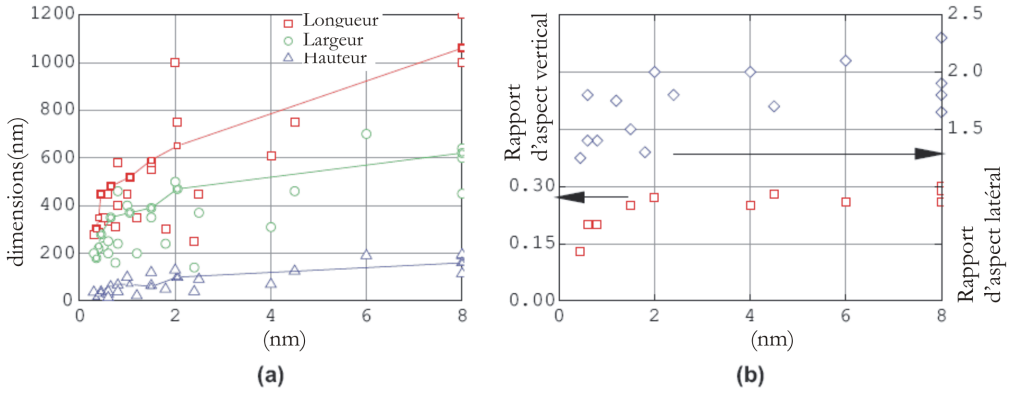

FIG. I.7 – Evolution en fonction du taux de couverture Θ des dimensions - L, l, h - (a) et des rapport d'aspects verticaux, $\eta = h/l$, et latéraux, $r = L/l$, (b) des plots de Fe(110).

lieu continu dans lequel les grandeurs caractéristiques du système (aimantation $\mathbf{M}$, champ appliqué $\mathbf{H}_{\text{app}}$, anisotropies, ...) varient lentement à l'échelle atomique. En particulier le module de l'aimantation est supposé constant, uniforme et égal à l'aimantation spontanée : $\mathbf{M} = \mathbf{M}_{\text{s}}$. On introduit alors généralement un vecteur unitaire, $\mathbf{m}$, colinéaire à $\mathbf{M}_{\text{s}}$ tel que $\mathbf{M}_{\text{s}} = M_{\text{s}}\mathbf{m}$. Une présentation exhaustive du micromagnétisme peut être trouvée dans les ouvrages de référence suivants : [5, 44]. Bien que l'essentiel des informations rassemblées dans cette partie soit tiré de ces ouvrages, des références aux articles historiques sont incluses.

I.B.1 Micromagnétisme et énergies

Les configurations magnétiques statiques et dynamiques d'un système sont liées à la tendance à la minimisation de l'énergie libre de ce système. Les principaux termes énergétiques intervenant dans les configurations micromagnétiques des plots de Fe(110) sont introduits dans cette section. Enfin les équations permettant de prédire, notamment numériquement (cf. chap. II), les configurations d'équilibres statiques (équation de Brown) et les propriétés dynamiques (équation de Landau-Lifshitz-Gilbert) sont introduites.

Interaction d'échange Dans un matériaux ferromagnétique, l'interaction d'échange tend à aligner parallèlement entre eux les moments magnétiques. Cette interaction est de caractère électrostatique (interaction coulombienne entre charges électriques) associé au principe d'exclusion de Pauli (deux électrons ne peuvent être dans le même état quantique). En mécanique quantique,

l'interaction d'échange peut être représentée par l'hamiltonien dit de Heisenberg représentant une assemblée finie de moments magnétiques localisés :

$$H = -\sum_{<i,j>}^{P} J_{i,j}\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \tag{I.4}$$

où la somme est réalisée sur l'ensemble des paires de plus proches voisins ($< i, j >$) et $J_{i,j}$ est appelée *intégrale d'échange* entre deux moments magnétiques i et j.

Il est possible de démontrer que dans l'*approximation des milieux continus*, l'énergie d'échange, E_{ech}, s'écrit sous la forme :

$$E_{\text{ech}} = A \iiint [(\mathbf{grad} m_{\text{x}})^2 + (\mathbf{grad} m_{\text{y}})^2 + (\mathbf{grad} m_{\text{z}})^2] \text{d}V \tag{I.5}$$

où A est la *constante d'échange*, grandeur intrinsèque à chaque matériau et reliée aux $J_{i,j}$.

L'équation I.5 met clairement en évidence que toute variation locale de l'orientation de l'aimantation contribue de manière positive à l'intégrand augmentant ainsi l'énergie libre du système.

Anisotropie magnétocristalline Les moments magnétiques interagissent avec leur environnement atomique via le *couplage spin-orbite*. Cet environnement est caractérisé par les symétries du cristal. Un moment magnétique ne sera donc pas soumis aux mêmes interactions selon son orientation par rapport aux directions cristallines : on parle d'*anisotropie magnétocristalline*. En particulier, certaines directions cristallographiques sont énergétiquement favorables, on parle de *directions de facile aimantation*. L'expression de l'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline, E_{mc}, dépend des symétries du cristal. Dans le cas d'un système cubique comme le Fe, cette énergie prend la forme :

$$E_{\text{mc}} = \iiint \left[K_1 \left(m_{\text{x}}^2 m_{\text{y}}^2 + m_{\text{x}}^2 m_{\text{z}}^2 + m_{\text{y}}^2 m_{\text{z}}^2\right) + K_2 m_{\text{x}}^2 m_{\text{y}}^2 m_{\text{z}}^2 + \cdots\right] \text{d}V \tag{I.6}$$

où K_1, K_2 sont les constantes d'anisotropie magnétocristallines, intrinsèques à chaque matériau et les axes x, y, z sont choisis selon les axes du cube. Dans cette expression les termes d'ordres supérieurs ont été négligés.

Énergie Zeeman L'énergie Zeeman correspond à l'interaction entre l'aimantation $\mathbf{m}$ et le champ magnétique appliqué $\mathbf{H}_{\text{app}}$:

$$E_{\mathrm{Z}} = -\mu_0 M_{\mathrm{s}} \iiint \mathbf{H}_{\mathrm{app}} \cdot \mathbf{m} \, \mathrm{d}V \tag{I.7}$$

Ce terme est minimisé lorsque l'aimantation est parallèle au champ appliqué.

Énergie démagnétisante - Interaction dipolaire Dans l'approche coulombienne de la magnétostatique des milieux magnétiques[45], on introduit, par analogie avec l'électrostatique, des charges magnétiques de volume ρ_{m} et de surface σ_{m} induites par la présence d'aimantation au sein du matériau :

$$\rho_{\mathrm{m}} = -\mathrm{div}\ \mathbf{m} \tag{I.8}$$

$$\sigma_{\mathrm{m}} = \mathbf{m} \cdot \mathbf{n} \tag{I.9}$$

où $\mathbf{n}$ est la normale sortante à la surface de l'échantillon.

Ces charges magnétiques génèrent un potentiel scalaire :

$$\Phi_{\mathrm{d}}(\mathbf{r}) = \frac{M_{\mathrm{s}}}{4\pi} \left[\iiint \frac{\rho_{\mathrm{m}}(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \mathrm{d}V' + \iint \frac{\sigma_{\mathrm{m}}(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \mathrm{d}S' \right] \tag{I.10}$$

duquel dérive un champ appelé *champ dipolaire*, $\mathbf{H}_{\mathrm{d}} = -\mathbf{grad}\Phi_{\mathrm{d}}(\mathbf{r})$. Soit,

$$H_{\mathrm{d}}(\mathbf{r}) = \frac{M_{\mathrm{s}}}{4\pi} \left[\iiint \frac{(\mathbf{r} - \mathbf{r}')\rho_{\mathrm{m}}(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^3} \mathrm{d}V' + \iint \frac{(\mathbf{r} - \mathbf{r}')\sigma_{\mathrm{m}}(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^3} \mathrm{d}S' \right] \tag{I.11}$$

Dans le cas particulier d'un échantillon ellipsoïdal uniformément aimanté, les contributions magnétiques et géométriques du champ démagnétisant peuvent être découplées. Le champ démagnétisant est alors uniforme et s'écrit alors sous la forme :

$$\mathbf{H}_{\mathrm{d}} = -\mathbf{N} \cdot \mathbf{M} \tag{I.12}$$

où $\mathbf{N}$ est le tenseur des coefficients de champ démagnétisant.

Le terme *démagnétisant* prend tout son sens sous cette forme simplifiée puisque le champ créé s'oppose à l'aimantation. Le tenseur $\mathbf{N}$ ne dépend que de la forme de l'échantillon. Le tenseur des coefficients de champ démagnétisant est de trace égale à 1. Si les axes principaux de l'ellipsoïde sont selon les vecteurs $\mathbf{x}$, $\mathbf{y}$, $\mathbf{x}$, $N_{\mathrm{x}} + N_{\mathrm{y}} + N_{\mathrm{z}} = 1$. Pour être complet notons que, jusqu'à récemment, la relation I.12 était valable dans le cas d'échantillons dont les surfaces étaient de degré inférieur ou égal à 2[46]. L'ellipsoïde étant la

seule géométrie avec une surface de degré 2 à être d'extension finie, le raccourci était souvent fait dans la littérature. Une approche récente[47] basée sur l'analyse de Fourier a néanmoins établi que dans le cas d'échantillons uniformément aimantés de forme quelconque.

$$< \mathbf{H}_\mathrm{d} > = -\mathbf{N} \cdot \mathbf{M} \tag{I.13}$$

où $< H_\mathrm{d} >$ est la valeur moyenne du champ dipolaire intégré sur le volume de l'échantillon.

Dans tous les cas l'*énergie démagnétisante*, E_d, est définie par la relation :

$$E_\mathrm{d} = -\frac{1}{2}\mu_0 \iiint_{\acute{e}chantillon} \mathbf{H}_\mathrm{d} \cdot \mathbf{M} \, \mathrm{d}V \tag{I.14}$$

Sous cette forme, l'énergie démagnétisante est similaire au terme d'énergie Zeeman, le champ dipolaire jouant alors le rôle d'un champ effectif. Néanmoins il est important de noter que ce champ effectif *est créé par le matériau* et qu'il *agit sur lui-même*. En chaque point de l'échantillon le champ démagnétisant est en effet la somme de contributions infinitésimales provenant de toutes les régions de l'échantillon [éq. I.10]. Le facteur 1/2 devant l'intégrale est la trace de cette « auto-interaction » (on parle de *self-energy* en anglais ou énergie propre). Contrairement aux énergies d'échange et d'anisotropie introduites précédemment, l'énergie démagnétisante correspond à une interaction à longue portée.

Dans le cas d'une couche mince infinie uniformément aimantée hors du plan ($N_\mathrm{x} = N_\mathrm{y} = 0$ et $N_\mathrm{z} = 1$), $\mathbf{H}_\mathrm{d} = -\mathbf{M}_\mathrm{s}$ et $E_\mathrm{d} = \frac{1}{2}\mu_0 M_\mathrm{s}^2 V$. On introduit alors généralement K_d= $\frac{1}{2}\mu_0 M_\mathrm{s}^2$ comme la densité d'énergie démagnétisante maximale stockée dans un échantillon.

Grandeurs caractéristiques du micromagnétisme La configuration micromagnétique fondamentale d'un système est le résultat de la compétition entre les différentes énergies en jeu. A la différence des autres termes énergétiques, l'énergie démagnétisante ne favorise pas une aimantation uniforme[44]. Dans certaines conditions liées aux propriétés intrinsèques du matériau et aux dimensions de l'échantillon, il se peut que la configuration d'équilibre corresponde à la formation de régions où l'orientation de l'aimantation est uniforme, cette orientation variant d'une région à une autre : on parle de *domaines magnétiques* séparés par des *parois de domaines*. Différentes grandeurs caractéristiques sont introduites. Elles résultent de l'équilibre de termes d'énergie pris deux à deux dans des cas simples :

▷ **La largeur de paroi de Bloch**, l_{Bloch}

Une définition de la largeur de paroi de Bloch, dans le cas d'un échantillon à anisotropie magnéto-cristalline uniaxiale, caractérisée par le coefficient K, est $l_{\text{Bloch}}= \pi\sqrt{\frac{A}{K}}$. Cette quantité est pertinente pour les situations où les termes d'échange et d'anisotropie sont dominants (ex. : la paroi de Bloch dans un matériau massif).

▷ **La longueur d'échange**, L_{ech}

Par analogie à la largeur de paroi de Bloch, on définit la longueur d'échange comme $L_{\text{ech}}= \pi\sqrt{\frac{A}{K_{\text{d}}}} = \pi\sqrt{\frac{A}{\frac{1}{2}\mu_0 M_s^2}}$. Cette grandeur est pertinente pour les situations où les termes d'échange et d'énergie démagnétisante prédominent (ex. : le vortex magnétique).

▷ **Le facteur de qualité**, Q

Ce facteur, défini comme $Q= \frac{K}{K_{\text{d}}}$, caractérise les configurations pour lesquelles l'anisotropie magnéto-cristalline et l'énergie démagnétisante sont prépondérantes (ex. : les domaines dans les couches minces à anisotropie perpendiculaire).

Les équations du micromagnétisme Comme nous l'avons vu précédemment, quatre énergies principales contribuent à l'énergie libre totale du système :

$$E_{\text{tot}} = E_{\text{ech}} + E_{\text{mc}} + E_{\text{Z}} + E_{\text{d}} \tag{I.15}$$

D'autres termes énergétiques, notamment de surfaces/interfaces, peuvent intervenir dans la détermination de la configuration micromagnétique du système. Néanmoins l'épaisseur des plots de Fe(110) (typiquement 100 nm) est bien supérieure aux épaisseurs auxquelles la transition entre un régime *couche mince* où les surfaces/interfaces dominent et un régime *matériau massif* se déroule. En effet, dans des systèmes tels que Co/Au[48] et Fe/W[49], cette transition se manifeste par une réorientation de l'aimantation hors plan - dans le plan (Co/Au) et dans le plan (Fe/W), respectivement, pour des épaisseurs de ∼4 MC, où une *monocouche* (MC) correspond à la quantité d'atomes nécessaire à la formation d'un plan atomique dans un matériau massif, et ∼10 nm, respectivement. Les effets de surfaces/interfaces peuvent donc être négligés en première approximation dans les plots de Fe(110). De même les effets de magnéto-élastiques n'ont pas été pris en compte.

Par un calcul variationnel (cf. [44] p. 173), il est possible de démontrer que la configuration micromagnétique d'énergie minimale peut être déterminée par la résolution de l'équation de Brown[50] :

$$\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} = 0, \tag{I.16}$$

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = \frac{2A}{\mu_0 M_{\text{s}}} \Delta \mathbf{m} + \mathbf{H}_{\text{app}} + \mathbf{H}_{\text{d}} - \frac{1}{\mu_0 M_{\text{s}}} \frac{\partial e_{\text{mc}}}{\partial \mathbf{m}} \tag{I.17}$$

où e_{mc} est la densité d'énergie magnétocristalline, $\partial e_{\text{mc}}/\partial \mathbf{m}$ est une notation pour un vecteur dont les coordonnées, dans un repère cartésien, sont $\partial e_{\text{mc}}/\partial m_{\text{x}}$, $\partial e_{\text{mc}}/\partial m_{\text{y}}$, $\partial e_{\text{mc}}/\partial m_{\text{z}}$.

La relation I.16 traduit le fait qu'à l'équilibre statique, le couple exercé par le champ effectif, $\mathbf{H}_{\text{eff}}$, sur l'aimantation, $\mathbf{m}$, doit s'annuler. Ce champ effectif est une fonction de $\mathbf{m}$, d'où la difficulté pour résoudre numériquement ce genre d'équations.

La dynamique de l'aimantation peut être obtenue à partir de la précession de l'aimantation dans le champ effectif : $\dot{\mathbf{m}} = -\gamma \mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}$, où $\dot{\mathbf{m}}$ est la dérivée de $\mathbf{m}$ par rapport au temps et où γ est le rapport gyromagnétique (> 0). Néanmoins cette expression ne permet pas de décrire les phénomènes de dissipation observés expérimentalement et qui permettent d'atteindre un état d'équilibre. Un terme d'amortissement est donc introduit de manière phénoménologique pour mener à l'équation de Gilbert proposée en 1955[51, 52] :

$$\dot{\mathbf{m}} = -\gamma_{\text{G}} \mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \alpha_{\text{G}} \mathbf{m} \times \dot{\mathbf{m}} \tag{I.18}$$

Cette expression est équivalente à l'équation proposée en 1935 par Landau et Lifshitz[53] :

$$\dot{\mathbf{m}} = -\gamma_{\text{LL}} \mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} - \alpha_{\text{LL}} \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}), \tag{I.19}$$

de sorte que le terme d'*équation de Landau-Lifshitz-Gilbert* est maintenant passé dans la littérature. La correspondance des coefficients est : $\gamma_{\text{LL}} = \gamma_{\text{G}}/(1 + \alpha_{\text{G}}^2)$ et $\alpha_{\text{LL}} = \alpha_{\text{G}} \gamma_{\text{G}}/(1 + \alpha_{\text{G}}^2)$.

I.B.2 Parois dans les couches minces

Dans la partie précédente, nous avons évoqué le fait que pour des raisons de minimisation de l'énergie, un système magnétique pouvait s'organiser en domaines de différentes orientations d'aimantation séparés par des parois où la variation de l'aimantation est rapide. Nous détaillons ici les différentes parois observées.

Paroi de Bloch symétrique Dans un matériau massif à anisotropie magnétocristalline uniaxiale, la paroi de plus faible énergie est la *paroi de Bloch à 180°*, schématisée sur la figure I.8 (a). Cette paroi est caractérisée par une rotation de l'aimantation de 180 ° dans le plan de la paroi. Il est possible de démontrer que cet arrangement **ne crée pas de charges magnétiques de volume** car div $\mathbf{m} = 0$. Les seules énergies en jeu sont donc E_{ech} et E_{mc}. Par un calcul unidimensionnel, on démontre que la création d'une telle paroi de largeur $l_{\text{Bloch}} = \pi\sqrt{A/K}$, induit un coût énergétique par unité de surface égal à $4\sqrt{AK}$.

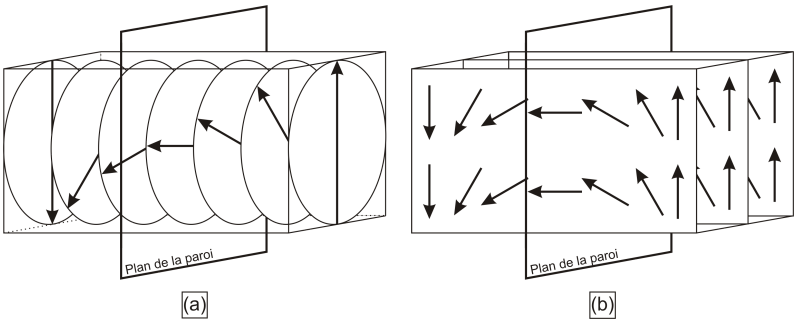

FIG. I.8 – Illustration de la paroi de Bloch à 180 ° (a) et de Néel à 180 ° (b).

Paroi de Néel symétrique Dans le cas des couches minces à aimantation planaire, la paroi de Bloch n'est plus la configuration d'aimantation énergétiquement favorable lorsque l'épaisseur du matériau magnétique devient comparable à l_{Bloch}. En effet la rotation de l'aimantation hors du plan de l'échantillon créerait des charges magnétiques de surface. Le système magnétique préfère une rotation de l'aimantation dans le plan de la couche : c'est la *paroi dite de Néel* [Fig. I.8 (b)], qui fut en effet le premier à prédire ce changement du plan de rotation de l'aimantation en fonction de l'épaisseur de la couche[54]. Pour cela, il considère un modèle simplifié de la paroi, modélisée par un cylindre elliptique de largeur a et de hauteur e (Fig. I.9), cette hauteur correspondant également à l'épaisseur de la couche mince. Pour la paroi de Bloch, le facteur démagnétisant vertical pertinent est le facteur vertical, $N_{\text{Bloch}} = a/(a+e)$, alors que le facteur démagnétisant horizontal, $N_{\text{Néel}} = e/(a+e)$, l'est dans le cas d'une paroi de Néel. L'énergie démagnétisante d'une paroi de Néel est donc plus faible que celle d'une paroi de Bloch lorsque $a > e$.

Parois asymétriques Dans les paragraphes précédents, nous avons vu que la paroi de Bloch était privilégiée dans les couches d'épaisseur infinie car elle

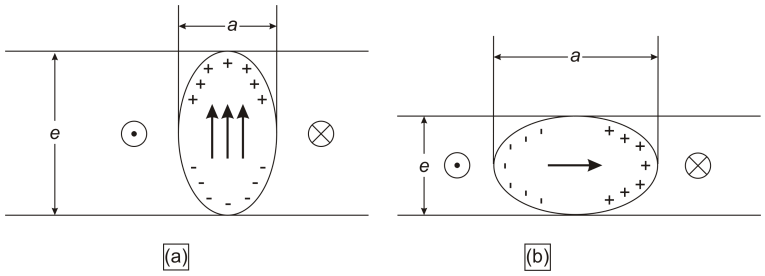

FIG. I.9 – Illustration des notations utilisées dans le modèle de Néel[54] pour la paroi de Bloch (a) et pour la paroi de Néel (b).

n'engendrait pas de charge magnétique. Dans les couches minces, la paroi de Néel est favorisée au détriment de la paroi de Bloch, cette dernière générant des charges de surface aux interfaces matériau/substrat et matériau/vide. Ces deux parois sont des modèles simplifiés (unidimensionnels) qui permettent de rendre compte des grandes tendances. Dans la réalité, les parois sont plus complexes.

En particulier, dans une paroi de Bloch, une structure interne bidimensionnelle apparaît afin de minimiser l'énergie démagnétisante. Pour les raisons évoquées dans les matériaux massifs, le cœur de ces parois reste de type Bloch, soit à aimantation perpendiculaire. Néanmoins à proximité des surfaces de la couche, la composante de l'aimantation perpendiculaire au plan du substrat diminue et la paroi de type Bloch évolue vers une paroi de type Néel. Ces régions de la couche où l'aimantation tourne dans le plan de la couche afin de minimiser les charges magnétiques de surface sont couramment appelées *domaines de fermeture de Néel*. De plus ces domaines de fermeture se décalent latéralement par rapport au cœur de la paroi pour minimiser les charges de volume dans le domaine de fermeture de Néel. Ceci a pour la première fois été prédit lorsque Labonte eu l'idée de relâcher la contrainte de symétrie dans le calcul numérique de profil bidimensionnel d'une paroi de Bloch en couche mince[55]. Le terme de *Néel cap* traduit en français par *domaine de fermeture de Néel* est apparu, à notre connaissance, au plus tard en 1996-1997[56, 57]. Considérons la transition entre paroi de Bloch et de Néel. Lorsque l'épaisseur de la couche se réduit, les deux domaines de fermeture de Néel sont fortement couplés antiparallèlement [Fig. I.10 (a)]. On parle alors de paroi de vortex du fait de sa section. Lorsque l'épaisseur est encore plus réduite, l'état de plus basse énergie devient celui avec des domaines de fermeture de Néel parallèles. On parle alors de *paroi de Néel asymétrique*[58, 59, 60] [Fig. I.10 (b)] car l'aimantation du cœur de la paroi redevient plan lorsque l'épaisseur est réduite, pour aboutir à une paroi de Néel simple, purement planaire. Notons

que la transition entre parois de Bloch et de Néel asymétrique est de premier ordre (donc abrupte et pouvant impliquer une hystérésis).

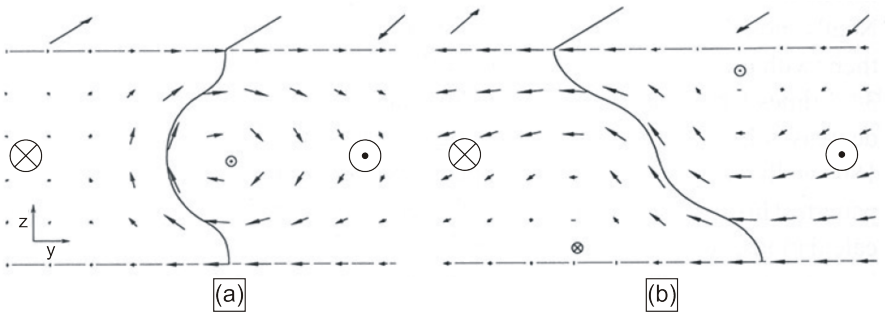

FIG. I.10 – Vue en coupe d'une paroi de Bloch asymétrique (a) et d'une paroi de Néel asymétrique (b) obtenues par simulations micromagnétiques. Le cœur des parois est localisé par les lignes noires (définies par les isosurfaces telles que $m_{\mathrm{x}} = 0$)[5].

Énergies de parois et champ transverse Le coût énergétique d'une paroi magnétique, calculé pour une couche de Permalloy ($M_s \simeq 8 \times 10^6$ A/m, $Q = 2.5 \times 10^{-4}$), en fonction de l'épaisseur de la couche considérée est représenté en figure I.11 (a). Dans la limite des faibles épaisseurs et à champ appliqué nul, on retrouve que la paroi de Néel symétrique est la configuration la plus favorable dans la limite des faibles épaisseurs par rapport à la paroi de Bloch. On observe également l'apparition d'une asymétrie dans la paroi de Néel lorsque l'épaisseur de la couche augmente. On note par ailleurs que le domaine d'existence d'une paroi de Néel asymétrique à champ nul est marginal. La figure I.11 (b) présente le diagramme de phase des parois dans une couche de Permalloy en fonction du champ transverse appliqué et de l'épaisseur de la couche. Sous champ transverse, on vérifie notamment que la paroi de Néel est énergétiquement favorable, pour toute épaisseur de film, lorsque le champ appliqué dépasse $h = \mu_0 M_{\mathrm{s}} H_{\mathrm{app}}/2K = 0.4$. Dans un soucis de clarté, il convient de mentionner que la paroi « cross-tie » présentée dans la figure I.11 est en fait un ensemble de parois de Néel $\leq 90\,^\circ$ se substituant à une paroi de Néel à $180\,^\circ$. L'énergie dipolaire associée à une paroi de Néel $\leq 90\,^\circ$ est en effet inférieure à celle engendrée par une paroi de Néel à $180\,^\circ$ d'un ordre de grandeur[5]. Notons que dans le cas du Fe, on s'attend à une stabilité prolongée des parois de Bloch vers les faibles épaisseurs, avant la transition vers des parois de Néel.

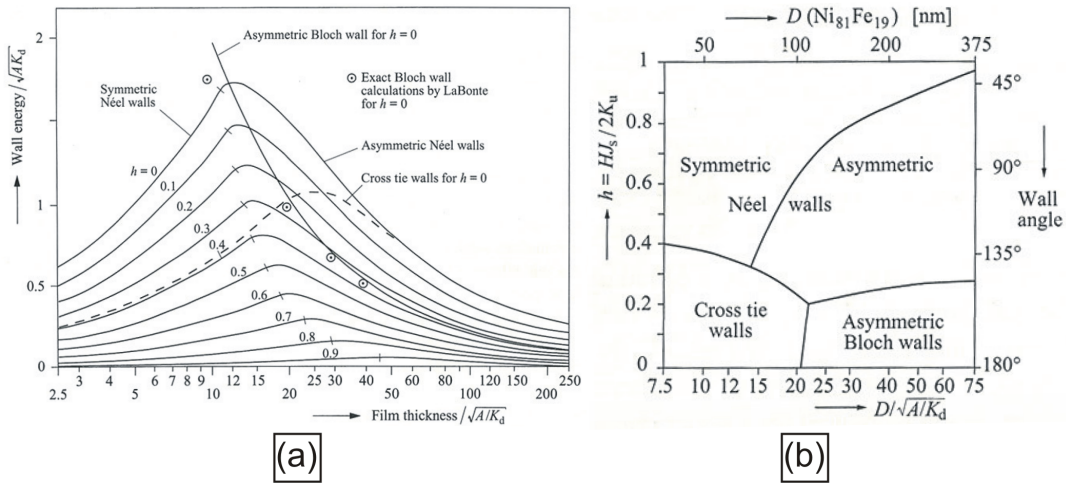

FIG. I.11 – (a) Coût énergétique, calculé numériquement pour une couche de Permalloy ($M_s \simeq 8\times10^6$ A/m, $Q = 2.5\times10^{-4}$), des différentes parois en fonction de l'épaisseur du film considéré. La dépendance de ce coût énergétique en fonction du champ transverse appliqué est représenté dans le cas de la paroi de Néel. Les marques sur les courbes correspondant aux parois de Néel délimitent l'introduction d'une asymétrie dans la paroi. Les points dispersés sont tirés du calcul de LaBonte[55]. (b) Diagramme de phase de parois magnétiques, calculé numériquement pour une couche de Permalloy, en fonction du champ transverse appliqué et de l'épaisseur de la couche. (Figures tirées de la référence [5]).

I.B.3 Parois dans les nanostructures

Les nanostructures diffèrent d'une couche mince par une extension limitée, dans au moins une des dimensions latérales. Dans la limite où les nanostructures restent suffisamment grandes devant L_{ech}et la largeur de paroi et que l'épaisseur est suffisante, les configurations d'équilibre micromagnétiques sont multi-domaines et l'on observe le même type de parois que celles décrites précédemment à la différence que ces dernières sont de longueur finie. Une construction géométrique établie par van den Berg[61, 62, 63] permet de déterminer les configurations micromagnétiques de nanostructures multi-domaines. Ce théorème considère des objets **2D** (épaisseur uniforme et faible devant les dimensions latérales), **infiniment doux** ($Q \ll 1$), **de forme latérale arbitraire**, **de dimensions latérales grandes devant** L_{ech}**et la largeur de paroi**, et **sans champ magnétique appliqué**. Dans cette approche, le coût énergétique induit par la création des parois magnétiques est négligé de sorte que seule l'énergie dipolaire est à minimiser. Van den Berg a

démontré qu'il est toujours possible d'exhiber une configuration d'aimantation annulant l'énergie dipolaire. Pour ce faire on doit éliminer toute charge magnétique de surface et de volume, soit : (i) l'aimantation est purement planaire ($m_z = 0$) et (ii) div $\mathbf{m} = 0$ et $\mathbf{m} \cdot \mathbf{n} = 0$ sur le contour.

La démonstration de la construction de van den Berg repose sur la méthode des caractéristiques de Cauchy appliquée à l'équation aux dérivées partielles $\partial M_x/\partial x + \partial M_y/\partial y = 0$. Les courbes caractéristiques sont perpendiculaires à l'aimantation. Une ambiguïté dans la détermination de l'orientation de l'aimantation apparaît à l'intersection de deux courbes caractéristiques. Cette ambiguïté est levée en introduisant une singularité au niveau de l'intersection limitant deux domaines d'orientation de l'aimantation différente : *la paroi de domaine*. Dans cette construction les parois de domaines sont des objets 1D de largeur nulle.

Les différentes étapes de la construction sont (Fig. I.12) :
- Les parois de domaine sont définies par le lieu des centres des cercles inscrits à la nanostructure et tangents en, au moins, deux points du contour.
- Pour un cercle donné, l'aimantation est perpendiculaire à chaque rayon reliant le centre du cercle à des points tangents du contour.
- Si lors de la construction d'une paroi, les deux points de contact deviennent confondus, la paroi de domaine s'arrète au centre de ce cercle.
- Si le contour de la nanostructure contient un angle aigu, la paroi de domaine se prolonge jusqu'au sommet de l'angle.

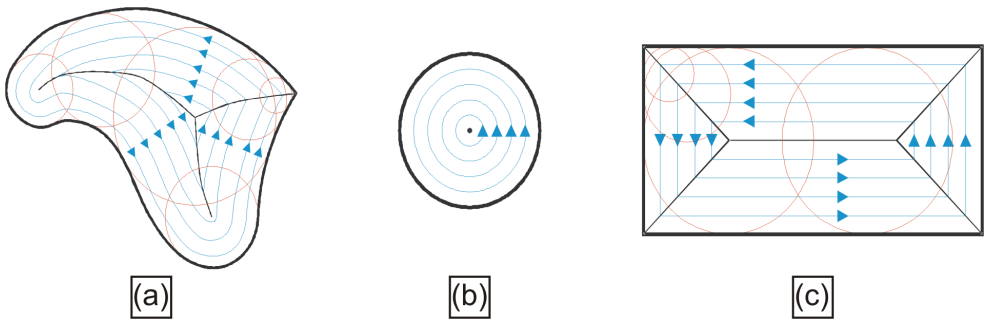

FIG. I.12 – Illustrations de la construction de van den Berg. (a) Cas d'une forme 2D quelconque. (b) Cas d'un disque (configuration dite *vortex*). (c) Cas d'un rectangle (configuration dite de *Landau*).

Les configurations prédites par la construction de van den Berg ne sont

pas uniques puisqu'il est possible de couper virtuellement la nanostructure par n'importe quel jeu de courbes et d'appliquer les règles présentées précédemment à chacune des sous-structures.

Dans le cas d'objets 3D, une telle construction reste en principe possible ; des sphères remplacent alors les cercles. Néanmoins afin de garantir l'absence de charges magnétiques, les singularités (2D ici) doivent être remplacées par des parois ne présentant pas de charge : des *parois de Bloch asymétriques*. Dans le cas d'un objet cylindrique infiniment doux et de longueur finie, un modèle proposé par Arrott *et coll.*[64] établit la configuration micromagnétique du système hors champ et sous champ annulant l'énergie dipolaire en introduisant des singularités 0D : les vortex. Le modèle originel a été revu en 1998 par Hubert et Rave[65]. Outre les améliorations du traitement des conditions aux limites, les auteurs précisent que dans le cas d'échantillons « réels », les vortex ont un diamètre fini de l'ordre de $\sqrt{A/K_{\mathrm{d}}}$.

Le comportement de configurations 2D sous champ magnétique a été étudié, dans la limite des champs faibles, par *Bryant et Suhl*[66, 67] et étendu aux forts champs magnétiques par *DeSimone et coll.*[68, 69]. Bryant et Suhl établissent leur modèle par analogie avec des résultats établis en électrostatique. Dans la limite des champs magnétiques appliqués faibles, le champ magnétique total à l'intérieur de la nanostructure est nul et les charges magnétiques sont réparties en surface. Dans leur modèle, DeSimone et coll. évaluent les charges magnétiques par un calcul variationnel puis déterminent numériquement l'aimantation dans l'échantillon. Ce modèle reste valide même lorsque le champ appliqué est tel que le champ à l'intérieur de l'échantillon n'est plus nul.

I.C Configurations en domaines des plots de Fe(110)

Les propriétés magnétiques des plots auto-assemblés de Fe(110) ont été étudiées pour la première fois au cours de la thèse de Pierre-Olivier Jubert[19]. Des cycles d'hystérésis d'une assemblée macroscopique de plots ont été réalisés dans différentes directions du plan et hors du plan par magnétométrie VSM. Sur la figure I.13, il ressort de cette étude que la direction de plus facile aimantation est l'axe [001] et que la direction de plus difficile aimantation est l'axe hors du plan [110]. Les cycles d'hystérésis se caractérisent également par une absence de coercivité quelque soit la direction sondée. Ceci est le signe d'une configuration micromagnétique des plots à *fermeture de flux*, minimisant l'énergie dipolaire du système. Ceci n'est pas surprenant car le

Fe est un matériau relativement doux ($Q = 2.7 \times 10^{-2}$) et que les dimensions des plots sont supérieures aux longueurs magnétiques caractéristiques. Notons également que, pour chacune des trois directions, l'énergie d'aimantation (aire au-dessus d'un quadrant du cycle) est en accord raisonnable avec l'énergie dipolaire $K_{\mathrm{d}} N_i$[12].

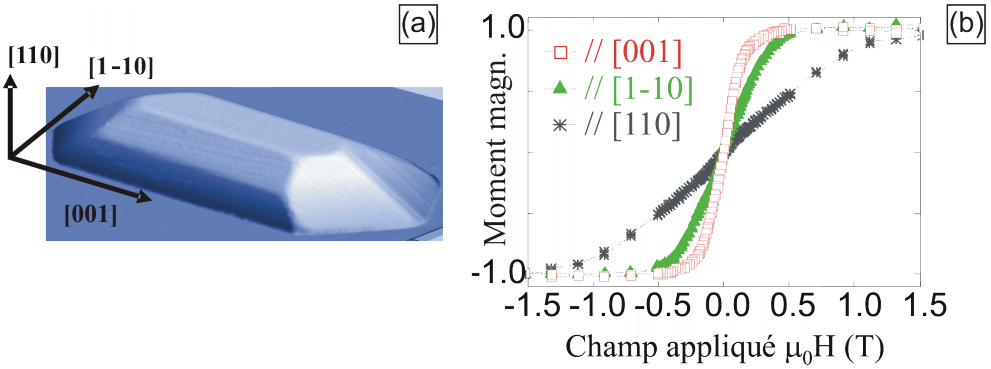

FIG. I.13 – (a) Image AFM d'un plot et directions cristallographiques. (b) Cycles d'hystérésis obtenus par magnétométrie VSM, sur une assemblée de plots, dans les différentes directions du plan et hors du plan présentées en (a). La taille moyenne des plots est 750 nm × 450 nm × 125 nm

Une étude par microscopie magnétique MFM (*Magnetic Force Microscopy*) sur des plots de Fe(110) individuels, réalisée en collaboration avec Yves Samson (CEA/DRMFC/SP2M/NM), ainsi que des simulations micromagnétiques, développées par Jean-Christophe Toussaint et basées sur l'intégration de l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert dans une discrétisation de type méthode des différences finies, ont permis de déterminer les configurations à fermeture de flux, essentiellement de type *Landau* et *losange* (Fig. I.14). La configuration de *Landau* se caractérise par la présence d'une paroi de Bloch sur le grand axe du plot. La configuration *losange* est, quant à elle, caractérisée par la présence de deux vortex. Les vortex, appelés également *lignes de Bloch*, sont des zones de l'espace où l'aimantation est hors du plan, mais de dimensionalité 1 au lieu de 2 pour une paroi de Bloch. Autour d'un vortex l'aimantation tourne dans le plan dans le sens horaire ou anti-horaire ; on parle de *vorticité*. Dans le cas de la configuration losange, les deux vortex sont de vorticité opposée. La position de chaque vortex est définie par l'intersection des différentes parois 90 ° aux deux extrémités du plot.

Sur les figures I.14 (c) et I.14 (f), les configurations prédites par la construction de van den Berg ont été superposées aux simulations micromagnétiques mettant en évidence un excellent accord. Ces premières simulations ont été réalisées, dans un soucis de simplification, avec des flancs de plots verticaux.

Bien qu'initialement, la construction de van den Berg n'ait pas été développée pour des nanostructures de matériaux magnétiques anisotropes tel que le Fe et pour des structures épaisses, il ressort que ces prédictions restent applicables à notre système en première approximation. Ceci résulte sans doute du fait que $Q \ll 1$ et de l'épaisseur significative des plots de Fe(110). La configuration de ces derniers est alors dominée par la minimisation des charges magnétiques de volume ρ_{m} et de surface σ_{m}. De plus, compte-tenu de rapports d'aspects verticaux (hauteur/largeur) typiquement observés restant modérés ($\eta \simeq 0.2$, Fig. I.7), l'aimantation reste essentiellement dans le plan. Les hypothèses du modèle de van den Berg sont donc vérifiées en première approximation.

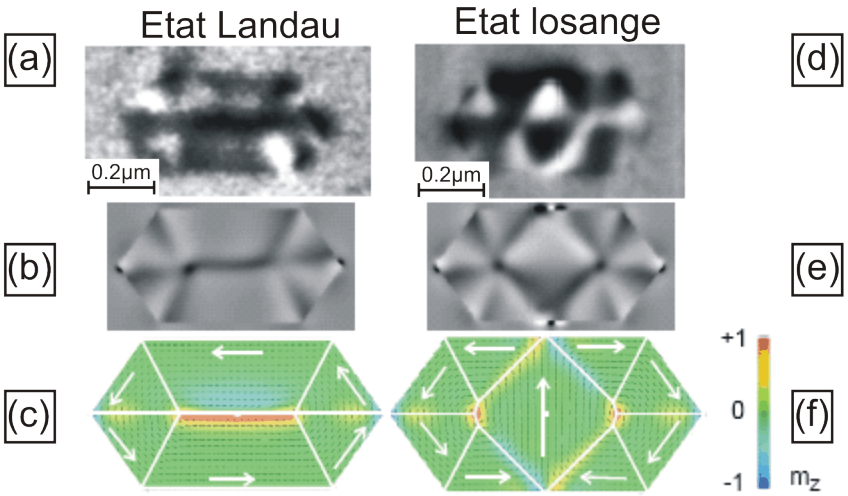

Fig. I.14 – Configurations micromagnétiques de type *Landau* (a-c) et de type *losange* (d-f). Pour chaque configuration, une image MFM (a et d, respectivement) d'un plot de hauteur 90 nm et 60 nm, respectivement et une image MFM simulée (b et e, respectivement) sont présentées. Les images (c) et (f) sont des représentations de simulations micromagnétiques de l'orientation de l'aimantation dans le plan de hauteur médiane (z=h/2). Les couleurs codent l'aimantation hors du plan. Les configurations de van den Berg ont été superposées aux simulations. Les images (c) et (f) ont été utilisées pour calculer les images b et e, respectivement qui représentent la dérivée seconde dans la direction hors du plan du champ de fuite généré par les configurations à une distance de 30 nm du sommet du plot. Ces images MFM simulées ne prennent pas en compte l'interaction mutuelle pointe-échantillon.

La coexistence de deux types de configurations d'aimantation dans des plots de Fe(110) de géométrie similaire peut être replacée dans le cadre de

la littérature. Dans une étude postérieure aux premières publications du groupe sur le sujet, Bode *et coll.*[13] ont montré également dans le cas de plots auto-assemblés que la configuration est successivement mono-domaine ($h = 3.5\,\mathrm{nm}$) puis bi-domaine ($h = 4.5\,\mathrm{nm}$). Un puis deux vortex sont ensuite introduits dans la structure pour des hauteurs de $h = 7.5\,\mathrm{nm}$ et $h = 8.5\,\mathrm{nm}$ respectivement. Dans le groupe, il a été montré que les configurations sont quasi-systématiquement de type Landau pour des épaisseurs $\geq$100 nm (voir Sec. I.D). Dans la gamme d'épaisseur intermédiaire, que nous n'avons pas déterminée précisément, les configurations Losange et Landau coexistent, sélectionnées en particulier par l'histoire magnétique (échantillon tel que déposé, après cycle en champ selon telle ou telle direction, ...).

Plus généralement, dans la littérature, la grande majorité des études réalisées sur des nanostructures de Fe(110) traitent de systèmes obtenus par une approche de type *top-down*[70, 11, 71, 72, 73, 74], *c.à.d.* par microstructuration à l'aide de techniques de lithographie électronique et de gravure ionique. La plupart des études menées détaillent l'influence de la forme des structures (rectangle[70, 11, 71, 72, 73, 74], losange[11, 71, 72, 73], disque[70, 74]) sur les configurations magnétiques obtenues généralement à rémanence après désaimantation alternative ou saturation dans une direction du plan. Ces études couplent généralement la microscopie magnétique locale MFM à des mesures magnéto-optiques à effet Kerr, permettant de déterminer le cycle d'hystérésis d'une assemblée de particules. Dans la gamme d'épaisseur 25-50 nm, les configurations multi-domaines observées dans la plupart des études (essentiellement de type losange avec de multiples vortex ou de type domaines en bande transverse suivant l'histoire magnétique et la forme des structures) permettent de comprendre les cycles d'hystérésis mesurés. Une information supplémentaire sur le détail de l'évolution sous champ de la configuration micromagnétique peut être fournie soit par MFM sous champ[71] soit par simulations micromagnétiques[11, 72, 73].

I.D Configuration en parois des plots de Fe(110) : étude des domaines de fermeture de Néel par microscopie magnétique XMCD-PEEM

Dans le reste de ce manuscrit, nous nous intéresserons plus particulièrement à la configuration de Landau. Les simulations micromagnétiques révèlent que la paroi au centre de la nanostructure est une paroi de Bloch asymétrique (Fig. I.15).

En particulier, cette paroi se termine au niveau des surfaces inférieure

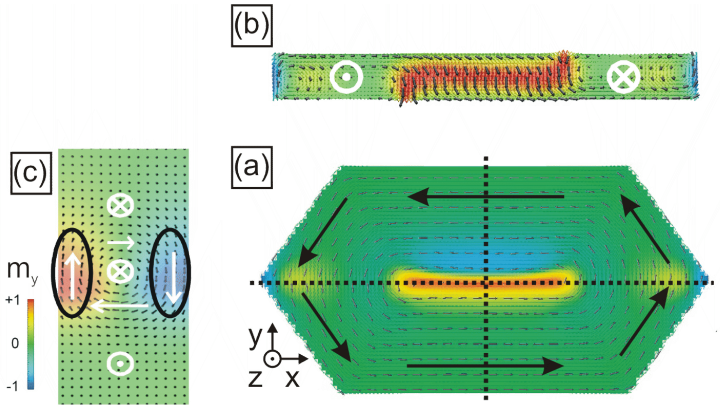

FIG. I.15 – Paroi de Bloch asymétrique et simulations micromagnétiques. (a) Configuration de Landau dans le plan de hauteur médiane (z=h/2). (b) Une coupe dans le plan $(\mathbf{x};\mathbf{z})$ permet de visualiser le coeur de la paroi de Bloch. Pour (a) et (b), les couleurs codent pour la composante de l'aimantation selon $\mathbf{z}$. (c) Une coupe dans le plan $(\mathbf{y};\mathbf{z})$ permet de visualiser les domaines de fermeture de Néel symbolisés par les ellipses noires. Pour (c), les couleurs codent pour la composante de l'aimantation selon $\mathbf{y}$.

et supérieure par des *domaines de fermeture de Néel* afin de minimiser les charges de surface. L'aimantation dans ces domaines est transverse au plot (*c.à.d.* selon $\mathbf{y}$) et les deux domaines de fermeture ont des aimantations opposées. Notons que cet arrangement avait déjà été présenté dans la référence [75] avant les études du groupe.

Peu avant le début de ma thèse, une étude de plots de Fe(110) individuels à l'aide des microscopies de surface XMCD-PEEM/LEEM a été réalisée[20]. Ces techniques de microscopie seront détaillées ultérieurement dans le chapitre III. Pour l'heure, l'essentiel est de savoir que le LEEM est une technique de microscopie donnant une information essentiellement topographique et que le XMCD-PEEM permet l'acquisition d'images avec un contraste magnétique reflétant l'orientation de l'aimantation de surface par rapport à une direction essentiellement planaire donnée. Ces données expérimentales ont été couplées à des simulations micromagnétiques, réalisées par Ricardo Hertel (Institut für Festkörperforschung IFF-9 « Elektronische Eigenschaften », Forschungszentrum Jülich), basées sur l'intégration de l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert dans un modèle de discrétisation en éléments finis. La figure I.16 illustrent les résultats de ces études.

En particulier, il a été possible de visualiser les domaines de fermeture de Néel de plots individuels et de corréler, avec un très bon accord, les images avec des simulations micromagnétiques. Sur les images I.15 (b) et I.15 (c),

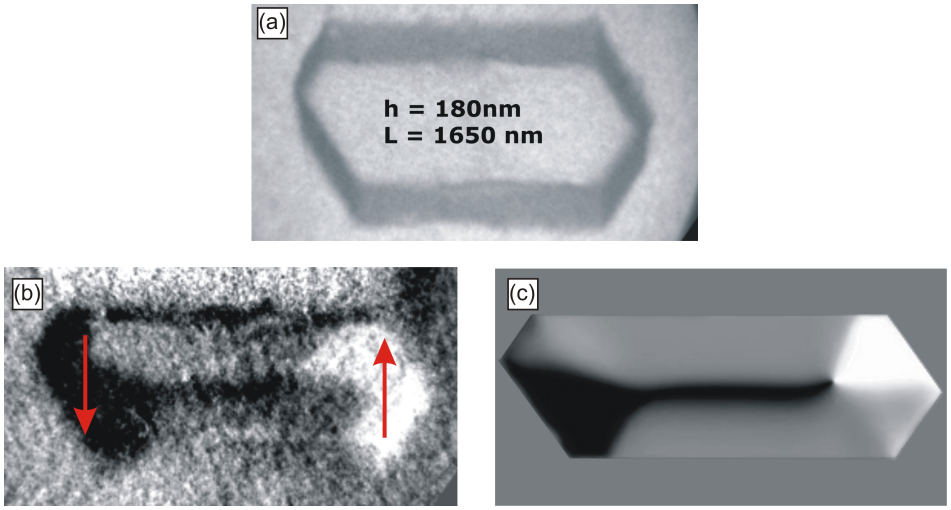

FIG. I.16 – (a) Image LEEM (topographie) d'un plot de Fe(110).(b) Image magnétique XMCD-PEEM du même plot permettant du visualiser le domaine de fermeture de Néel (zone centrale noire) en surface. Les deux flèches indiquent la direction de l'aimantation dans les différentes zones de l'échantillon.(c) Simulation micromagnétique. Le contraste utilisé dans (c) correspond à la même composante de l'aimantation que celle sondée dans (b).

on observe une asymétrie (+y ↔ -y) dans les domaines de part et d'autre du domaine de fermeture de Néel en bout de plot. Le domaine de fermeture de Néel prend part à cette asymétrie, en présentant une rotation à son extrémité droite. L'origine de ces phénomènes dont l'existence n'est pas prédite par la construction de van den Berg a été attribuée à des effets liés à la nature tridimensionnelle des plots[20].

L'essentiel de mon travail de thèse a consisté à mettre en évidence de manière expérimentale le retournement des domaines de fermeture de Néel et l'hystérésis associée à ce retournement par application d'un champ magnétique transverse.

Chapitre II

Prédictions des simulations micromagnétiques

Sommaire

II.A Présentation du modèle 36

II.B Parois asymétriques sous champ transverse : aspects énergétiques dans un modèle 2D 38

II.C Retournement et hystérésis des domaines de fermeture de Néel sous champ transverse 42

II.C.1 Démonstration du retournement des domaines de fermeture de Néel 42

II.C.2 Hystérésis associée au retournement des domaines de fermeture de Néel 43

II.C.3 Retournement des domaines de fermeture de Néel observable à rémanence 44

II.C.4 Retournement des domaines de fermeture de Néel sous une combinaison de champs transverse et perpendiculaire 46

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats de simulations micromagnétiques réalisées à l'aide du code GL-FFT développé par Jean-Christophe Toussaint au sein de l'équipe Micro- et NanoMagnétisme de l'Institut Néel. Ces simulations modélisent le comportement sous champ transverse de parois asymétriques (Bloch ou Néel) dans un plot de Fe(110). Après avoir détaillé le modèle et son algorithme (Sec. II.A), nous nous intéresserons à la transition, sous champ transverse, entre une paroi de Bloch asymétrique et une paroi de Néel asymétrique dans un plot de Fe(110) à bord droit de longueur infinie (Sec. II.B). Le retournement des domaines de fermeture de Néel associé à cette transition ainsi que le phénomène d'hystérésis en résultant seront présentés dans le cas de plots hexagonaux à facettes inclinées dans la section II.C.

II.A Présentation du modèle

Les simulations micromagnétiques que nous détaillons ici reposent sur l'intégration temporelle de l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert par la méthode des volumes finis. Cette intégration, basée sur la méthode d'Euler explicite, permet de déterminer la dynamique du vecteur aimantation soumis à un champ effectif H_{eff}, comprenant l'ensemble des contributions énergétiques (échange, Zeeman, anisotropie magnétocristalline et dipolaire). L'état d'équilibre du système correspond à la configuration d'aimantation vérifiant l'équation de Brown[76, 50] : $|\gamma_{\text{G}}\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}| = 0$. Numériquement, la condition d'arrêt devient $|\gamma_{\text{G}}\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}|\,\delta t < \epsilon$, où $\epsilon = 10^{-6}$.

Du point de vue de la programmation, le système physique est discrétisé en cellules élémentaires parallélipédiques régulières. Au centre de chaque cellule est associé un vecteur aimantation $\mathbf{m}$ dont les trois composantes dans un repère cartésien sont stockées sous la forme d'un tableau tridimensionnel. L'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert est alors intégrée en chaque point d'échantillonnage de l'aimantation.

L'algorithme du code GL-FFT, dont une présentation plus détaillée que celle qui sera faite dans cette section peut être trouvée dans [77], est résumé sur la figure II.1.

Soit l'équation I.19, $\dot{\mathbf{m}}(t) = -\gamma_{\text{LL}}\mathbf{m}(t)\times\mathbf{H}_{\text{eff}}(t) - \alpha_{\text{LL}}\mathbf{m}(t)\times(\mathbf{m}(t)\times\mathbf{H}_{\text{eff}}(t))$, où le premier terme correspond à la précession du vecteur aimantation induite par H_{eff}, le second terme décrit l'amortissement de ce mouvement précessionnel.

Dans la méthode d'Euler explicite, la dérivée de l'aimantation par rapport au temps est remplacée par : $\dot{\mathbf{m}}(t) = [\mathbf{m}(t+\delta t) - \mathbf{m}(t)]\,/\delta t$. L'équation I.19

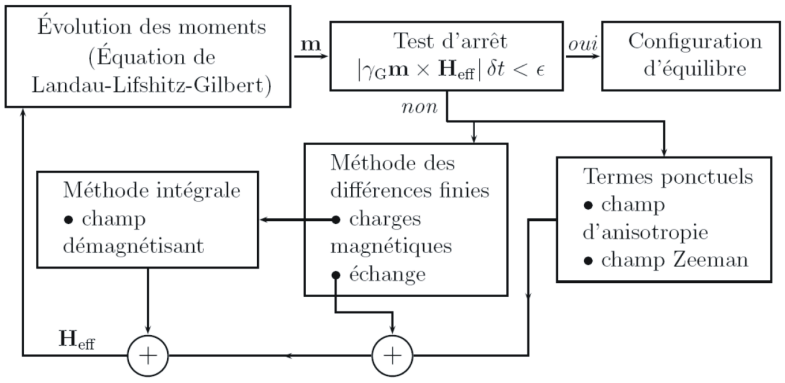

FIG. II.1 – Algorithme du code GL-FFT permettant la résolution de l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert.

devient alors :

$$\mathbf{m}(t+\delta t) = \mathbf{m}(t) + \left[-\gamma_{LL}\mathbf{m}(t) \times \mathbf{H}_{eff}(t) - \alpha_{LL}\mathbf{m}(t) \times (\mathbf{m}(t) \times \mathbf{H}_{eff}(t))\right]\delta t \tag{II.1}$$

Cette méthode nécessite la normalisation du vecteur aimantation à chaque pas de temps d'intégration.

Dans le code GL-FFT, cette méthode est avantageusement remplacée par la méthode explicite dite *du vecteur tournant* :

$$\begin{aligned}\mathbf{m}(t+\delta t) = \mathbf{m}(t)\cos(\gamma_{LL}\mathrm{H}\delta t) + \frac{\sin(\gamma_{LL}\mathrm{H}\delta t)}{\mathrm{H}}(\mathbf{H} \times \mathbf{m}(t)) \\ + \left[1 - \cos(\gamma_{LL}\mathrm{H}\delta t)\right]\frac{\mathbf{m}(t).\mathbf{H}}{\mathrm{H}^2}\mathbf{H},\end{aligned} \tag{II.2}$$

où $\mathbf{H} = \mathbf{H}_{eff}(t) + \alpha_{LL}\mathbf{m}(t) \times \mathbf{H}_{eff}(t)$ avec $\gamma_{LL} = 2.21 \times 10^5$ m/As dans le cas du Fe.

Cette expression est exacte dans le cas où $\mathbf{H}$ est indépendant du temps. Elle reste néanmoins une bonne approximation lorsque $\mathbf{H}$ varie lentement (par rapport au pas d'intégration temporelle) au cours du temps.
Connaissant à un instant donné $\mathbf{m}(t)$ et $\mathrm{H}_{eff}(t)$ [déterminé à partir de $\mathbf{m}(t)$], il est alors possible de calculer la configuration d'aimantation à l'instant $t+\delta t$. Cette méthode d'intégration nécessite cependant un pas de temps suffisamment petit pour maintenir la stabilité numérique : $\delta t < \frac{a^2}{24A}\gamma_{LL}\mu_0 M_s \frac{2\alpha_{LL}}{\alpha_{LL}^2+1}$, où a est la moyenne quadratique des inverses des dimensions de la cellule élémentaire et A est la constante d'échange.

La détermination du champ effectif $\mathbf{H}_{\text{eff}}(t)$ n'est rendue complexe et coûteuse en temps d'un point de vue numérique que par la présence du terme de champ dipolaire car il correspond à une interaction à longue distance. Les termes Zeeman et d'anisotropie magnétocristalline, ne faisant intervenir que la composante de l'aimantation selon une direction particulière (*c.à.d.* la composante selon le champ magnétique et selon le(s) axe(s) de facile aimantation, respectivement), ne posent pas de problèmes. Le terme d'échange est déterminé par la méthode des différences finies. D'un point de vue mathématique, le champ dipolaire (Éq. (I.11)) est la somme de deux produits de convolution. Il est donc possible d'utiliser un résultat bien connu de l'analyse de Fourier : la transformée de Fourier du produit de convolution de deux fonctions est le produit des transformées de Fourier des deux fonctions. Cette utilisation des transformées de Fourier constitue l'un des intérêts majeurs de la méthode des différences finies. Dans la méthode dite de *MI-H* utilisée dans le code GL-FFT, le champ dipolaire $\mathbf{H}_{\text{d}}$ est déterminé de la manière suivante :

- Calcul des charges magnétiques de volume par la méthode des différences finies et des charges de surface par interpolation d'ordre 2.
- Calcul des transformées de Fourier des fonctions intervenant dans H_{d} (I.11) par la méthode des transformées de Fourier rapide (*Fast Fourier Transform*, FFT).
- Calcul de la transformée de Fourier de $\mathbf{H}_{\text{d}}$
- Calcul du champ démagnétisant par la transformée de Fourier inverse à l'aide de la méthode des FFT.

Pratiquement, pour un plot de dimensions $L = 1000\,\text{nm}$, $l = 500\,\text{nm}$, $h = 100\,\text{nm}$, les dimensions d'une cellule sont $3.9 \times 3.9 \times 3.1\,\text{nm}$. Le pas de champ est de $0.01\,\text{mT}$ et le pas de temps est de $10\,\text{fs}$. Avec ces paramètres, les calculs des configurations pour un cycle de champ prennent typiquement un mois.

II.B Parois asymétriques sous champ transverse : aspects énergétiques dans un modèle 2D

Le modèle présenté en section II.A a été appliqué sur des plots de longueur infinie, de section transverse rectangulaire variable mais dont le rapport d'aspect vertical, $\eta = h/l$, a été maintenu à 0.2 (Fig. II.2). Dans ce modèle 2D, les plots présentent une symétrie de translation et une formulation 2D du champ

dipolaire est utilisée. La configuration micromagnétique étudiée consiste en deux domaines longitudinaux séparés par une paroi de Bloch. L'objectif de ces simulations est d'étudier la stabilité des configurations Néel asymétrique et Bloch asymétrique sous champ transverse en s'affranchissant des effets liés aux extrémités des plots. La configuration initiale correspond à une paroi de Bloch asymétrique. Par ailleurs, nous verrons que le fait de garder un rapport d'aspect vertical η constant dans les différentes simulations nous a permis de nous affranchir des variations des coefficients de champ démagnétisant par rapport à un choix de travailler à largeur l fixée et une hauteur h variable.

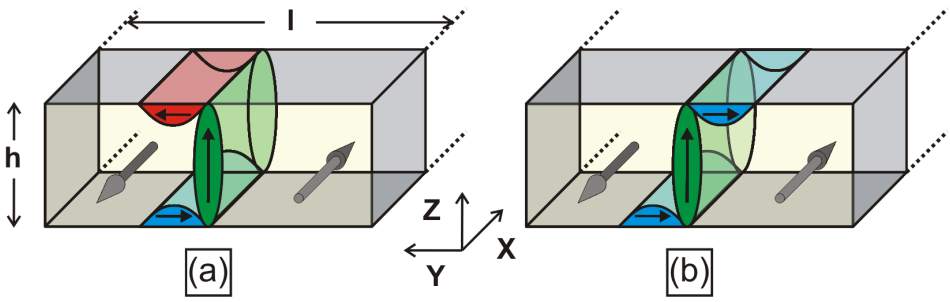

Fig. II.2 – Illustration des géométries et configurations micromagnétiques simulées. (a) Paroi de Bloch asymétrique et (b) paroi de Néel asymétrique dans des nanofils de longueur infinie.

Les résultats de cette étude sont présentés sur la figure II.3. Pour toutes les hauteurs considérées entre 25 nm et 200 nm, la différence entre l'énergie des configurations à paroi de Néel asymétrique et de Bloch asymétrique est positive à champ nul, confirmant que cette dernière est énergétiquement plus favorable. Pour toutes les hauteurs simulées, cette différence décroît, s'annule puis devient négative lorsqu'un champ transverse croissant est appliqué. Pour un champ supérieur à un champ critique pour lequel la différence s'annule, la configuration à paroi de Néel asymétrique devient plus stable que la configuration initiale. On observe donc une transition en champ de la paroi de Bloch asymétrique vers la paroi de Néel asymétrique.

L'évolution, en fonction de la hauteur des nanofils pour un rapport d'aspect vertical $\eta = h/l$ de 0.2, du champ de transition entre la paroi de Bloch asymétrique et la paroi de Néel asymétrique est représentée sur la figure II.4. Pour les faibles hauteurs le champ d'isoénergie entre les deux configurations décroît. Ce résultat est cohérent avec le fait qu'à champ nul, il existe une hauteur critique en dessous de laquelle la paroi de Néel est énergétiquement favorable par rapport à la paroi de Bloch. Dans la limite des grandes hauteurs, le champ d'isoénergie entre les deux configurations décroît également.

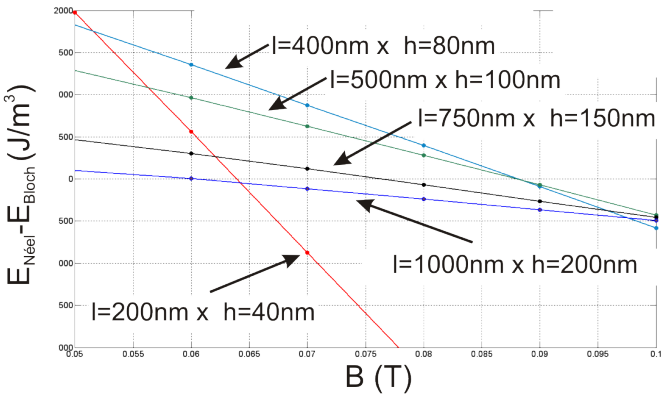

Fig. II.3 – Différences d'énergie entre les configurations à paroi de Néel asymétrique et de Bloch asymétrique en fonction du champ transverse appliqué. Les plots simulés correspondent aux configurations présentées en Fig. II.2. Les cinq hauteurs de plots représentées illustrent les courbes obtenues.

On s'attend en effet, comme évoqué précédemment, à ce que le couplage dipolaire entre les domaines de fermeture de Néel diminue de sorte que le champ de transition entre configurations de Bloch asymétrique et Néel asymétrique diminue également. Entre ces deux régimes, le champ critique évolue peu puisque pour des hauteurs comprises entre 60 nm et 120 nm, il varie de moins de 6 %.

Aussi, au vu de cette étude, il est envisageable que les résultats de la figure I.11 obtenus dans le cas d'une couche mince de Permalloy ne représente que la limite des faibles hauteurs et que les simulations micromagnétiques 2D réalisées sur des plots de Fe mettent en évidence le régime intermédiaire (faible évolution du champ de transition entre 60 nm et 120 nm) et la limite des grandes hauteurs (décroissance du champ de transition entre 120 nm et 200 nm).

Comme nous l'avons évoqué dans la section I.B.2, la transition, sous champ magnétique, entre paroi de Bloch asymétrique et paroi de Néel asymétrique a déjà été prédite et observée dans les couches minces. Néanmoins une différence fondamentale existe entre ces deux situations. Dans les couches minces, la rotation de l'aimantation sous un champ magnétique est essentiellement gouvernée par la compétition entre le terme Zeeman et l'anisotropie magnétocristalline de sorte que l'angle dans le plan de l'échantillon fait par l'aimantation au niveau de la paroi entre les deux domaines longitudinaux s'exprime par $\Omega = 2 \arccos h$, où $h = H\mu_0 M_s/2K$ est le champ appliqué en unités réduites. Dans le cas de nanostructures comme ici une bande, la rotation de l'aimantation sous l'effet du champ appliqué est principalement

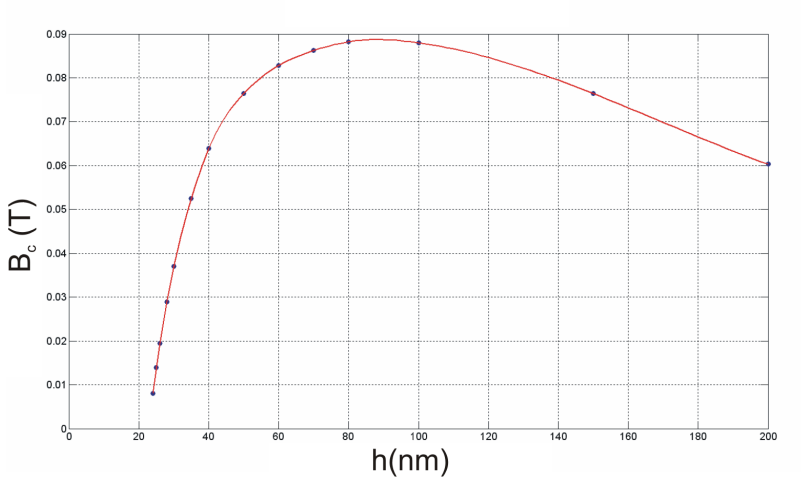

FIG. II.4 – Évolution du champ critique d'isoénergie entre les configurations de Bloch asymétriques et de Néel asymétrique en fonction de la hauteur des nanofils de longueur infinie.

limitée par le champ démagnétisant car $N_t K_\mathrm{d} > K$, où N_t est le coefficient de champ démagnétisant transverse, et K est la constante d'anisotropie magnéto-cristalline dans le cas d'un matériau uniaxe. Dans tous les cas, la configuration à paroi de Bloch asymétrique devient instable sous champ car la rotation des domaines longitudinaux induit un surcoût d'énergie d'échange en brisant la symétrie entre le domaine de fermeture de Néel parallèle au champ et celui antiparallèle. Pour ce dernier, l'aimantation doit effectivement réaliser une rotation de plus de 180 ° alors que la rotation à proximité du domaine de fermeture de Néel parallèle au champ est inférieure à 180 °.

Ainsi, nous avons démontré en nous intéressant à l'état de plus basse énergie qu'il est possible de contrôler une composante interne d'une paroi magnétique par application d'un champ externe dans le cas d'une bande de Fe de longueur infinie. Il nous reste cependant à comprendre les détails microscopiques du renversement d'aimantation, qui est un phénomène possiblement hystérétique soit une propriété extrinsèque dépendant de la géométrie exacte du système. Pour cette raison, il est donc nécessaire de considérer un plot de Fe(110).

II.C Retournement et hystérésis des domaines de fermeture de Néel sous champ transverse

Le modèle présenté en section II.A a été appliqué sur un plot plus proche de notre système modèle. La géométrie choisie possède une base hexagonale, présentant des bords facettés et de dimensions : $L = 1000\,\text{nm}$, $l = 500\,\text{nm}$, $h = 100\,\text{nm}$. Les angles des facettes avec le plan du substrat correspondent aux angles des principaux plans cristallographiques observés expérimentalement avec le plan (110). Du point de vue numérique, le plot est discrétisé en cellules élémentaires de dimensions : $3.9 \times 3.9 \times 3.1\,\text{nm}$. Différentes valeurs et directions de champ transverses ont été appliquées à un plot présentant une configuration à rémanence de type Landau, caractérisée par la présence d'une paroi de Bloch asymétrique. Topologiquement, la paroi de Bloch asymétrique présente dans un plot est identique à un vortex magnétique étiré de sorte qu'à chacune de ses extrémité se trouve un *vortex de surface*, l'un au niveau de la surface supérieure du plot l'autre au niveau de la surface inférieure. La présence de ces vortex de surface liée à une longueur finie est spécifique d'une paroi de Bloch asymétrique dans une nanostructure par rapport à une bande de longueur infinie.

II.C.1 Démonstration du retournement des domaines de fermeture de Néel

Les résultats observés pour une direction de champ appliqué parallèle au domaine de fermeture de Néel du bas (*c.à.d.* selon $\mathbf{y}$) sont résumés sur la Fig. II.5. Entre la configuration initiale et un champ appliqué de 95 mT peu de changements sont à noter, si ce n'est un léger déplacement du vortex présent en face supérieure du plot et une variation de la taille des domaines transverses aux extrémités du plot. Le volume du domaine de gauche (antiparallèle au champ) diminue alors que le volume du domaine de droite (parallèle au champ) augmente. Entre 95 mT et 100 mT, une brusque transition s'opère : le vortex présent en face supérieure se retrouve à gauche du plot. Ce déplacement de vortex est associé au retournement du domaine de fermeture de Néel de la face supérieure : les deux domaines de fermeture de Néel sont orientés parallèlement au champ magnétique à l'issue de ce processus. Par analogie avec le retournement des domaines magnétiques (objets essentiellement 2D pour des couches minces) observés dans les couches minces faisant intervenir la propagation d'une paroi (objet principalement 1D), on peut remarquer que le retournement des domaines de fermeture de Néel (ob-

jets quasi-1D) s'opère par propagation d'un objet magnétique de dimension immédiatement inférieure (quasi-0D) : un vortex.

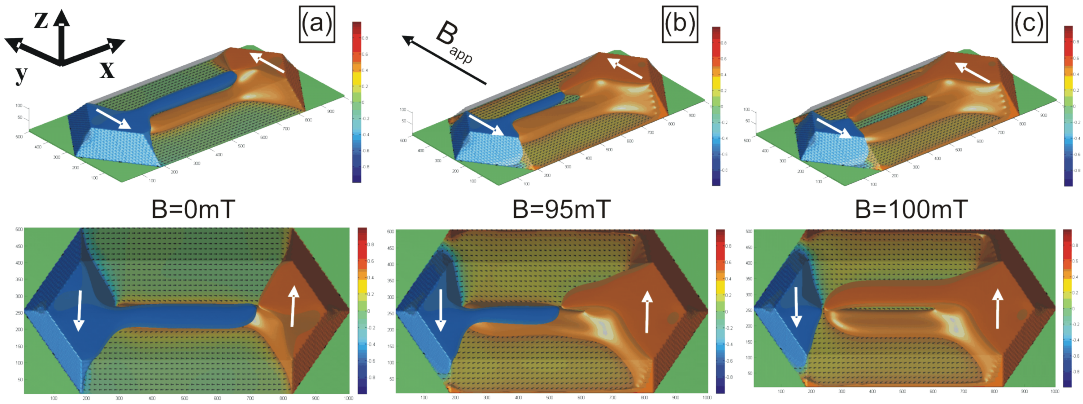

Fig. II.5 – Simulations micromagnétiques obtenues sur un plot de $1000 \times 500 \times 100$ nm sous champ transverse (selon **y**). Seule la composante transverse de l'aimantation des régions où $|m_y| = 0.5$ est représentée de sorte que les domaines de fermeture de Néel puissent être visualisés. Les couleurs codent pour l'orientation de l'aimantation selon l'axe **y**. (a) B=0 mT, (b) B=95 mT, (c) B=100 mT.

II.C.2 Hystérésis associée au retournement des domaines de fermeture de Néel

Partant de la configuration à paroi de Néel asymétrique où les deux domaines de fermeture de Néel sont parallèles ($H_{app} \geq 100$ mT), la valeur du champ appliqué est maintenant progressivement réduite (Fig. II.6).

Entre 100 mT et 60 mT, le seul changement observable est le léger déplacement du vortex présent en face supérieure vers la droite du plot. Entre 60 mT et 55 mT, le domaine de fermeture de Néel de la face supérieure se retourne brusquement pour redevenir antiparallèle au domaine de fermeture de Néel du bas : le système transite vers une configuration présentant une paroi de Bloch asymétrique par un processus identique à ce qui avait été observé dans la section II.C.1 à savoir le déplacement du vortex présent au sommet du plot. Les simulations micromagnétiques prédisent donc que le retournement des domaines de fermeture de Néel ne se produit pas à la même valeur de champ en champ montant et en champ descendant. Autrement dit, nous établissons ici que le retournement des domaines de fermeture de Néel devrait s'accompagner d'un phénomène d'hystérésis. Ce phénomène n'a, à notre

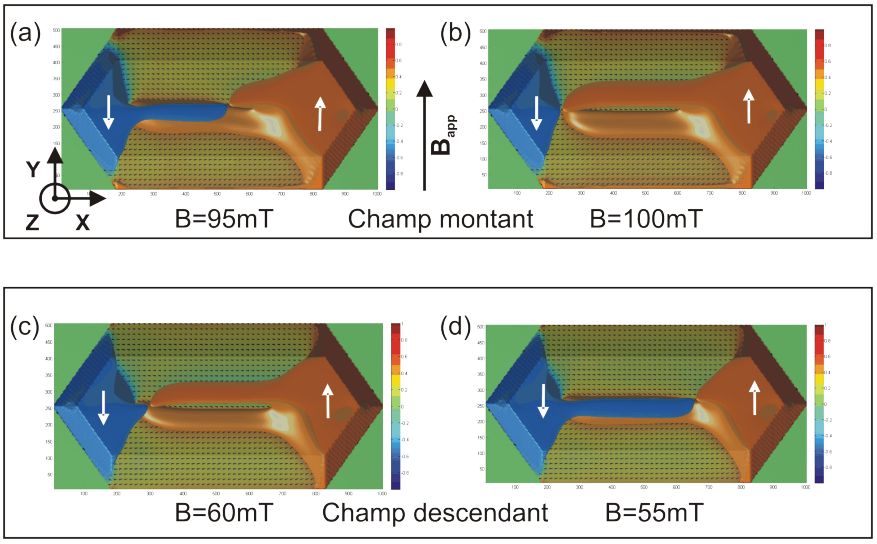

FIG. II.6 – Simulations micromagnétiques obtenues sur un plot de $1000 \times 500 \times 100$ nm sous champ transverse (selon **y**). Seule la composante transverse de l'aimantation des régions où $|m_y| = 0.5$ est représentée de sorte que les domaines de fermeture de Néel puissent être visualisés. Les couleurs codent pour l'orientation de l'aimantation selon l'axe **y**. (a-b) Champ montant, (c-d) Champ descendant. (a) B=95 mT, (b) B=100 mT, (c) B=60 mT, (d) B=55 mT.

connaissance, jamais été prédit lors d'études de nanostructures magnétiques. Notons enfin qu'à rémanence, la configuration après application d'un champ extérieur est identique à la configuration initiale, selon cette séquence de champ.

II.C.3 Retournement des domaines de fermeture de Néel observable à rémanence

Le fait que les configurations avant et après application du champ magnétique soient identiques pose un problème pour la mise en évidence expérimentale du phénomène de retournement des domaines de fermeture de Néel. En effet la plupart des techniques de microscopie magnétiques de haute résolution telle que la microscopie XMCD-PEEM (Chapitre III) ne permettent pas l'acquisition d'images lorsqu'un champ planaire supérieur à quelques mT est appliqué. Il est donc nécessaire de trouver un processus d'aimantation telles que les configurations à rémanence avant et après application du champ soient différentes. Ce processus est résumé sur la figure II.7.

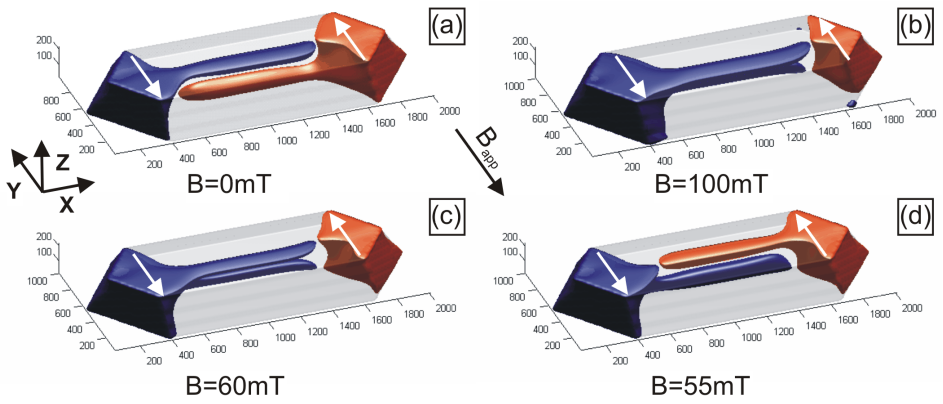

FIG. II.7 – Simulations micromagnétiques obtenues sur un plot de $1000 \times 500 \times 100$ nm sous champ transverse (selon -**y**). Seule la composante transverse de l'aimantation des régions où $|m_y| = 0.5$ est représentée de sorte que les domaines de fermeture de Néel puissent être visualisés. Les couleurs codent pour l'orientation de l'aimantation selon l'axe **y**. (a-b) Champ montant, (c-d) Champ descendant. (a) B=0 mT, (b) B=-100 mT, (c) B=-60 mT, (d) B=-55 mT.

Contrairement aux simulations présentées précédemment, le champ magnétique est appliqué, ici, parallèlement au sens initial du domaine de fermeture de Néel de la face supérieure (*c.à.d.* selon -**y**). Entre la rémanence et un champ appliqué de -100 mT, le comportement est similaire à ce qui avait observé dans la partie II.C.1, mais cette fois avec le déplacement du vortex de la surface inférieure. En champ descendant, le retour à configuration présentant une paroi de Bloch asymétrique s'opère entre -60 mT et -55 mT. A la différence du comportement décrit en champ montant, la transition en champ descendant s'opère par le retournement du domaine de fermeture de Néel du haut. Aussi selon ce schéma, les configurations à rémanence obtenues avant et après application du champ magnétique sont inversées. De fait, la mise en évidence du retournement des domaines de fermeture de Néel induit par application d'un champ magnétique par des techniques de microscopie magnétiques hors champ peut être envisagée.

On constate également que quelque soit la direction du champ appliqué, c'est toujours le domaine de fermeture de Néel du sommet du plot qui se retourne dans la phase de champ descendant de sorte qu'à rémanence, il soit systématiquement antiparallèle à la direction du champ appliqué. Nous discutons ici la sélection du domaine de fermeture de Néel de la face supérieure plutôt que celui de la face inférieure. On s'attendrait à ce que les facettes inclinées délimitant les plots crée une asymétrie entre le domaine de ferme-

ture de Néel du haut et celui du bas, lorsque ceux-ci sont parallèles, en terme de position longitudinale du vortex de surface (*c.à.d.* selon $\mathbf{x}$). Selon cette considération simpliste, le domaine de fermeture de Néel de la surface supérieure se retournerait alors en champ descendant car son vortex de surface parcourrait une distance inférieure. Néanmoins un dépouillement quantitatif des simulations numériques nous a permis de constater que lorsque les deux domaines de fermeture de Néel sont parallèles, les positions longitudinales des deux vortex de surface sont identiques. Des effets liés à la nature 3D de la configuration micromagnétique et en particulier des effets liés à une composante verticale non nulle de l'aimantation au niveau des arrêtes pourraient jouer un rôle dans le mécanisme gouvernant le renversement des domaines de fermeture de Néel en champ descendant.

II.C.4 Retournement des domaines de fermeture de Néel sous une combinaison de champs transverse et perpendiculaire

Dans le chapitre IV, nous rapportons une étude sous champ des plots de Fe(110) à l'aide de la microscopie électronique à transmission en mode imagerie magnétique dite *microscopie de Lorentz*. Comme nous le verrons, dans cette technique, seul un champ axial peut être généré au sein de la colonne d'imagerie. Un cycle d'aimantation planaire est alors réalisé en inclinant l'échantillon. Nous utilisons alors la projection du champ axial dans le plan de l'échantillon. Il demeure néanmoins une composante dominante du champ normal qui est susceptible d'influencer les comportements magnétiques. Afin de vérifier que les phénomènes de retournement des domaines de fermeture de Néel et d'hystérésis associée à ce retournement sont toujours attendus, lorsqu'un champ transverse et à forte composante verticale est appliqué, des simulations micromagnétiques ont été réalisées en collaboration avec Jean-Christophe Toussaint.

Dans ces simulations, un plot de mêmes dimensions $1000 \times 500 \times 100\,\mathrm{nm}$ que celui présenté précédemment a été modélisé. L'angle entre l'axe perpendiculaire au plan de l'échantillon et le champ appliqué a été fixé à $20\,^{\circ}$ qui est une valeur typiquement utilisée lors de l'acquisition d'images en microscopie de Lorentz.

Il ressort de cette étude que les phénomènes de retournement des domaines de fermeture de Néel et d'hystérésis associée restent observables. Néanmoins la valeur des champs de retournement diffère du cas où un champ purement transverse est appliqué. En effet pour une valeur de champ crois-

sante, nous avons montré que dans le cas d'un champ purement transverse, le retournement du domaine de fermeture de Néel du haut intervenait à 95±1 mT alors que la transition est observée pour une composante transverse du champ de 43±3 mT (soit une norme du champ appliqué de ≃245±5 mT) dans le cas présent. De même lors du retour à la rémanence, un champ de transition de 32±3 mT (soit une norme du champ appliqué de ≃185±5 mT) est observé pour le retournement du domaine de fermeture de Néel du haut alors que dans les simulations avec un champ purement planaire, la transition avait lieu à 55±1 mT. Pour des raisons de temps de calcul, seuls les champs parallèles au cœur de la paroi de Bloch (caractérisée par une composante perpendiculaire $m_z > 0$) et dont la composante transverse était parallèle au domaine de fermeture de Néel du bas ont été sondés mais, par analogie aux simulations présentées précédemment, aucune modification notable n'est attendue.

Nous discutons ici la diminution des champs de transition planaire lorsqu'une composante du champ normale au plan de l'échantillon est appliquée. Dans les nanostructures, lorsqu'un champ transverse est appliqué, la rotation des domaines longitudinaux est déterminée par la compétition entre le champ démagnétisant transverse et le champ appliqué. Or en appliquant un champ possédant une composante normale, l'aimantation transverse est diminuée au profit d'une composante normale ce qui diminue de fait la composante transverse du champ démagnétisant. Aussi à valeur de champ planaire identique, la rotation planaire des domaines longitudinaux devrait être plus importante lorsqu'une composante normale est appliquée. Ceci défavorise, du point de vue de l'échange, la configuration où les deux domaines de fermeture de Néel sont antiparallèles par rapport à la configuration présentant des domaines de fermeture de Néel parallèles : la valeur du champ transverse de retournement devrait donc être, selon ce raisonnement, plus faible. Dans l'éventualité où l'énergie d'échange est le terme déterminant la transition entre les configurations Bloch asymétrique et Néel asymétrique, on s'attend à ce qu'à la transition, la rotation des domaines longitudinaux, et donc la composante transverse moyenne de l'aimantation dans le plot, soient constantes. Utilisant les résultats des simulations micromagnétiques, nous avons vérifié que pour différentes directions de champ appliqué (caractérisées par l'angle θ avec la normale à la surface de l'échantillon, θ variant entre 20 ° et 90 °) la composante transverse de l'aimantation variait avec θ. La variation observée (∼15 % pour θ variant entre 20 ° et 90 °) nous laisse penser que le terme d'énergie d'échange n'est pas le seul terme déterminant le champ de retournement des domaines de fermeture de Néel et que la diminution du champ de retournement planaire lorsqu'une composante normale du champ

est appliquée ne peut être expliquée seulement par ce raisonnement.

Nous pouvons également envisager que le terme d'énergie Zeeman est le terme prédominant intervenant dans le retournement des domaines de fermeture de Néel. Selon cette hypothèse, quelque soit l'angle θ, le terme Zeeman transverse ($m_{\mathrm{y}} H_y$, où m_{y} et H_y sont les composantes transverses de l'aimantation, moyennée sur le plot, et du champ appliqué, respectivement) doit être constant à la transition. En utilisant les valeurs numériques obtenues à partir des simulations micromagnétiques, il s'avère que le terme Zeeman transverse varie significativement avec θ (de plus d'un facteur 2 entre 20 ° et 90 °). Aussi l'origine de la valeur des champs de transition semble complexe à déterminer. En particulier dans notre cas, le renversement des domaines de fermeture de Néel est probablement influencé par les parois à 90 ° présentes aux extrémités du plot et qui déterminent la position, hors champ, des vortex de surface. Une étude du champ de transition du point de vue énergétique (similaire à ce qui a été fait dans les simulations 2D) semble nécessaire.

Chapitre III

Mise en évidence expérimentale, à rémanence, du retournement des domaines de fermeture de Néel par XMCD-PEEM

Sommaire

III.A Microscopies de surface PEEM-LEEM et signal XMCD 50

III.A.1 Low-Energy Electron Microscopy 51

III.A.2 PhotoElectron Emission Microscopy - X-ray Magnetic Circular Dichroism 52

III.A.2.a Principe physique de la microscopie PEEM 52

III.A.2.b Détails instrumentaux de la microscopie X-PEEM 53

III.A.2.c XMCD et contraste magnétique en X-PEEM 55

III.B Résultats expérimentaux 58

III.B.1 Protocole expérimental de l'étude 58

III.B.2 Retournement des domaines de fermeture de Néel 60

III.B.3 Champs de retournement et considérations géométriques 61

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats de l'étude par microscopie magnétique XMCD-PEEM réalisée sur une assemblée de plots de Fe(110) mettant en évidence à rémanence et de manière statistique le retournement des domaines de fermeture de Néel par application d'un champ magnétique transverse. Cette étude a été réalisée sur la ligne de lumière *Nanospectroscopy* du synchrotron *Elettra* (Trieste, Italie). Au cours de cette étude, nous avons travaillé sur l'instrument français dont le responsable est Rachid Belkhou et en collaboration avec Nicolas Rougemaille. Cet instrument sera à terme installé au synchrotron Soleil à l'horizon 2010. Après une présentation des techniques de microscopie utilisées lors de cette étude, nous détaillerons le protocole expérimental ainsi que les méthodes de dépouillements de données. Les résultats expérimentaux seront ensuite présentés. Outre la mise en évidence du phénomène de retournement des domaines de fermeture de Néel, nous avons tenté de corréler la valeur du champ de retournement à des paramètres géométriques des plots.

A priori, une telle étude sur le retournement des domaines de fermeture de Néel observé à rémanence aurait pu être menée à l'aide de la microscopie MFM. En effet dans des conditions d'utilisation optimales (taille de la pointe, stabilité du microscope, ...), cette technique permet d'atteindre des résolutions latérales de 30-50 nm. Cependant il s'avère que le contraste observé est essentiellement lié à la composante normale du cœur de la paroi et pas au domaine de fermeture de Néel[19]. En ce sens les techniques XMCD-PEEM et MFM sont complémentaires puisque, comme nous le verrons, le XMCD-PEEM ne permet pas la visualisation de la composante perpendiculaire.

III.A Microscopies de surface PEEM-LEEM et signal XMCD

L'instrument utilisé pour l'étude du retournement des domaines de fermeture de Néel dans des plots de Fe(110) est la combinaison de deux techniques de microscopies de surface : la microscopie LEEM (*Low-Energy Electron Microscopy*) permettant l'acquisition d'informations topographiques et la microscopie PEEM (*PhotoEmission Electron Microscopy*) qui, associée au phénomène XMCD (*X-ray Magnetic Circular Dichroism*), permet l'obtention d'un contraste magnétique et l'imagerie de l'aimantation projetée dans une direction essentiellement planaire de l'échantillon. Ces deux techniques de microscopie sont présentées ci-dessous.

III.A.1 Low-Energy Electron Microscopy

Une revue détaillée de la microscopie LEEM peut être trouvée dans la Réf. [78]. Cette technique repose sur la diffraction de surface LEED (*Low-Energy Electron Diffraction*) dans laquelle un faisceau électronique de basse énergie (1-100 eV) en incidence normale est rétrodiffusé. Ce faisceau rétrodiffusé est ensuite collecté par une colonne d'imagerie électronique. A basse énergie les phénomènes de rétrodiffusion élastique et de diffusion inélastique sont favorisés par rapport à la diffusion vers l'avant. On travaille donc généralement en collectant la réflection LEED (0, 0). Néanmoins, le phénomène de rétrodiffusion élastique est limité par différents mécanismes : (i) l'onde électronique incidente possède une longueur de pénétration finie et peut donc subir des diffusions inélastiques dans l'échantillon. Les électrons incidents peuvent interagir avec les états électroniques de surface (ii) ainsi qu'avec les phonons de surface (iii) ou des impuretés de surface (iv) dont la particularité est de modifier le vecteur d'onde incident sans changer de manière significative son énergie, autorisant ainsi des transitions avec des états électroniques libres.

Différents mécanismes sont à l'origine du contraste observé sur une image LEEM. D'une manière générale la réflectivité d'une surface dépend de l'énergie du faisceau incident ainsi que du matériau étudié. D'autre part un mécanisme de contraste provient du fait que la microscopie LEEM repose sur l'utilisation de faisceaux diffractés en condition de rétrodiffusion en utilisant la tache de diffraction (0, 0) (*bright contrast*) ou en sélectionnant d'autres taches de diffraction (*dark field contrast*) pour l'imagerie. Aussi toute variation de périodicité locale (dislocations, ...) ou à grande échelle (surstructures) modifiera les conditions de diffraction qu'il est possible d'imager. Un second mécanisme de contraste est lié à des phénomènes d'interférence qu'il soit dû à une différence de phase géométrique ou à des effets de taille quantique. Le premier cas correspond à une différence de phase apparaissant entre les ondes électroniques rétrodiffusées de part et d'autre d'une marche atomique. La marche apparaîtra alors plus sombre que le reste de la surface. Des effets de tailles quantiques apparaissent notamment lorsque coexistent sur une surface des couches de différentes hauteurs atomiques. Des effets purement topographiques peuvent également être à l'origine de contrastes (surfaces facettées, dépressions, nanostructures, ...) en modifiant localement le champ électrique subit par les électrons et responsable de leurs trajectoires. Dans notre cas, l'essentiel du contraste LEEM est lié à la topographie de l'échantillon. En particulier, les électrons diffractés par les facettes inclinées sont arrêtés par le diaphragme de la colonne d'imagerie. Ces facettes apparaissent donc, sur les images LEEM, avec un contraste plus sombre que le reste de la surface.

La résolution latérale typique obtenue avec la microscopie LEEM est de ∼10 nm et est principalement limitée par les aberrations chromatique et sphérique de la lentille objectif induites par le champ électrique régnant à proximité de l'échantillon. Du fait du temps d'acquisition d'image faible grâce au flux d'électrons important, des études en temps réel sont possibles par microscopie LEEM. En particulier, les applications actuelles de cette technique traitent notamment des phénomènes de croissance [43], de démouillage[79], de réactivité de surface[80]. Dans notre étude, la microscopie LEEM a été utilisée pour obtenir des informations sur la topographie de nos échantillons. En particulier, comme nous le verrons dans la section III.B, les images LEEM nous ont permis de déterminer les dimensions des plots.

III.A.2 PhotoElectron Emission Microscopy - X-ray Magnetic Circular Dichroism

Une revue détaillée de la microscopie PEEM et du contraste magnétique associé au phénomène XMCD peut être trouvée dans les références [81, 82, 83].

III.A.2.a Principe physique de la microscopie PEEM

La microscopie PEEM est basée sur l'absorption de photons par un matériau. Les électrons secondaires générés par les mécanismes de désexcitation sont collectés par une colonne d'optique électronique pour former l'image finale. Différentes longueurs d'onde peuvent être utilisées. Historiquement, les rayonnements UV (10-45 eV) ont été les premiers types de radiations utilisées : on parle de *UV-PEEM*. Les développements récents des synchrotrons de troisième génération générant des faisceaux de rayons X de haute brillance ont permis l'essor des expériences dites *X-PEEM* utilisant des rayons X mous (300-1600 eV).

La microscopie UV-PEEM sonde des états électroniques de valence et est, par conséquent, sensible principalement au travail de sortie de la surface imagée. De son côté, la technique X-PEEM fait intervenir les niveaux électroniques de cœur (seuils d'absorption $K, L, \ldots$) et permet donc d'obtenir une sélectivité chimique de l'élément imagé (Fig. III.1). En pratique, les transitions entre niveaux électroniques étant gouvernées par la règle de sélection $\Delta l = \pm 1$, où l est le nombre quantique correspondant au moment orbital électronique, les métaux de transition (bande d), tel que le Fe, sont étudiés à l'aide des seuils d'absorption L_2 ($2p_{1/2} \rightarrow 3d$) et L_3 ($2p_{3/2} \rightarrow 3d$).

Au cours de cette étude, seule la technique X-PEEM a été utilisée. Aussi,

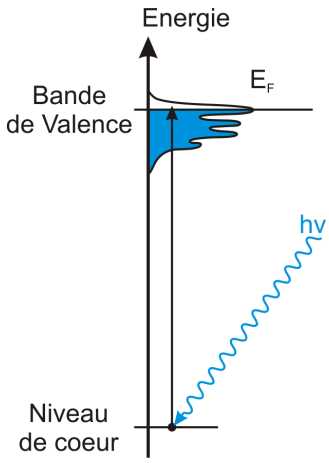

FIG. III.1 – Microscopie X-PEEM et mécanismes microscopiques. Absorption de rayons X mous par un niveau électronique de cœur et électrons photoémis[81].

dans la suite de ce manuscrit, nous traiterons principalement de cette technique.

III.A.2.b Détails instrumentaux de la microscopie X-PEEM

Pratiquement, le faisceau de rayons X illumine la surface de l'échantillon sous un angle d'incidence de $\sim 16\,^\circ$ par rapport au plan de l'échantillon de sorte que, pour les études magnétiques (détaillée dans le paragraphe III.A.2.c), la composante planaire mais aussi éventuellement perpendiculaire peuvent être sondée. Néanmoins les projections du spin des photons incidents dans le plan ($\cos 16\,^\circ \simeq 0.96$) et hors du plan ($\sin 16\,^\circ \simeq 0.28$) font de la technique XMCD-PEEM une méthode plutôt adaptée aux échantillons à aimantation planaire. Les détails de la colonne d'imagerie sont présentés sur la figure III.2.

Sur l'instrument que nous avons utilisé pour cette étude, le faisceau de rayons X est microfocalisé pour concentrer les photons sur la seule zone à imager, mais la résolution latérale de l'instrument est déterminée par l'optique électronique. Principalement trois effets limitent la résolution : les aberrations sphériques et chromatiques, et la diffraction[83]. Pour la microscopie X-PEEM, les aberrations chromatiques dominent. Les aberrations chromatiques sont induites par la difficulté de focaliser des électrons secondaires d'énergie différentes, notamment du fait du champ électrique permettant d'accélérer les électrons entre l'échantillon et la colonne d'imagerie. Afin de réduire cet effet, un diaphragme jouant le rôle de filtre passe-bas est placé dans

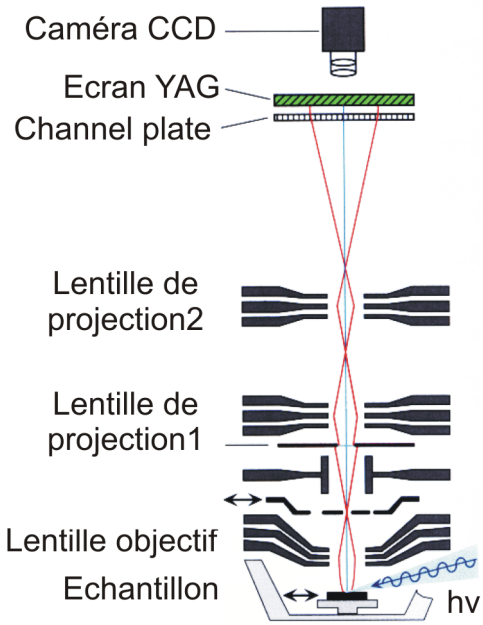

FIG. III.2 – Schéma de principe d'un microscope PEEM[83].

la colonne électronique (Fig. III.2). Les résolutions actuelles sont de l'ordre de 20 nm mais des corrections d'aberration et/ou l'utilisation de filtres en énergie devraient permettre très prochainement d'atteindre des résolutions latérales de 5 nm voir 2 nm à terme[83]. L'installation de tels dispositifs est d'ores et déjà programmée sur l'instrument français.

L'origine du contraste observé sur une image X-PEEM est multiple[83]. La microscopie X-PEEM reposant sur l'absorption d'un rayonnement lumineux, le premier mécanisme de contraste est lié à l'énergie des photons incidents. En faisant varier cette énergie, il est possible de sélectionner le matériau imagé en se plaçant au niveau de l'un de ses seuils d'absorption. Ainsi, la microscopie X-PEEM permet d'obtenir une sélectivité et donc un contraste chimique y compris pour des couches recouvertes. Du fait du libre parcours moyen, la profondeur d'échappement peut en effet atteindre 10 nm dans les métaux de transition dont la bande d est complètement remplie[82].

Le contraste des images X-PEEM peut être également influencé par la topographie de l'échantillon. Comme illustré par la figure III.3, le champ électrique à la surface de l'échantillon est modifié par sa topographie. Les trajectoires des électrons s'en trouvent également perturbées de sorte que les protubérances (les creux, resp.) apparaissent plus sombres (claires, resp.) que les zones planes. Des effets d'ombrage sont également observés. Enfin les

variations locales du travail de sortie de la surface induites notamment par des variations des propriétés chimiques de cette surface peuvent engendrer un contraste sur les images X-PEEM. Les régions dont le travail de sortie est plus faible apparaissent en effet plus claires car elles génèrent un nombre d'électrons plus important.

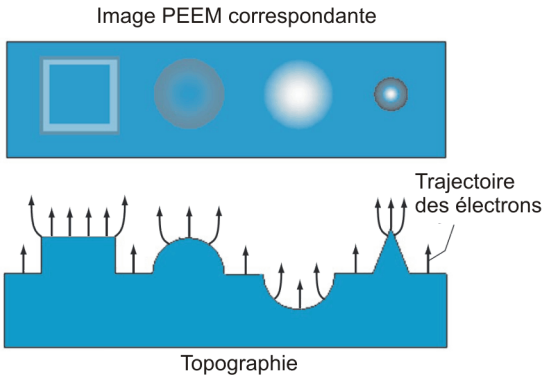

FIG. III.3 – Illustration du contraste topographique dans les images X-PEEM[83].

III.A.2.c XMCD et contraste magnétique en X-PEEM

Dans le cas d'un faisceau de rayons X polarisé circulairement (linéairement, resp.) illuminant un échantillon magnétique, un troisième mécanisme intervient dans le contraste d'une image obtenue par microscopie X-PEEM : on parle de contraste magnétique associé au phénomène XMCD, *X-ray Magnetic Circular Dichroism*, (XMLD, *X-ray Magnetic Linear Dichroism*, resp.). Dans la suite, seul le contraste XMCD sera développé.

Historiquement, les premières études du phénomène XMCD ont été théoriques et se sont intéressées au Ni[84] et aux terres rares[85]. Schütz et *coll.* ont observé pour la première fois la dépendance de l'absorption de rayons X polarisés circulairement en fonction de l'état magnétique du Fe[86]. En particulier, ils ont montré que les spectres d'absorption au seuil K du Fe variaient, pour une polarisation donnée du faisceau de rayons X incident, en fonction de l'orientation relative de l'aimantation de l'échantillon par rapport à la direction de propagation des photons ou plus précisément par rapport au spin, $\mathbf{s}_\gamma$, des photons. En pratique, les études sont généralement menées pour une orientation fixée de l'aimantation au sein des domaines magnétiques. Aussi, pour une direction d'aimantation donnée, la section efficace d'absorption d'un matériau magnétique varie selon la polarisation du faisceau de rayons X in-

cident [Fig. III.4(a)]. Le dichroïsme magnétique circulaire de rayons X est quantifié par deux grandeurs :

– le signal dichroïque absolu :

$$\Delta I_{XMCD} = I^+ - I^-, \tag{III.1}$$

où I^+ et I^- sont respectivement les intensités des spectres obtenus pour un faisceau de rayons X polarisé circulairement gauche et droite.

– l'asymétrie XMCD variant entre $\pm 100\,\%$:

$$A_{XMCD} = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} \tag{III.2}$$

Dans la suite, nous allons nous intéresser à l'origine du dichroïsme magnétique circulaire des rayons X. Nous allons également décrire comment cette différence d'absorption des rayons X polarisés circulairement est transmise aux électrons secondaires selon un processus en deux étapes [Fig. III.4] :

▷ Lors de la première étape, un trou dans un niveau de cœur ($2p_{3/2}$ sur la figure) est généré par l'absorption d'un photon X. Lors de cette étape, le spin du photon $\mathbf{s}_\gamma$ est transféré à l'électron photo-émis par couplage spin-orbite. L'absorption de photons polarisés circulairement gauche et droite génère donc des électrons de spin opposés. En se plaçant juste au dessus du seuil d'absorption, l'état final de cet électron se trouve dans un état inoccupé de la bande d au dessus de l'énergie de Fermi, E_F. Du fait du décalage des bandes d dû au couplage d'échange dans les métaux de transition magnétiques, la densité d'états inoccupés dans la bande d des électrons de spin minoritaires [à droite sur la Fig. III.4 (b)] est plus importante. En un sens, la bande d joue le rôle de filtre à spin. Au final, le signal dichroïque XMCD est proportionnel à la projection du spin $\mathbf{s}_\gamma$ sur l'aimantation $\mathbf{m}$.

▷ Dans une seconde étape, le trou de cœur est comblé par une désexcitation associée soit à l'émission d'un photon (fluorescence) soit à un mécanisme Auger. Dans ce dernier cas, l'asymétrie d'absorption est directement « transmise » aux électrons Auger générés puisque ce processus conserve le spin. Au cours de leur cheminement vers la surface de l'échantillon, les électrons Auger produisent par des phénomènes de diffusion inélastique une cascade d'électrons secondaires de faible énergie qui sont ensuite collectés par la colonne d'optique électronique pour former l'image finale. Aussi, avec une bonne approximation, l'intensité des électrons secondaires collectés est proportionnelle au nombre d'électrons Auger initialement générés. Pour des configurations parallèle ou antiparallèle de $\mathbf{s}_\gamma$ et de $\mathbf{m}$, le nombre d'électrons Auger générés et donc les intensités collectées seront différentes.

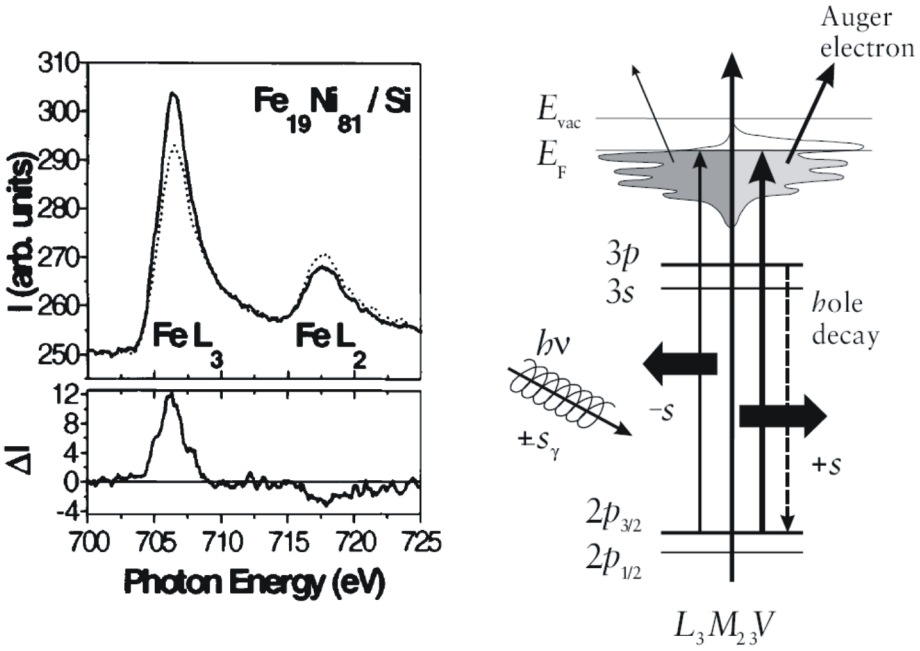

FIG. III.4 – (a) Spectres d'absorption aux seuils L_2 ($2p_{1/2} \rightarrow 3d$) et L_3 ($2p_{3/2} \rightarrow 3d$) du Fe d'une couche de Permalloy pour deux polarisation du faisceau de rayons X incidents. ΔI représente la différence des deux courbes obtenues pour les deux polarisations du faisceau[87]. (b) Origine du dichroïsme magnétique circulaire des rayons X[82].

Sur la figure III.4 (a), le changement de signe du signal dichroïque entre les deux seuils d'absorption trouve son origine dans le couplage spin-orbite opposé des niveaux $2p_{3/2}$ et $2p_{1/2}$: $l + s$ et $l - s$, respectivement, où s est le nombre quantique codant pour le spin électronique (avec $s = \frac{1}{2}$ et $l = 1$).

En pratique, dans le cas de la ligne *Nanospectroscopy* un faisceau de rayons X polarisé est obtenu par un déplacement des aimants permanents onduleurs de la ligne induisant un déphasage de l'onde électromagnétique. Il est également à noter que sur l'instrument que nous avons utilisé pour ces expériences, les électrons secondaires de basse énergie sont accélérés (typiquement sous une tension de 20 kV) et collectés par la même colonne d'imagerie que celle utilisée pour la microscopie LEEM. Après réglages de cette colonne, du fait de l'illumination d'une même zone par les électrons ou le faisceau de rayons X, il est possible de basculer d'une technique de microscopie à l'autre quasi-instantanément.

III.B Résultats expérimentaux

III.B.1 Protocole expérimental de l'étude

La microscopie PEEM utilisant des électrons secondaires de faible énergie en sortie d'échantillon (qqs eV), un champ magnétique planaire de l'ordre de 100 mT ne peut être appliqué en cours d'acquisition sous peine de déviation du faisceau électronique. Une étude à rémanence a donc été requise pour mettre en évidence le phénomène de retournement des domaines de fermeture de Néel sous champ transverse. Au cours de l'étude, l'échantillon était donc aimanté *ex situ* à une valeur de champ magnétique donnée, puis introduit dans la chambre du microscope avant d'être imagé à rémanence. Cette procédure a été répétée pour différentes valeurs de champ appliqué. Pour chacune de ces valeurs, nous avons mené une étude statistique sur typiquement 30-40 plots. Cette étude statistique est motivée par le fait qu'entre deux valeurs de champ successives la zone imagée n'est pas la même. Afin de visualiser le contraste magnétique associé à l'orientation du domaine de fermeture de Néel de surface de chaque plot, l'échantillon a été orienté de sorte que la direction de propagation des rayons X incidents soit transverse aux plots.

Pour chaque région de l'échantillon imagée, une image LEEM et deux images PEEM obtenues pour deux polarisations opposées du faisceau de rayons X (circulaire droite et gauche) ont été acquises. Afin d'améliorer le rapport signal sur bruit des images PEEM, l'acquisition de grandes séries d'images est nécessaire. L'inconvénient majeur de cette technique de moyennage est lié à la dérive du faisceau entre chaque image. Des procédures de corrélations entre images permettent de corriger cet effet de dérive. Néanmoins ces procédures ne sont efficaces que si le rapport signal sur bruit de chaque image est lui-même suffisant. L'optimum trouvé est le suivant :

Chaque image PEEM est composée d'une série de clichés (20-50) entre lesquels les procédures de corrections de dérive seront appliquées. Ces clichés sont eux-mêmes constitués de 8 images de courte durée (0.1-0.2 s) afin d'avoir un contraste suffisant. Les effets de dérive sont corrigés numériquement à l'aide de procédures développées, dans le logiciel commercial Igor Pro[88], par Andrea Locatelli[89]. De même entre les deux images PEEM obtenues pour les deux polarisations opposées du faisceau de rayons X, des effets de dérives sont observables, du fait notamment du temps requis ($\simeq$30 s) pour changer la polarisation du faisceau. Ces effets sont également corrigés avant l'obtention du contraste magnétique par différence des deux images PEEM de polarisation opposée. Les images LEEM sont également composées d'une série d'images (8-64) de 0.1-0.2 s.

La figure III.5 illustre les images typiquement obtenues au cours de cette

étude. Les images LEEM nous apportent une information sur la topographie de la surface et des plots. En particulier on observe une variation de contraste entre le sommet des plots et les facettes inclinées. L'acquisition de ces images utilisant les électrons rétrodiffusés, les facettes inclinées apparaissent plus sombres que le reste de la surface. Par ailleurs, des effets d'ombrage des plots sont révélés par les images LEEM et XMCD-PEEM. Leur origine est liée au faisceau de rayons X. En effet, du fait d'un angle d'incidence du faisceau de rayons X relativement faible (16 °) et que l'on travaille à un seuil d'absorption du Fe, la zone à l'arrière des plots n'est pas exposée au faisceau de rayons X. Ceci explique le contraste différent observé en XMCD-PEEM. De fait les propriétés chimiques de cette région de l'échantillon ne sont pas modifiées par le faisceau de rayons X (dégazage d'adsorbats, modification des liaisons chimiques, ...) d'où également une variation du contraste en LEEM.

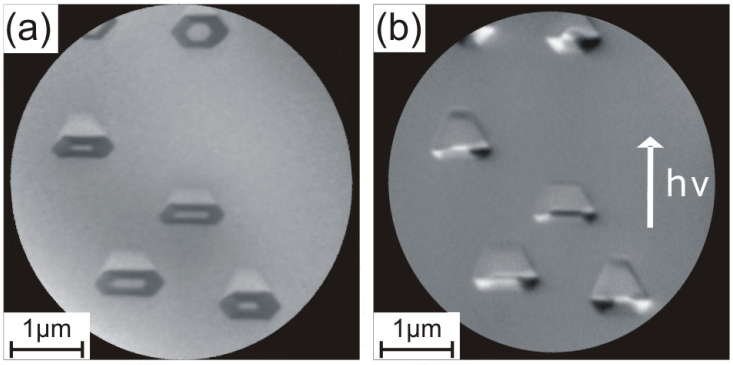

Fig. III.5 – Images (a) LEEM (topographie) et (b) XMCD-PEEM (magnétique) typiques obtenues lors de l'étude statistique de l'orientation des domaines de fermeture de Néel. La flèche blanche indique la direction du faisceau de rayons X ce qui permet de visualiser les domaines de fermeture de Néel du haut ainsi que les domaines présents aux extrémités des plots. Des images de plots individuels sont présentées sur la figure III.8.

L'objectif premier de cette étude concerne l'évolution des populations respectives de chaque orientation de domaines de fermeture de Néel du haut (blancs et noirs *c.à.d.* antiparallèles et parallèles à la direction de propagation des rayons X, respectivement) en fonction du champ appliqué. Pratiquement, l'étude a consisté en la détermination, pour chaque valeur de champ appliqué, de ces populations dans un ensemble de 30-40 plots imagés. Les résultats de cette étude sont présentés dans la section III.B.2. Dans un second temps, nous avons essayé de corréler la valeur du champ de retournement à des paramètres purement géométriques des plots : hauteur, rapports d'aspects

latéral r et vertical η. Cette étude est développée dans la section III.B.3. Pour cette seconde étude, les dimensions des plots ont été déterminées à partir de profils d'intensité obtenus sur des images LEEM pour chaque plot selon deux directions orthogonales et les distances ont été définies à mi-hauteur des marches d'intensité (Fig. III.6). Dans les plots de Fe(110), les faces inclinées les plus longues correspondent essentiellement aux plans cristallographiques (010)[22]. L'angle entre ces facettes et le plan de base (110) est donc de 45 °. La hauteur des plots est alors calculée comme la demi-différence des largeurs des surfaces inférieure et supérieure des plots. Pour les plots présentant une certaine asymétrie, les longueurs projetées sont considérées. Sur l'instrument que nous avons utilisé, l'incertitude sur les mesures de distances est de l'ordre de $\simeq$10 nm.

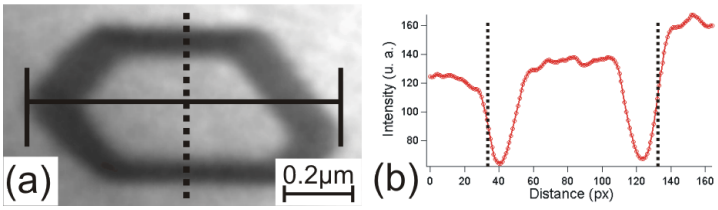

Fig. III.6 – Illustration des déterminations de dimensions. (a) Image LEEM d'un plot asymétrique. (b) Profil d'intensité de la largeur du plot présenté en (a). La largeur de la surface du bas est définie à mi-hauteur par les lignes pointillées. Dans (a), la longueur de la surface du haut est délimitée par les deux traits verticaux noirs.

III.B.2 Retournement des domaines de fermeture de Néel

Partant de l'échantillon vierge d'aimantation, différentes valeurs croissantes de champ magnétique transverse ont été appliquées parallèlement à la direction de propagation du faisceau de rayons X. Une augmentation, à rémanence, de la proportion de domaines de fermeture de Néel présentant un contraste magnétique blanc (antiparallèles au champ appliqué) a été observée (III.7). Aussi pour un champ appliqué de 150 mT, la quasi-totalité ($\simeq$90 %) des domaines de fermeture de Néel sont retournés et sont orientés dans la même direction. Un champ moyen de retournement de 120$\pm$20 mT est déduit, en bon accord quantitatif avec les simulations micromagnétiques. Nous avons également vérifié qu'en appliquant un champ de -150 mT, une inversion de population est mise en évidence : la proportion de domaines de fermeture de Néel noirs (parallèles au champ appliqué) est alors de $\gtrsim$90 %.

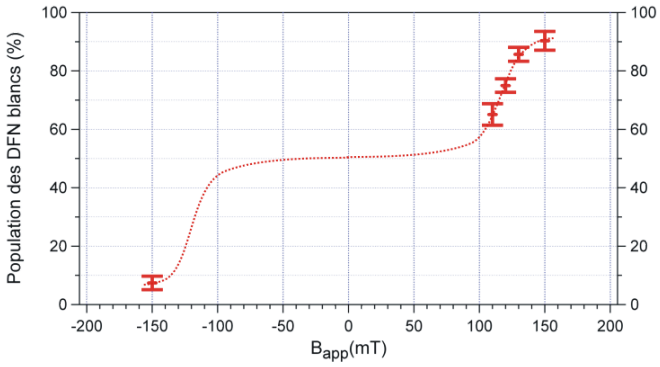

FIG. III.7 – Évolution, à rémanence, de la proportion de plots à domaine de fermeture de Néel du haut blanc (antiparallèles à la direction du champ appliqué) en fonction du champ.

La technique XCMD-PEEM ne donnant accès essentiellement qu'à l'aimantation de surface de l'échantillon, des simulations micromagnétiques 3D sont nécessaires pour comprendre les détails du processus de retournement des domaines de fermeture de Néel. Ces éléments ont déjà été développés dans la section II.C.3. Néanmoins la figure III.8 résume l'influence, à rémanence, d'un champ magnétique appliqué antiparallèlement au domaine de fermeture de Néel du bas.

Ainsi nous avons confirmé expérimentalement qu'il était possible de contrôler l'orientation de l'aimantation d'une composante interne d'une paroi magnétique. Un champ de saturation transverse de $\simeq$500 mT a été déterminé dans des plots similaires par des mesures de magnétométrie VSM[12]. Cette valeur étant significativement supérieure aux champs appliqués au cours de notre étude, l'ensemble de la configuration micromagnétique reste vraisemblablement inchangé lors du processus de retournement des domaines de fermeture de Néel conformément aux résultats des simulations. Il s'agit donc bien d'un processus d'aimantation des parois et non pas de domaines.

III.B.3 Champs de retournement et considérations géométriques

Lors de la phase d'analyse des données, nous avons également essayé de corréler la distribution de champs de retournement à des paramètres géométriques tels que la hauteur, les rapports d'aspect latéral r et vertical η. Plusieurs arguments peuvent en effet être avancés pour expliquer une éventuelle dépendance. Tout d'abord, les simulations réalisées sur des parois de longueur infinie (Sec. II.B) ont montré que pour une hauteur de plot supé-

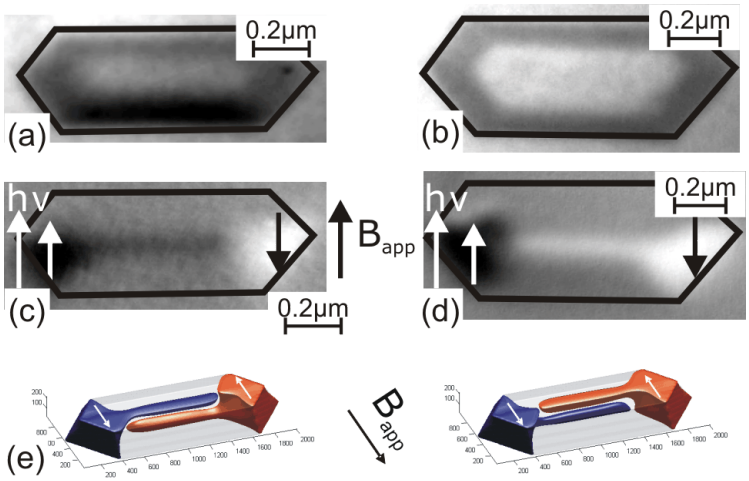

Fig. III.8 – Illustration du retournement de domaines de fermeture de Néel observé à rémanence avant (a, c, e) et après (b, d, f) application d'un champ magnétique transverse de 150 mT. (a, b) Images LEEM de deux plots différents de hauteur 95 nm et 105 nm respectivement. (c, d) Contraste magnétique XMCD des mêmes plots présentés en (a) et (b), respectivement. L'orientation de l'aimantation des domaines aux extrémités du sommet des plots sont indiqués. Les flèches blanches indiquent le sens de propagation du faisceau de rayons X incident. Le champ est appliqué parallèlement à cette direction. (e, f) Configurations micromagnétiques obtenues par simulations numériques obtenues pour un plot de hauteur 100 nm présentant les mêmes orientations de domaines de fermeture de Néel que les images XMCD-PEEM présentées en (c) et (d), respectivement. Seule la composante transverse de l'aimantation est représentée de sorte que l'on puisse visualiser les domaines de fermeture de Néel. Les flèches noires indiquent la direction du champ appliqué.

rieure à 100 nm, la valeur du champ de retournement décroissait. En effet, en augmentant la hauteur des plots, on s'attend à une décroissance du couplage dipolaire entre les deux domaines de fermeture de Néel présents dans un plot. De fait, le champ de retournement s'en trouve réduit. Par ailleurs, un champ transverse induit une rotation de l'aimantation des domaines longitudinaux par couplage Zeeman. Comme nous l'avons déjà évoqué, la différence fondamentale entre les couches minces et les nanostructures est que pour les premières, la rotation est limitée par l'anisotropie magnéto-cristalline alors que dans les secondes, c'est essentiellement le champ démagnétisant qui s'oppose à la rotation de l'aimantation. Dans le cas des plots, l'aimantation réalise au niveau du domaine de fermeture de Néel parallèle au champ transverse

appliqué une rotation inférieure à 180 ° alors que cette rotation est supérieure à 180 ° pour le domaine de fermeture de Néel antiparallèle au champ d'où surcoût d'énergie d'échange. Néanmoins en augmentant le rapport d'aspect latéral, le coefficient de champ démagnétisant transverse augmente également. De fait, à champ constant, la rotation des domaines longitudinaux sera plus faible pour un plot de rapport d'aspect latéral plus élevé et le surcoût énergétique sera lui réduit. En résumé, en augmentant le rapport d'aspect latéral, on favorise la configuration où les deux domaines de fermeture de Néel sont antiparallèles. On s'attend donc à observer une augmentation du champ de renversement avec le rapport d'aspect latéral.

Afin de vérifier ces hypothèses, nous avons réalisé les études suivantes. Pour les différents paramètres géométriques choisis, nous avons représenté (1) les histogrammes des populations totales (domaines de fermeture de Néel blancs et noirs) et des populations à domaines de fermeture de Néel blancs pour différentes valeurs de champ appliqué. A partir de ces histogrammes, nous avons déterminé et représenté (2) en fonction du champ appliqué la proportion des populations à domaines de fermeture de Néel blancs pour différentes valeurs de paramètres géométriques. La figure III.9 présente ces résultats pour la hauteur des nanostructures et leur rapport d'aspect.

Dans le cas d'une éventuelle dépendance, nous nous serions attendus à observer sur les courbes de type (1) l'apparition d'une asymétrie entre les histogrammes des populations totales (domaines de fermeture de Néel blancs et noirs) et ceux des populations à domaines de fermeture de Néel blancs. Sur les courbes de type (2), différentes valeurs de champ de saturation (*c.à.d.* le champ pour lequel tous les domaines de fermeture de Néel sont blancs) doivent être observées. Néanmoins du fait des incertitudes expérimentales, les différentes courbes sont confondues de sorte qu'aucune corrélation entre la valeur du champ de retournement et des paramètres géométriques ne peut être mise en évidence. Les incertitudes ont été estimées en considérant que pour chaque classe i des histogrammes de type (1), le nombre de domaines de fermeture de Néel blancs est une variable aléatoire. L'incertitude statistique est alors $\sqrt{N_i^{tot}}$, où N_i^{tot} est le nombre total de plots imagés (*c.à.d.* les plots à domaine de fermeture de Néel blanc et noir) appartenant à la classe i. Pour les courbes des type (2), l'incertitude sur les proportions de domaines de fermeture de Néel blancs est $1/\sqrt{N_i^{tot}}$.

Cette apparente absence de corrélation peut être due à une statistique de plots imagés insuffisante. Dans cette éventualité, il est à noter que des expériences permettant d'augmenter significativement le nombre de ces plots imagés sont en pratique difficiles à envisager. On pourrait également conclure que l'absence de corrélation dans cette étude vient simplement du fait que le retournement des domaines de fermeture de Néel est intrinsèquement indé-

pendant des effets de taille des plots. Des effets liés au caractère 3D des plots pourraient alors intervenir tels que des retournements initiés au niveau des arrêtes des facettes.

Néanmoins les résultats des simulations micromagnétiques réalisées sur des plots de longueur infinie (Sec. II.B) laissent penser que la dépendance du champ de retournement des domaines de fermeture de Néel en fonction de la hauteur des plots n'est pas linéaire et qu'en particulier entre 80 nm et 100 nm (hauteurs typiques des plots imagés lors de cette étude) cette dépendance est quasi-nulle. Aussi avant d'envisager une nouvelle étude expérimentale, la réalisation de simulations micromagnétiques sur des plots à base hexagonale pour différentes hauteurs apparaît nécessaire afin de déterminer la gamme de hauteurs de plots pour laquelle une dépendance du champ de retournement des domaines de fermeture de Néel en fonction de la hauteur devrait être observable avec un ensemble de plots imagés comparable à celui utilisé pour cette étude.

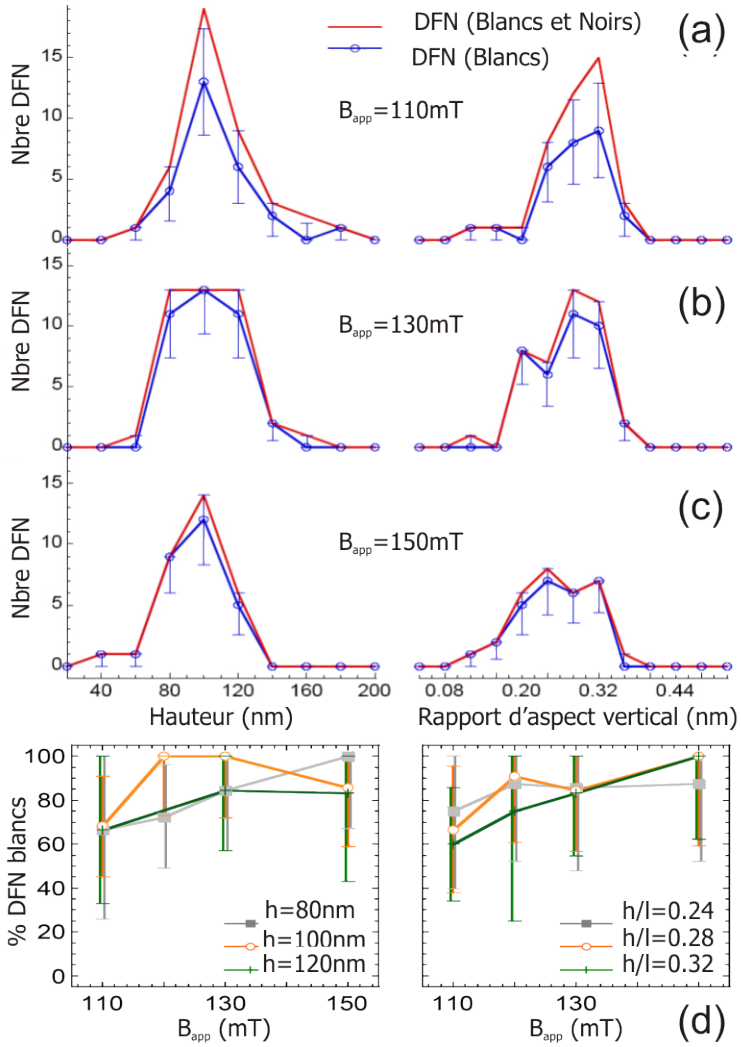

FIG. III.9 – Évolution, à rémanence, des histogrames de hauteur (gauche) et de rapport d'aspect vertical h/l (droite) des populations totales (ligne continue) et de plots (cercles ouverts) présentant un domaine de fermeture de Néel de surface blanc (antiparallèle au champ appliqué) pour un champ appliqué de (a) 110 mT, (b) 130 mT, (c) 150 mT. (d) Évolution, à rémanence et pour une hauteur donnée (gauche) ou pour un rapport d'aspect vertical donné (droite), de la proportion de plots présentant un domaine de fermeture de Néel de surface blanc (antiparallèle au champ appliqué) en fonction du champ appliqué.

Chapitre IV

Évolution, sous champ, des parois étudiées par microscopie de Lorentz

Sommaire

IV.A Microscopie de Lorentz : Principe et aspects instrumentaux 68

IV.A.1 Microscopie électronique à transmission 68

IV.A.2 Contrastes magnétiques et modes d'imagerie . . . 70

IV.A.2.a Contraste de Fresnel et Transport-of-Intensity Equation, TIE 71

IV.A.2.b Contraste de Foucault et Differential Phase Contrast, DPC 72

IV.A.3 Préparation des échantillons 73

IV.B Résultats expérimentaux 74

IV.B.1 Hystérésis des domaines de fermeture de Néel . . . 74

IV.B.1.a Contraste Fresnel 74

IV.B.1.b Contraste de Foucault et DPC 76

IV.B.1.c Transport-of-Intensity Equation 77

IV.B.2 Transition paroi-vortex 79

Dans ce chapitre nous présentons les résultats d'une étude menée en collaboration avec Aurélien Massebœuf, Pascale Bayle-Guillemaud (CEA \ DRMFC \ SP2M \ LEMMA - Grenoble), et Alain Marty (CEA \ DRMFC \ SP2M \ NM - Grenoble). L'objectif initial de cette étude était l'observation directe du phénomène de retournement des domaines de fermeture de Néel sous champ magnétique dans des nanostructures individuelles à l'aide de la microscopie électronique à transmission en mode imagerie magnétique appelée *microscopie de Lorentz*. Un autre aspect de cette étude a été le contrôle de la longueur d'une paroi de Bloch asymmétrique par un paramètre extérieur et notamment le phénomène de transition entre une paroi de longueur finie et un vortex magnétique.

Après avoir détaillé la technique expérimentale, les différents modes d'imagerie permettant l'obtention d'un contraste magnétique et les méthodes de préparation des échantillons, nous présenterons les résultats de ces études. Cette étude a été menée sur le microscope JEOL 3010 opérant à 300 kV et équipé d'un GIF (Gatan Imaging Filter) pour filtrer les images en énergie. Des résolutions magnétiques de 10-100 nmT sont typiquement atteintes avec cet instrument.

IV.A Microscopie de Lorentz : Principe et aspects instrumentaux

Dans cette partie, le principe de la microscopie électronique à transmission est exposé. Les différents modes permettant l'acquisition d'images magnétiques sont également introduits. Les concepts de base de cette technique de microscopie ainsi que des références complémentaires peuvent être trouvés dans [90].

IV.A.1 Microscopie électronique à transmission

La microscopie électronique à transmission (*Transmission Electron Microscopy, TEM*) est une technique de microscopie de haute résolution permettant dans certaines conditions d'atteindre la résolution atomique. Notons qu'en TEM, la préparation de l'échantillon constitue une étape cruciale. Un schéma illustratif d'une colonne d'imagerie de TEM est présenté sur la figure IV.1.

Les électrons sont produits soit thermiquement à l'aide d'un filament chauffé de W or LaB_6 soit à l'aide d'une pointe à émission de champ par application d'une tension. Une fois émis les électrons sont ensuite accélérés jusqu'à une énergie de travail relativiste. Cette énergie détermine la longueur

d'onde des électrons ($\lambda \simeq 1.97$ pm pour une énergie de 300 keV) mais aussi le pouvoir de pénétration des électrons. Une telle énergie est en effet requise pour traverser un échantillon de typiquement 100-200 nm d'épaisseur plutôt que pour augmenter la résolution de l'instrument, cette dernière étant limitée par les aberrations des lentilles.

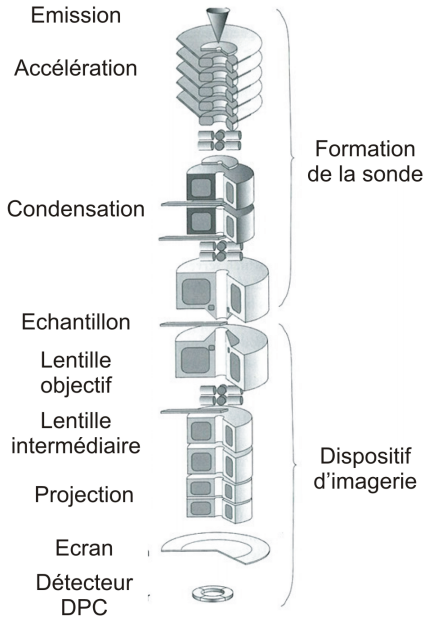

FIG. IV.1 – Colonne d'imagerie d'un TEM[90].

A la sortie du dispositif d'émission des électrons, les lentilles de l'étage condenseur forment le faisceau. Deux modes de travail sont disponibles : la technique TEM conventionnelle où, comme dans les microscopes optiques, un faisceau parallèle d'électrons illumine la surface de l'échantillon et la technique en mode balayage dite *STEM, Scanning Transmission Electron Microscopy* où un faisceau focalisé est balayé sur la surface de l'échantillon.

Dans la plupart des microscopes, l'échantillon est placé directement dans la lentille objectif qui joue alors souvent le rôle de condenseur supplémentaire et de lentille d'imagerie. Du fait de sa position, l'échantillon est soumis au champ magnétique généré par la lentille objectif (typiquement 1-3 T). Pour éviter de soumettre l'échantillon à un tel champ, la lentille objectif peut être éteinte. Deux approches alternatives permettent néanmoins de former une image. Dans la première, une lentille dite *intermédiaire* suffisamment éloignée de l'échantillon sert de lentille objectif. Ce mode de fonctionnement nécessitant une lentille de grande distance focale, ce dernier dégrade fortement la résolution et le grandissement est limité à 10^3 (soit une taille d'image

de l'ordre de 200 nm). Un autre approche est basée sur la lentille dite de Lorentz dont la conception permet d'atteindre des grandissements de 10^5 pour une résolution de 2 nm. Nous verrons dans le paragraphe suivant comment se forme le contraste magnétique.

Le dernier étage dit de projection permet la formation de l'image à proprement parler. Un nombre croissant de microscopes permettent le filtrage en énergie des électrons provenant de l'échantillon ce qui permet notamment de s'affranchir du bruit dû aux plasmons notamment. Le faisceau est ensuite collecté au niveau du détecteur (écran fluorescent et/ou caméra CCD)

Outre l'imagerie d'un échantillon, le TEM permet de déterminer d'estimer la variation de hauteur des structures imagées par la technique dite *cartographie d'épaisseur*. Cette méthode repose sur la relation :

$$\frac{\Delta t}{\lambda_{in}} = \ln \frac{I_0}{I_{\text{tot}}}, \tag{IV.1}$$

où Δt est l'épaisseur de la structure, λ_{in} représente le libre parcours moyen inélastique, I_0 et I_{tot} sont l'intensité de même énergie que le faisceau incident et l'intensité totale, respectivement.

D'après Egerton[91], λ_{in} peut être déterminé à partir de l'énergie du faisceau électronique en keV, du demi-angle de collection du microscope en mrad et de l'énergie chimique du matériau considéré (paramètre faisant intervenir le numéro atomique de l'élément). Dans le cas du Fe, $\lambda_{\text{in}} \simeq 120$ nm.

Aussi, d'après l'équation IV.1, à partir de deux images obtenues avec et sans filtrage en énergie et avec la valeur de λ_{in}, il est possible de déterminer l'épaisseur locale d'une structure sur la surface de l'échantillon.

IV.A.2 Contrastes magnétiques et modes d'imagerie

Dans une approche classique, lorsqu'un électron incident de charge $-e$ et de vitesse $\mathbf{v}$ traverse un échantillon magnétique générant une induction magnétique $\mathbf{B}$, celui-ci subit la force de Lorentz $\mathbf{F}$ déviant la trajectoire de l'électron d'un angle β :

$$\mathbf{F} = -e.\mathbf{v} \times \mathbf{B}, \tag{IV.2}$$

$$\beta = \frac{e\lambda}{2\pi\hbar} \int B.dz \tag{IV.3}$$

où λ est la longueur d'onde. Dans le cas d'une induction magnétique uniforme, cette dernière équation devient : $\beta = \frac{e\lambda Bt}{2\pi\hbar}$, où t est l'épaisseur de

l'échantillon. D'un point de vue quantique, Aharanov et Bohm ont montré qu'une induction magnétique induisait un déphasage de l'onde électronique. Notons que dans les techniques de microscopies électroniques, l'induction magnétique est détectée et non directement l'aimantation[90].

La microscopie de Lorentz exploite ces modifications du faisceau d'électrons pour étudier les propriétés micromagnétiques d'un échantillon. D'après l'équation IV.2, la microscopie de Lorentz ne devrait être sensible qu'à des inductions magnétiques planaires. Des études récentes s'intéressent néanmoins aux couches magnétiques à aimantation perpendiculaire pour lesquelles aucun contraste en microscopie de Lorentz n'est attendu *a priori*[92].

La microscopie de Lorentz présente l'avantage de pouvoir réaliser des études sous champ magnétique. En effet, comme indiqué dans la section précédente, il est possible de se servir d'une lentille distante de l'échantillon en guise de lentille objectif (lentille intermédiaire ou lentille de Lorentz). La lentille objectif habituelle peut alors servir de source de champ magnétique axial. Pour les études nécessitant un champ planaire, comme celle présentée dans ce manuscrit, une rotation de l'échantillon autour d'un axe transverse à la colonne permet d'obtenir par projection une composante planaire non nulle.

Plusieurs mode d'imagerie sont disponibles en microscopie de Lorentz : le contraste de Fresnel, de Foucaul et l'holographie. Ici, les deux premiers modes seront détaillés car ils ont été les seuls utilisés au cours de cette étude.

IV.A.2.a Contraste de Fresnel et Transport-of-Intensity Equation, TIE

La méthode la plus simple pour obtenir un contraste magnétique dans la microscopie de Lorentz consiste à défocaliser légèrement la lentille objectif. En terme d'optique géométrique, nous avons vu qu'une induction magnétique, générée par l'aimantation d'un domaine magnétique par exemple, dévie la trajectoire des électrons. Deux domaines d'orientation d'aimantation opposée induiront des modifications de trajectoires opposées. De fait sur l'image finale défocalisée, des zones de sur/sous-intensité correspondront aux régions de l'échantillon séparant deux domaines magnétiques. Le contraste de Fresnel permet donc la visualisation des parois de domaines magnétiques. En augmentant la défocalisation le contraste magnétique est augmenté au détriment de la résolution de l'image. Un compromis doit être trouvé.

Basée sur le contraste de Fresnel, la méthode TIE permet de déterminer l'orientation vectorielle de l'aimantation de l'échantillon. Plus précisément, elle repose sur l'équation présentée dans la référence[93].

$$\frac{2\pi}{\lambda}\frac{\partial}{\partial z}I(\mathbf{r}) = -\nabla_{\mathrm{xy}}.\left[I(\mathbf{r})\nabla_{\mathrm{xy}}\phi(\mathbf{r})\right], \tag{IV.4}$$

où λ est la longueur d'onde des électrons, $I(\mathbf{r})$ est l'intensité du faisceau, ∇_{xy} est l'opérateur gradient à deux coordonnées dans le plan de l'échantillon et $\phi(\mathbf{r})$ la phase de l'onde électronique. Cette équation relie le gradient de l'intensité le long de l'axe optique au déphasage de l'onde électronique dans le plan de l'échantillon. Ce dernier est, comme nous l'avons déjà évoqué, directement lié à l'induction générée par l'échantillon. Aussi dans le déphasage de l'onde électronique, une contribution liée à l'aimantation de l'échantillon intervient (les effets dûs au champ dipolaire sont également à prendre en considération). Pratiquement, le gradient vertical de l'intensité est déterminé à partir de plusieurs images obtenues dans des conditions de focalisation, sur/sous-focalisation. A partir de ce gradient, la cartographie de l'aimantation peut être reconstruite numériquement.

IV.A.2.b Contraste de Foucault et Differential Phase Contrast, DPC

Chaque domaine magnétique induit une déviation du faisceau électronique qui lui est propre. Cela se traduit, dans le plan de diffraction, par des tâches de diffraction distinctes correspondant à chaque orientation de domaines. A l'aide d'un diaphragme placé dans le plan de diffraction, il est possible de sélectionner une tâche de diffraction et donc une orientation de domaines. Pratiquement, ces images sont obtenues en déviant le plan de diffraction plutôt qu'en déplaçant mécaniquement le diaphragme de sorte que le faisceau collecté contient le faisceau transmis et la tâche de diffraction correspondante à l'orientation de domaine voulue. Sur l'image finale seule les zones de l'échantillon présentant cette orientation de domaines seront visibles. Les autres régions apparaîtront en noir. On parle de contraste de Foucault pour cette méthode permettant d'imager une seule orientation de domaines magnétiques. Cette méthode s'apparente à la famille des techniques d'imagerie dites *de champ sombre*.

La méthode DPC repose sur le contraste de Foucault. Une série d'images est réalisée pour différentes orientations de domaines magnétiques (selon, par exemple, $\pm\mathbf{x}$ et $\pm\mathbf{y}$). La cartographie de l'aimantation est ensuite reconstituée numériquement à partir des différentes orientations de domaines.

IV.A.3 Préparation des échantillons

Dans la microscopie électronique à transmission, une étape cruciale de l'étude est la préparation des échantillons, l'objectif étant d'obtenir une zone de l'échantillon où l'épaisseur ne dépasse pas 100-200 nm pour que les électrons incidents puissent traverser l'échantillon. Plusieurs techniques de préparation sont couramment utilisées. La première consiste à déposer directement l'échantillon sur une membrane. Les membranes utilisées en TEM sont principalement constituées de C amorphe[94] ou de Si_3N_4[95]. La fabrication de ce dernier type de membrane (d'épaisseur supérieure à 20 nm) est obtenue à partir d'un substrat de Si. Le substrat est recouvert sur les deux surfaces par une couche de Si_3N_4. Sur l'une des faces, une zone généralement de forme carrée du Si est mise à jour par attaque chimique. Cette zone du substrat est ensuite gravée chimiquement par voie humide (KOH à chaud ou NaOH). La gravure est arrêtée lorsque le front de gravure atteint la seconde couche de nitrure qui constitue la membrane sur laquelle la couche à étudier est déposée.

Une autre approche vise à libérer la couche à étudier en dissolvant le substrat dans un solvant adapté puis de déposer cette couche sur une membrane métallique. Une autre méthode classique de préparation consiste à amincir le substrat par polissage mécanique. La préparation finale consiste alors soit à amincir par la tranche le substrat à l'aide d'un FIB (*Focused Ion Beam*) soit à réaliser une attaque par bombardement ionique sous angle (7-8 ° par rapport au plan de l'échantillon) jusqu'à ce qu'un trou biseauté soit réalisé dans le substrat. Au niveau du trou biseauté, des zones où le substrat mesure 100-200 nm d'épaisseur sont alors observées.

Dans notre cas, les plots sont obtenus par croissance épitaxiale sur un substrat de saphir. Les techniques habituelles à base de membranes en C amorphe ou Si_3N_4 ne sont donc pas applicable à notre système. Aussi, au cours de cette thèse, nous avons tenté de développer en collaboration avec Laurent Cagnon, diverses approches de libération de la couche adaptées à nos échantillons. La première, comme présenté précédemment, visait à attaquer par voie chimique de manière privilégiée le substrat. La difficulté dans notre cas résidait dans le fait que le saphir est très résistant aux attaques chimiques. Aussi malgré nos diverses tentatives (mélanges à base de NH_4OH, H_2O_2, HF ; solution de KOH concentrée à 14 M à chaud ; ...), aucune n'a montré une attaque significative du saphir. Une autre approche visait à insérer une couche métallique pour laquelle la croissance épitaxiale sur saphir $(11\bar{2}0)$ est connue (Nb par exemple) au moment du dépôt par PLD entre le substrat et la couche de Mo. Cette couche devait ensuite être attaquée libérant ainsi la couche de Mo supportant les plots de Fe. Différentes attaques ont été essayées

(oxydo-réduction, attaque acide) mais soit les vitesses d'attaque n'étaient pas suffisante (oxydo-réduction) soit la sélectivité chimique du Nb par rapport au Mo n'était pas suffisante.

Dans l'étude présentée dans ce chapitre, deux techniques de préparation des échantillons ont finalement été utilisées. Dans les deux cas, un polissage mécanique a été réalisé, dans un premier temps, pour affiner le substrat jusqu'à typiquement $\simeq 10\,\mu$m. L'étape finale de préparation est basée, dans la première méthode, sur une attaque par FIB alors que pour la seconde approche, la préparation repose sur le bombardement ionique sous angle.

IV.B Résultats expérimentaux

IV.B.1 Hystérésis des domaines de fermeture de Néel

Comme précisé dans l'introduction de ce chapitre, l'objectif initial de cette étude était l'observation du retournement des domaines de fermeture de Néel par microscopie de Lorentz et la mise en évidence du phénomène d'hystérésis associée à ce phénomène. Dans cette section nous présentons les différents résultats de cette étude.

IV.B.1.a Contraste Fresnel

Après préparation, par la méthode utilisant le FIB, d'un échantillon, ce dernier a été positionné sur la membrane et ajusté en rotation de sorte que la composante planaire du champ soit la plus parfaitement alignée dans la direction transverse des plots. Les différentes images obtenues en fonction de la composante planaire du champ magnétique sont présentées sur la figure IV.2.

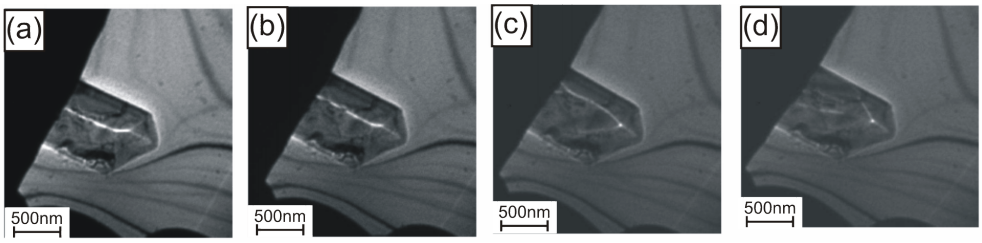

Fig. IV.2 – Images (microscopie de Lorentz) obtenues en contraste de Fresnel sur un plot de Fe(110) pour différentes valeurs de champ transverse appliqué. L'échantillon est tourné de 21.5 ° par rapport à l'axe de la colonne (perpendiculaire au plan de l'image).

Le plot imagé se trouvant en limite de zone de préparation, ce dernier ne peut être visualisé dans son intégralité. Néanmoins, à champ nul [configuration identique à celle présentée sur la figure IV.2 (a)], une configuration de type Landau est clairement identifiée. Le contraste des images permet également de visualiser les parois à 90 ° à l'extrémité de la structure. Pour une valeur de champ croissante, on observe que la paroi se déforme progressivement puis un saut brusque de la paroi est visualisé entre 78 mT et 125 mT. Entre 125 mT et 128 mT, la partie centrale de la paroi est expulsée. Ce comportement sous champ révèle que l'échantillon n'était pas parfaitement aligné par rapport à l'axe de rotation. En effet seule une composante longitudinale du champ appliqué permet de déplacer une paroi de Bloch dans la direction transverse.

Concernant le saut observé entre 78 mT et 125 mT, il est naturel, compte-tenu des valeurs de champ appliqué proches des champs de transition prédits par les simulations micromagnétiques, de se poser la question de savoir s'il est associé ou non à la transition entre une paroi de Bloch asymétrique et une paroi de Néel asymétrique. La figure IV.3 présente la variation du contraste attendue au cœur de la paroi lors du changement de configurations sur des images obtenues en contraste de Fresnel.

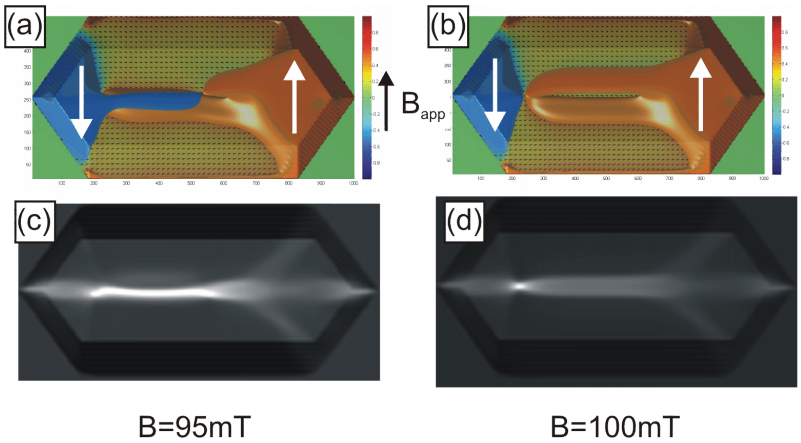

Fig. IV.3 – (a,b) Simulations micromagnétiques d'un plot de Fe(110) sur un plot de 1000 × 500 × 100 nm sous champ magnétique (a) avant et (b) après le retournement du domaine de fermeture de Néel du haut. (c,d) Simulations du contraste de Fresnel correspondant aux images (a,b) respectivement.

Ces simulations ont été réalisées par Aurélien Massebœuf à partir des simulations micromagnétiques sous champ présentées dans le chapitre II. Ces simulations sont basées sur le calcul du déphasage de l'onde électronique incidente induit par l'échantillon (effet Ahranov-Bohm) et par la colonne

d'imagerie (fonction de transfert). Les images obtenues en mode Fresnel avant et après le saut de la paroi laissent penser qu'une variation de contraste au sein de la paroi est probablement observée. Néanmoins les images obtenues ne permettent pas de conclure de manière définitive. Dans la suite, nous allons donc chercher à imager directement les domaines.

IV.B.1.b Contraste de Foucault et DPC

Afin de pallier aux limitations des mesures en mode Fresnel, nous avons déterminé la cartographie de l'aimantation du plot précédemment imagé en mode DPC. Nous espérions ainsi obtenir des informations supplémentaires à partir de l'orientation locale de l'aimantation. Les images obtenues sont présentées sur la figure IV.4.

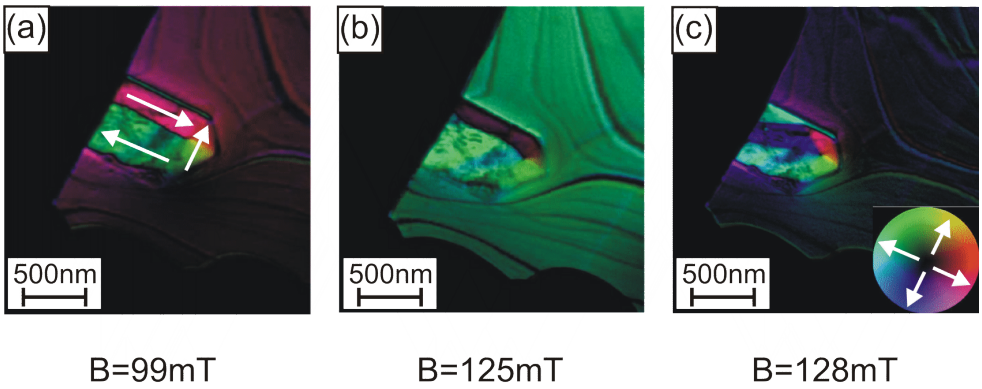

Fig. IV.4 – Images (microscopie de Lorentz) obtenues en mode DPC sur un plot de Fe(110) pour différentes valeurs de champ transverse appliqué. Le plot imagé se trouvant en limite de la fenêtre de préparation du substrat, seule une partie du plot est observable. Le code des couleurs correspond à l'orientation de l'aimantation dans le plan de l'échantillon. Le saut de la paroi est observable entre (a) 99 mT et (b) 125 mT. Entre (b) 125 mT et (c) 128 mT la paroi est fortement déformée sous l'effet du champ appliqué. L'échantillon est tourné de 21.5 ° par rapport à l'axe de la colonne (perpendiculaire au plan de l'image).

Ici encore, les simulations des cartographies d'aimantation en mode DPC (Fig. IV.5) nous informent qu'une variation de contraste à l'intérieur de la paroi est attendue lorsque le domaine de fermeture de Néel du haut se retourne. Les images obtenues ne permettent néanmoins pas de conclure quant à une variation de ce contraste interne.

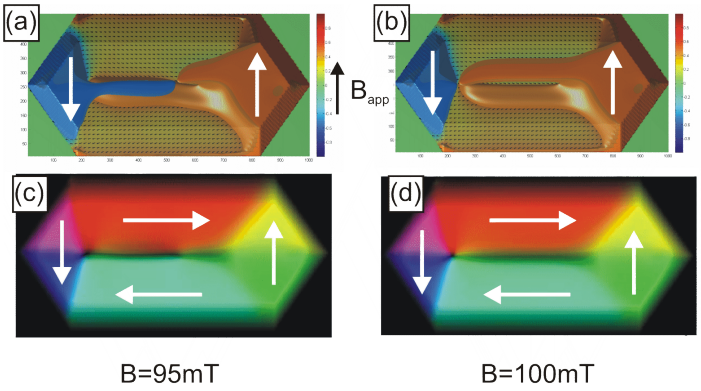

FIG. IV.5 – (a, b) Simulations micromagnétiques d'un plot de Fe(110) sur un plot de 1000 × 500 × 100 nm sous champ magnétique (a) avant et (b) après le retournement du domaine de fermeture de Néel du haut. (c, d) Simulations de la cartographie d'aimantation en mode DPC correspondant aux images (a, b) respectivement. Une variation de contraste est attendue au niveau de la paroi lors du retournement du domaine de fermeture de Néel du haut.

IV.B.1.c Transport-of-Intensity Equation

Une nouvelle zone de l'échantillon a été préparée par la méthode utilisant le bombardement ionique afin de pouvoir imager un plot dans son ensemble et espérer observer une signature du saut à une extrémité, ce qui n'avait pas été possible lors de l'étude précédente car pour une valeur de champ transverse négative, l'échantillon sortait du champ de vue par ombrage. L'échantillon a ensuite de nouveau été introduit dans le microscope et aligné de manière plus précise de sorte que la composante planaire du champ appliqué soit la plus parfaitement transverse. Sur un plot présentant une configuration losange, une comparaison entre les imageries DPC et TIE a été réalisée afin de déterminer quel mode nous permettrait de visualiser au mieux le retournement des domaines de fermeture de Néel (Fig. IV.6). Il ressort de cette étude comparative que la résolution du mode TIE est supérieure à celle du DPC notamment concernant la définition des différents vortex de la structure imagée. Une étude en champ d'un plot de Fe(110) présentant une configuration de Landau a été menée en mode TIE (Fig. IV.7).

Les images présentées sur la figure IV.7 montrent l'influence d'un champ magnétique transverse sur la configuration magnétique d'un plot dont la hauteur de ≃95 nm a été déterminée par la technique de la cartographie d'épaisseur (p. 70). Cette hauteur de plot nous permet en effet de nous rapprocher au mieux des simulations micromagnétiques déjà effectuées. Peu de changements sont observables entre les configurations avant et après application

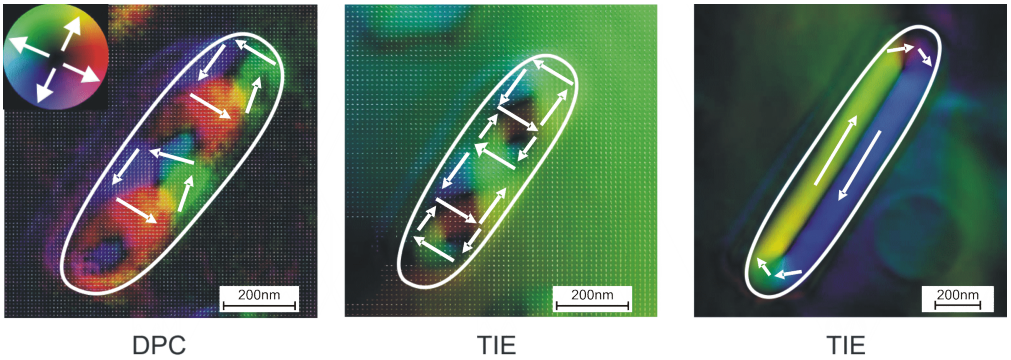

Fig. IV.6 – Comparaison pour un même plot présentant une configuration de type losange entre une cartographie de type (a) DPC et (b) de type TIE. (c) Cartographie d'aimantation en mode TIE obtenue sur un plot en configuration de Landau. Les ellipses blanches aident à visualiser les limites des plots.

d'un champ à part un léger changement de contraste dans les domaines longitudinaux. Concernant la configuration sous un champ appliqué de 200 mT, il apparaît que la zone centrale de la paroi devient légèrement plus large. Néanmoins les images présentées ne permettent pas d'identifier le retournement des domaines de fermeture de Néel en termes de différence de coloration signalant les composantes transverses de l'aimantation.

Une difficulté de la reconstruction TIE est que les images permettant de reconstituer la cartographie d'aimantation d'une surface sont obtenues pour différentes focalisations. Aussi toute variation locale d'épaisseur induit des contrastes structuraux dépendant de la focalisation, qui provoquent des artefacts sur l'image magnétique reconstruite. Contrairement aux études habituelles de microscopie électronique à transmission où l'échantillon est directement déposé sur une membrane fine et uniforme[95], dans nos études, l'amincissement du substrat de saphir a été nécessaire. En particulier malgré les efforts consentis par Aurélien Massebœuf pour optimiser la préparation des échantillons, il ressort que des progrès sont encore nécessaires, si on veut tirer parti de la résolution théorique de l'instrument, ce qui n'a pu être fait au cours de cette thèse par manque de temps. D'autre part, les dernières améliorations techniques sur le nouveau microscope Titan (correction d'aberration sphérique) devrait permettre d'améliorer la qualité des images lorsque ce dernier pourra être opéré en mode DPC et/ou TIE.

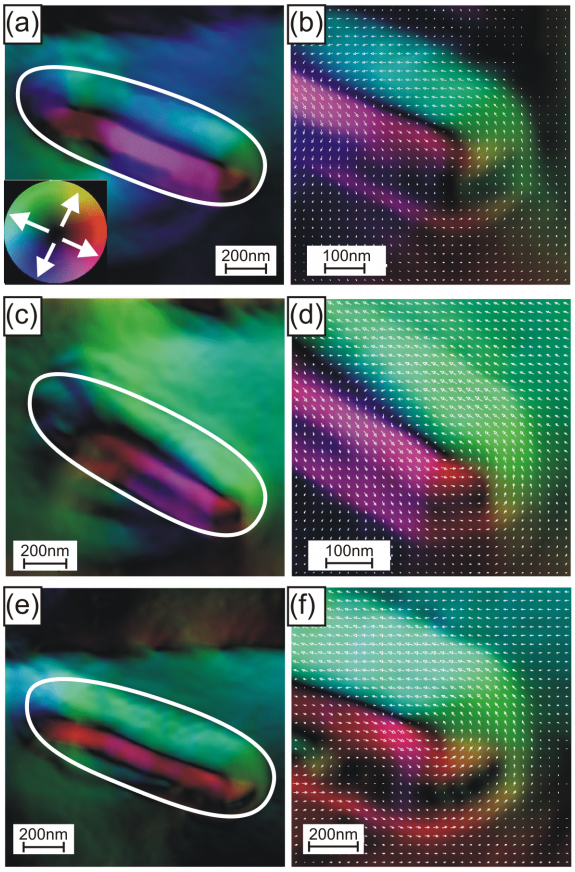

Fig. IV.7 – Étude de la configuration sous champ d'un plot de Fe(110) en mode TIE (tilt=19.3 °). (a, b) Configuration initiale à rémanence. (c, d) Configuration sous un champ transverse de 200 mT. (e, f) Configuration finale à rémanence.

IV.B.2 Transition paroi-vortex

Comme nous l'avons évoqué dans l'introduction générale de ce manuscrit, la motivation centrale de ce travail de thèse était d'étudier des objets magnétiques plus complexes (telles que les parois de domaine) que les vortex, habituellement utilisés. Or ces deux objets étant topologiquement identiques, on peut alors se poser la question de l'existence ou non d'une transition entre ces deux états. Le paramètre le plus intuitif pour contrôler la longueur de la paroi est la longueur du plot. Si, du point de vue des simulations micromagnétiques, il est possible de faire varier la longueur du plot, expérimentalement ce paramètre n'est pas ajustable notamment dans les structures obtenues par lithographie où des fluctuations d'une structure à l'autre peut influencer

les résultats. Il est donc nécessaire de trouver un autre paramètre pilotant la transition. Dans cette étude, le champ extérieur s'est révélé être un paramètre expérimental permettant de contrôler la longueur de paroi.

Les simulations micromagnétiques ont été réalisées en collaboration avec Jean-Christophe Toussaint sur les plots parallélipédiques de largeur et de hauteur fixées. Ces simulations ont été réalisée successivement pour une longueur de structure croissante puis décroissante afin de s'affranchir de tout phénomène d'hystérésis. Partant d'un état Landau, nous définissons la longueur de la paroi de Bloch comme la distance entre les deux vortex de surfaces. La configuration vortex est atteinte lorsque la distance entre les deux vortex de surface est nulle (Fig. IV.8). Nous définissons également la longueur d'excès Δl comme la différence entre la longueur L et la largeur l de la structure.

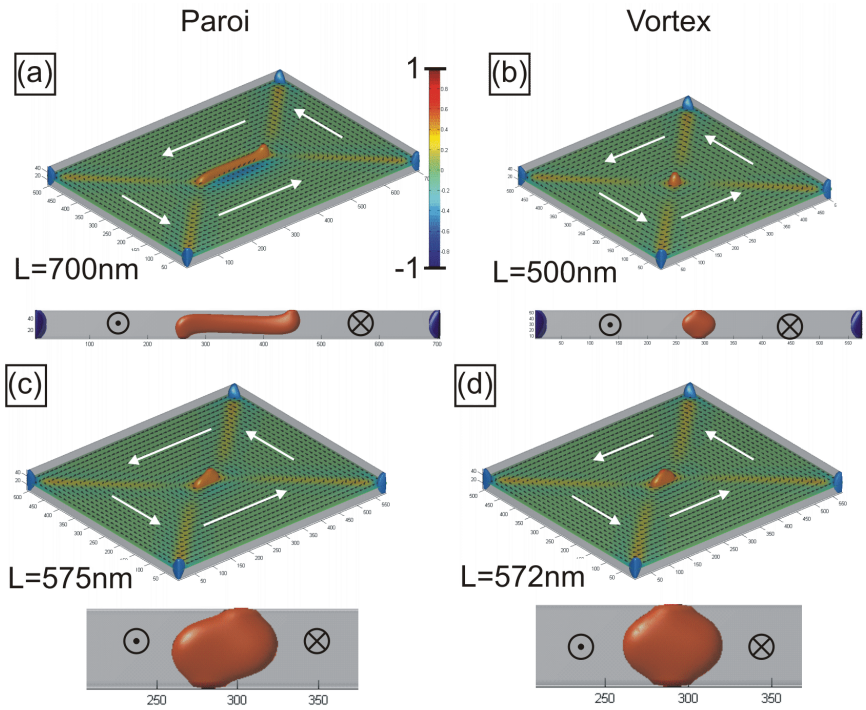

Fig. IV.8 – Simulations micromagnétiques obtenues sur un plot parallélipédique de longueur variable et de section 500×50 nm. Seule la composante perpendiculaire de l'aimantation des régions où $|m_z| = 0.5$ est représentée de sorte que les paroi et vortex puissent être visualisés.

La figure IV.9 présente la synthèse de ces études pour trois hauteurs de plots différentes. Sur la figure IV.9 (a), on observe que, pour les grandes longueurs de nanostructures, la longueur de paroi décroît linéairement avec la longueur d'excès (définie comme différence entre la longueur du système et la

largeur de la nanostructure), quelque soit la hauteur de la nanostructure, ce qui est en accord avec la construction de van den Berg. Dans la construction de van den Berg d'un plot rectangulaire, les parois inclinées situées aux extrémités de la nanostructure font en effet un angle de 45 ° avec le côté latéral du plot.

On note cependant que l'ordonnée à l'origine de ces asymptotes n'est pas nulle, comme le montre la ligne en pointillés. Autrement dit, les vortex ne se situent pas à l'intersection des bissectrices des angles, comme le prévoyait le modèle purement 2D de van den Berg. Ceci signifie que dans le cas micromagnétique, les parois à 90 ° sont légèrement courbées.

En dessous d'une longueur d'excès proche de l'ordre de $\Delta l \simeq 100$ nm, le comportement observé dévie de l'évolution linéaire et le système converge prématurément vers la configuration vortex pour une longueur d'excès non nulle. La forme de ces courbes fait penser à une transition du second ordre, c'est-à-dire caractérisée par une croissance du paramètre d'ordre à la transition en racine carré du paramètre extérieur. Pour vérifier ceci, la figure IV.9 (b) représente le carré de la longueur de paroi en fonction de la longueur de la nanostructure. A la transition, l'évolution est clairement linéaire traduisant le fait que le système converge vers la configuration vortex en racine carré. Ainsi la transition paroi-vortex observée s'apparente en effet à une transition de phase du second ordre dans la théorie de Landau.

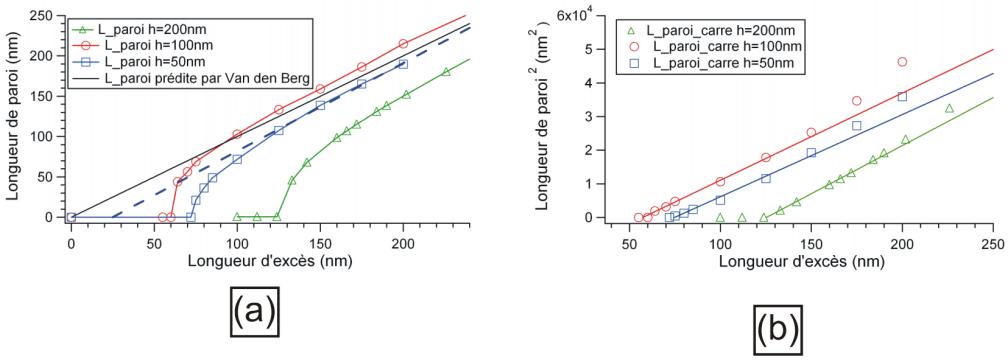

FIG. IV.9 – Longueurs de paroi et simulations micromagnétiques. (a) Longueurs de paroi obtenues par simulations dans des plots de forme parallélépipédique de largeur 500 nm pour différentes hauteurs et prédites par la construction de van den Berg (triangles ouverts) en fonction de la longueur d'excès $\Delta l = L - l$, où L et l sont respectivement les longueur et largeur du plot considéré. (b) Carré de la longueur de paroi en fonction de la longueur d'excès pour différentes hauteurs. Les courbes de tendance linéaires sont représentées.

Expérimentalement, la longueur d'une même structure ne peut être contrôlée de manière continue. Il n'est pas envisageable non plus de réaliser l'étude sur une assemblée de plots. En effet des systèmes obtenus par auto-assemblage présentent une certaine distribution de forme et de hauteur pouvant influencer les résultats. De même des systèmes obtenus par lithographie présentent des variations de dimensions de l'ordre de 20-30 nm qu'il semble difficile de discriminer des résultats physiques. Nous avons donc cherché un autre paramètre extérieur susceptible de piloter la transition. Au cours de notre étude sur le retournement des domaines de fermeture de Néel par microscopie de Lorentz, il s'est avéré que le champ magnétique constituait une alternative pour contrôler la configuration micromagnétique d'une nanostructure. Ainsi comme le montre la figure IV.10, la configuration micromagnétique d'un plot peut être, dans certaines conditions, préparée, par application d'un champ, dans un état Landau ou un état losange.

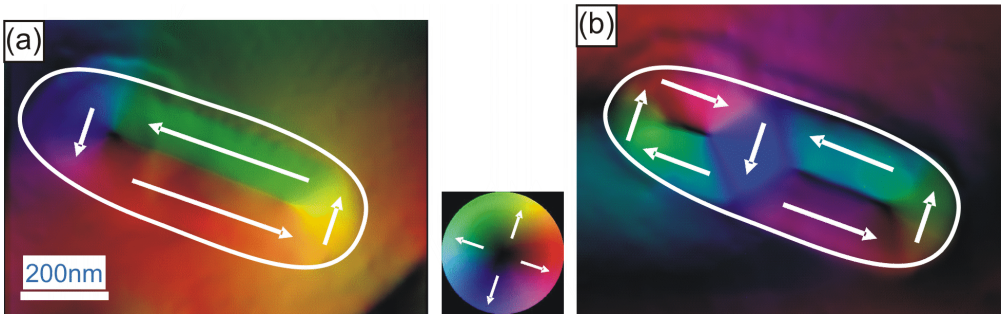

Fig. IV.10 – Images obtenues par microscopie de Lorentz en mode TIE d'un même plot dans deux configuration micromagnétiques différentes. (a) État Landau. (b) État losange.

En particulier, en stabilisant un plot dans un état losange caractérisé, à rémanence, par la présence, au centre de la structure, de deux parois de vorticités opposées, nous avons pu influencer la longueur des parois de Bloch asymétriques présentes dans cette configuration. La figure IV.11 illustre le contrôle de la longueur d'une paroi de Bloch asymétrique par l'application d'un champ extérieur.

En augmentant la valeur du champ appliqué (présentant une composante perpendiculaire et transverse), on observe que l'une des deux parois s'allonge au détriment de l'autre. La raison de ce changement de longueur sous champ reste une question ouverte. Il se peut que l'orientation de l'aimantation du cœur des deux parois soit opposée et qu'en appliquant un champ à forte composante perpendiculaire, l'une des parois soit favorisée par rapport à l'autre. Ceci ne peut être vérifié par microscopie de Lorentz car cette technique n'est,

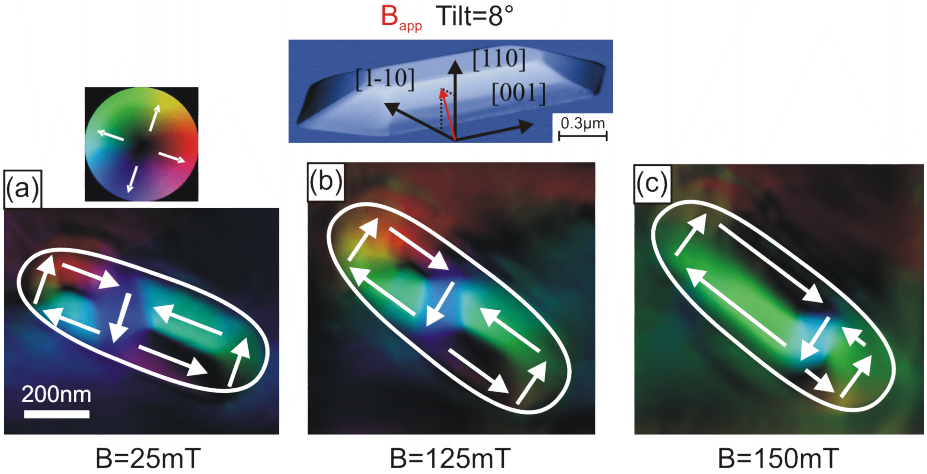

Fig. IV.11 – Images obtenues par AFM et microscopie de Lorentz en mode TIE. La paroi de Bloch asymétrique de gauche est progressivement allongée par l'application d'un champ croissant. Pour les différentes images, la composante planaire du champ appliqué est (a) 25 mT, (b) 125 mT, (c) 150 mT.

dans la configuration utilisée, pas sensible à la composante perpendiculaire de l'aimantation. Il se peut également qu'une légère composante longitudinale du champ appliqué favorise l'une des parois par rapport à l'autre.

En faisant varier la valeur du champ appliqué, nous avons pu contrôler la longueur de la paroi de droite d'un plot présentant une configuration de type losange (Fig. IV.11). Les résultats de cette étude sont présentés sur la figure IV.12. On observe que pour une valeur de champ appliqué transverse croissante, la longueur de la paroi mesurée diminue jusqu'à un régime « plateau » où une paroi de longueur $\simeq$60 nm est stabilisée pour des valeurs de champ comprises entre 34 mT et 86 mT. Une transition brusque entre un état présentant une paroi de longueur finie et un état vortex est ensuite observée entre 86 mT et 93 mT. Aussi, au vu de ces résultats, il apparaît que la transition entre une paroi de longueur finie et un vortex, en fonction du champ appliqué, serait du premier ordre. Ces résultats préliminaires restent néanmoins à confirmer notamment en ce qui concerne l'existence d'une hystérésis éventuelle associée à cette transition ainsi que la dépendance potentielle du phénomène en fonction de l'angle avec lequel le champ est appliqué par rapport à la normale à l'échantillon.

Bien que dans les deux situations étudiées, le paramètre extérieur contrôlant la transition n'est pas le même (la longueur des plots pour les simulations et le champ magnétique appliqué pour l'étude par microscopie), l'accord quantitatif des échelles de longueur nous conforte quant à la réalité du phé-

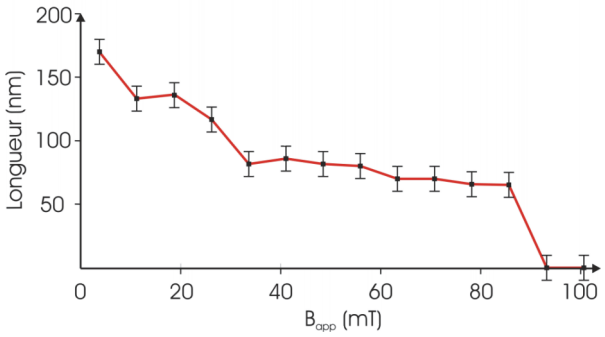

Fig. IV.12 – Évolution de la longueur de la paroi de droite d'un plot présentant un configuration micromagnétique similaire à celle présentée sur la Fig. IV.11 en fonction du champ magnétique appliqué. Les longueurs de parois sont déterminées à partir de profiles d'intensité obtenus sur des images du plot en mode Fresnel. Les valeurs de champ indiquées correspondent à la composante transverse.

nomène. Néanmoins, les simulations prédisent une transition du second ordre (continue) entre les deux états alors que l'étude expérimentale met en évidence une transition abrupte entre deux états. La raison de cette divergence n'est pour l'heure pas élucidée. Dans les simulations, des phénomènes telle que l'anisotropie de surface seraient à considérer. Du point de vue expérimental, même si les facettes des plots sont planes à l'échelle atomique comme le montrent les études *in situ* RHEED et par AFM, il se peut que des marches atomiques soient présentent et jouent le rôle de centre de piégeage pour les vortex de surface.

Par ailleurs, dans certaines conditions de champ, il s'est avéré que nous pouvions préparer le système dans un état instable oscillant (transition stochastique *c.à.d.* non-périodique) entre deux configurations micromagnétiques. La figure IV.13 présente les deux configurations imagées (extrémité droite) pour une valeur de champ transverse appliqué de 66 mT : (a) une paroi de Bloch de longueur finie et (b) vortex. L'image IV.13 (c) a été obtenue pour un temps d'acquisition (2 s) supérieur au temps de séjour du système dans chaque état ($\simeq$0.1-0.5 s) de sorte que la superposition des deux états est observable. Cette image démontre que deux états distincts ont été observés. L'oscillation de fréquence typique 1-10 Hz a été observée de manière directe sur le signal vidéo de l'instrument. Il est toutefois à noter que cet état oscillant a également été observé entre deux configurations présentant des longueurs de parois finies. L'origine de cet état oscillant reste une question ouverte. En se basant uniquement sur les constructions de van den Berg, les configu-

rations micromagnétiques caractérisées par différentes positions du losange central selon l'axe longitudinal des plots sont dégénérées. Il est donc concevable que dans un système expérimental, des transitions entre deux états très proches en énergies soient observables.

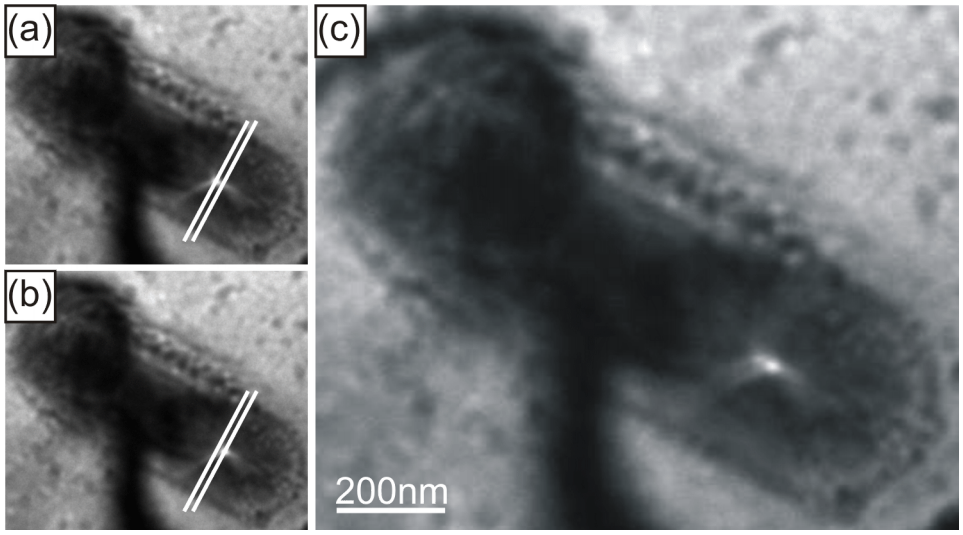

Fig. IV.13 – Images obtenues par microscopie de Lorentz (contraste de Fresnel) des deux configurations micromagnétiques observées dans l'état bistable oscillant sous un champ appliqué de 66 mT. (a) Configuration avec à l'extrémité droite du plot une paroi de Bloch asymétrique de longueur finie. (b) Configuration avec un vortex à cette même extrémité. (c) Image avec un temps d'intégration de 2 s mettant en évidence la superposition des deux états métastables. Sur ces images, seule la paroi de droite est visible car celle de gauche étant de vorticité opposée, elle présente un contraste sombre qui ne peut être distingué du reste du plot.

Chapitre V

Procédé de contactage de plots de Fe(110) individuels

Sommaire

V.A Lithographies et techniques de micro- nanofabrication 88
V.B Définition du dispositif de contactage 96
V.C Choix technologiques 98
V.D Lithographie électronique : aspects instrumentaux 100
V.E Optimisation des différents niveaux de lithographie 102
V.E.1 Présentation des échantillons 102
V.E.2 Contacts inférieurs 103
V.E.2.a Géométrie des contacts 104
V.E.2.b Réalisation du masque 105
V.E.2.c Gravure IBE 107
V.E.2.d Retrait du masque 109
V.E.3 Niveau « trous » 111
V.E.3.a Dépôt de la couche d'isolant 112
V.E.3.b Lithographie électronique 114
V.E.3.c Gravure RIE 120
V.E.4 Contacts supérieurs 122

Afin d'étudier la dépendance éventuelle en température des phénomènes de retournement des domaines de fermeture de Néel et d'hystérésis associée à ce retournement décrits dans les chapitres précédents, des mesures de transport sous champ magnétique sur des plots individuels ont été entreprises. Pour ce faire, un procédé de contactage de plots uniques de Fe(110) a dû être développé, en collaboration avec Helge Haas et Thierry Fournier, au sein de la plate-forme Nanofab de l'Institut Néel. La mise au point de ce procédé est présentée dans ce chapitre. Après avoir introduit les différentes lithographies et techniques de micro- nanofabrication, nous détaillerons l'instrument qui a été utilisé pour cette étude. Nous présenterons ensuite le dispositif vers lequel nous nous sommes orientés avant de détailler la phase d'optimisation de chacune des étapes du procédé.

V.A Lithographies et techniques de micro-nanofabrication

Deux approches complémentaires sont communément utilisées pour la structuration de surfaces : l'approche « bottom-up » et l'approche « top-down ». Dans la première, des réseaux de molécules ou d'amas atomiques sont obtenus par auto-organisation lors de l'étape de dépôt. A la différence du phénomène d'auto-assemblage introduit dans le chapitre I, l'auto-organisation sous-entend l'existence d'un ordre positionnel sur la surface [Fig. V.1 (a-b)]. Cette méthode présente l'avantage d'atteindre des tailles d'objets nanométriques par nature. Par contre il est difficile de contrôler la forme et la position des objets. L'approche « top-down », que nous allons détailler dans cette section, est issue des techniques de lithographie utilisées dans la microélectronique. Dans cette approche, la surface est structurée par transfert d'un motif obtenu généralement par gravure ou lift-off [Fig. V.1 (c)]. Cette méthode permet d'atteindre une grande reproductibilité sur la taille et le positionnement des motifs. Elle est néanmoins limitée par les coûts d'investissement requis pour le développement de ces techniques. La présente étude a cela de particulier qu'elle combine les deux approches pour la réalisation des plots de Fe (bottom-up) et des dispositifs de mesures (top-down).

D'une manière générale le terme de lithographie est utilisé pour décrire l'ensemble des techniques permettant de reproduire un motif sur une surface. Les différentes étapes d'un procédé de lithographie classique sont résumées sur la figure V.2. Nous ne traiterons ici que des techniques faisant intervenir des résines pour le transfert de motif. Les techniques permettant de lithographier une surface sans résine (lithographie par faisceau d'ions focalisé,

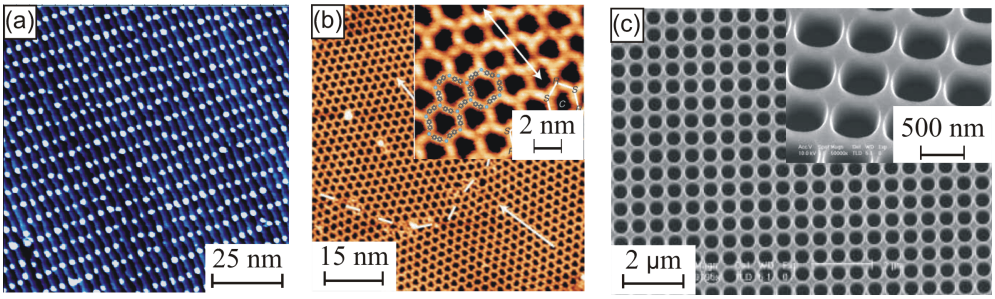

FIG. V.1 – (a) Image STM à température ambiante de plots de Co auto-organisés sur une surface vicinale Au(788) obtenus lors d'un dépôt de 0.2 MC de Co à 130 K[96]. (b) Images STM d'un réseau hexagonal de molécules de Fe-biphénolate sur une surface d'Au(111)[97]. (c) Images MEB d'un réseau de trous obtenus par lithographie électronique et gravure ionique réactive d'une surface de Si[98].

Focused Ion Beam, FIB, par champ proche, *Scanning Probe Microscopes*, par ablation laser, par nanoimpression, ...) ne seront pas abordées ici. Notons que les étapes de fabrication détaillées dans cette section traitent de la structuration d'une surface et non pas de la fabrication d'un masque pour une lithographie ultérieure. Des informations complémentaires sur les techniques de lithographie et de gravure peuvent être trouvées dans la référence[99] ainsi que dans la thèse d'Amanda Martinez-Gil[98].

▷ **Dépôt de la résine**

La première étape du procédé consiste à déposer sur le substrat une couche de résine. Les résines organiques à base de polymères (PMMA, UVN2, S1818, ...) sont généralement étalées sur le substrat par centrifugation à l'aide d'une tournette. Les paramètres déterminant l'épaisseur de la couche de résine sont alors sa viscosité, l'accélération, la vitesse et la durée de centrifugation. D'autres procédés impliquent des résines inorganiques (Al_2O_3, NaCl,...) dont le dépôt est obtenu par des méthodes conventionnelles : évaporation, pulvérisation, ablation laser, ...

▷ **Insolation**

Le transfert du motif dans la couche de résine a lieu lors de l'étape d'insolation. Au cours de ce processus, la résine est soumise à un rayonnement au travers d'un masque. Deux types de radiations sont communément employées : les photons et les électrons. Les techniques de lithographie les plus

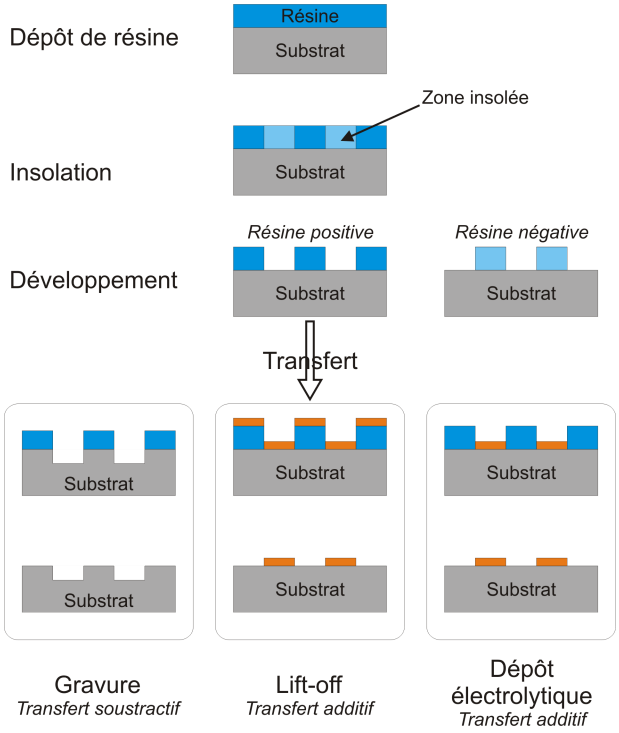

FIG. V.2 – Schéma d'un procédé de lithographie.

répandues, notamment dans l'industrie, utilisent des photons dont les longueurs d'onde sont dans l'ultraviolet et l'ultraviolet lointain. On parle pour ces longueurs d'onde de « photolithographie » ou « lithographie optique ».

On distingue deux grandes classes de lithographie selon le type d'insolation. On parle de lithographie parallèle lorsque tous les motifs sont insolés en même temps et de lithographie séquentielle lorsque chaque motif est insolé séparément. Lorsque le masque est plus petit que le substrat, une solution intermédiaire alternant déplacement du masque et insolation est souvent choisie. Dans le cas des lithographies optiques le *photorépéteur* réalise ce genre d'opérations.

Parmi les différents procédés de lithographie, on distingue les techniques dites par *contact ou proximité*, où la distance entre le masque et l'échantillon est réduite et les techniques par *projection*. Dans la première famille, la reproduction du motif dans la résine se fait à l'échelle 1 : 1. Dans la seconde, une lentille de projection est insérée entre le masque et l'échantillon afin de focaliser le faisceau. Ceci permet de réduire d'un facteur 4 à 5 (au niveau applications industrielles) la taille des motifs insolés par rapport aux motifs du masque.

La résolution d'une technique déterminant la taille latérale minimale des

motifs obtenus est définie comme $r_{min} = k\lambda/NA$ où k est un paramètre phénoménologique propre à chaque technique et typiquement de l'ordre de 0.66, λ est la longueur d'onde, et $NA = n \sin i$ est l'ouverture numérique avec n l'indice de réfraction du milieu de propagation du rayonnement et i est l'angle d'incidence du faisceau par rapport à la normale à la surface de l'échantillon. Dans un premier temps, les développements ont cherché à réduire la longueur d'onde des rayonnements utilisés afin de diminuer la taille minimale des structures. Des approches récentes cherchent à augmenter l'ouverture numérique en réalisant, par exemple, la lithographie en immersion (dans l'eau $n = 1.4$). Cette technique permet d'atteindre en production des résolutions de 45 nm avec une longueur d'onde de 193 nm. D'une manière générale, les autres facteurs limitant la résolution des techniques de lithographie sont la définition du masque et les phénomènes de diffraction (diffraction de proximité et Fraunhoffer).

Les techniques de lithographies les plus répandues vont être maintenant détaillées. Leurs caractéristiques sont résumées sur la figure V.3.

– **UVL** (*UltraViolet Lithography*) et **DUVL** (*Deep UltraViolet Lithography*)

Ces techniques utilisent des rayonnements de longueur d'onde sub-micrométriques (typiquement 350-400 nm en UVL). Par projection ou par proximité, ces techniques sont appréciées pour leur insolation en parallèle sur de grands champs, permettant d'atteindre de fortes vitesses d'insolation. A l'heure actuelle, les rayonnements de longueurs d'onde 248 nm et 193 nm (DUVL), générés respectivement par des laser KrF et ArF, sont utilisés dans les systèmes de production et permettent d'atteindre des résolutions inférieures à 100 nm. Initialement, la prochaine étape technologique devait être l'utilisation d'un faisceau de longueur d'onde 157 nm. Une telle longueur d'onde devait en effet permettre de réaliser la génération de composants à 65 nm. Néanmoins pour des raisons de coût de développement, cette approche a été abandonnée.

– **EUVL** (*Extreme UltraViolet Lithography*)

La lithographie EUVL, du fait de la courte longueur d'onde employée (13.5 nm), permet potentiellement de gagner encore en résolution (40 nm). Cependant à ces longueurs d'onde, le rayonnement est très fortement absorbé par la quasi-totalité des matériaux, y compris les gaz. Cette technique nécessite donc de travailler sous vide avec des optiques et masques réfléchissants. En outre une difficulté de cette technique réside dans la conception des masques : les parties réfléchissantes sont constituées de multi-couches de

Mo et Si ou Be et les zones absorbantes sont réalisées à partir de couches de Cr, TaN ou TaBN sur SiO_2 pour une épaisseur totale de 100-200 nm. A l'heure actuelle, des résolutions de l'ordre de 70 nm sont atteintes avec cette technique, les problèmes technologiques à surmonter étant liés à la puissance des sources plasma, la faible réflectivité des miroirs, ...

– **XRL** (*X-Ray Lithography*)

La dernière technique utilisant des photons est la lithographie par rayons X. Ces rayonnements de très courte longueur d'onde ($\sim$ 1 nm) sont produits par des sources synchrotron ou à plasma induit par laser. Dans cette technique, le masque est placé à proximité de l'échantillon (5-40 μm). Du fait du facteur d'échelle 1 : 1, la qualité du masque est déterminante pour la résolution finale des motifs. Ce dernier, de réalisation longue et complexe, est constitué d'une membrane de SiC ou de Si_3N_4 pour la partie transparente aux rayons X et de motifs en Au, W ou Ta pour les zones absorbantes. Des résolutions inférieures à 30 nm ont déjà été obtenues [98] mais cette technique reste marginale du fait des sources requises et de la complexité des masques.

– **EBL** (*Electron Beam Lithography*)

Cette technique est la plus couramment utilisée, en laboratoire, pour des études multi-niveaux nécessitant des résolutions sub-micrométriques. Dans cette technique, un faisceau électronique irradie une résine sensible aux électrons. La faible longueur d'onde du faisceau ($\sim$0.1 Å pour 10 keV et $\sim$0.04 Å pour 100 keV) permet d'atteindre des résolutions inférieures à 10 nm. A la différence des autres techniques de lithographie, le masque utilisé pour l'EBL est numérique : les motifs et les paramètres d'insolation sont définis dans un fichier informatique, l'exposition est ensuite gérée automatiquement par l'instrument. Du fait de son mode d'exposition séquentielle, cette méthode reste néanmoins limitée en terme de vitesse d'écriture. Les applications typiques de la lithographie électronique sont d'une part la fabrication de masque pour les techniques de photolithographie et l'insolation d'échantillon où la vitesse d'écriture modérée n'est pas problématique (dans les laboratoires de recherche par exemple).

– **SCALPEL** (*SCattering Angular-Limited Projection Electron beam Lithography*)

Cette technique repose sur la combinaison des avantages de l'EBL et des méthodes d'insolation par projections (facteur d'échelle typique 1 : 4), à savoir une haute résolution, liée à la longueur d'onde des électrons, et une vitesse d'écriture élevée. La source utilisée pour cette technique est un disque de Ta émettant des électrons qui sont ensuite accélérés sous une ten-

sion de 100 kV. La difficulté de cette technique réside dans la fabrication des masques. Les zones du masque transparentes aux électrons sont en effet constituées d'une membrane (100 nm) de nitrure de silicium et les zones absorbantes sont recouvertes de W.

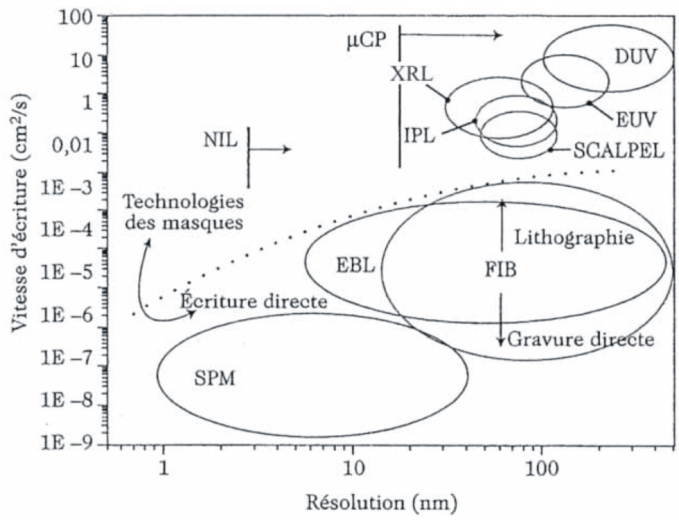

FIG. V.3 – Comparatif des différentes techniques de lithographies. *SPM*, Scanning Probe Microscope ; *EBL*, Electron Beam Lithography ; *FIB*, Focused Ion Beam ; *NIL*, Nano-Imprint Lithography ; *IPL*, Ion Projection Lithography ; *SCALPEL*, SCattering Angular-Limited Projection Electron beam Lithography ; *XRL*, X-Ray Lithography ; *EUV*, Extreme UltraViolet Lithography ; *µCP*, Micro-contact Lithography ; *DUV*, Deep UltraViolet Lithography[100].

▷ **Développement**

Les propriétés physico-chimiques des zones de la résine insolées se trouvent modifiées. La phase de développement consiste à révéler ces transformations dans le volume de la couche de résine. Suivant le type de résine, le développement est réalisé principalement par voie humide et plus marginalement par voie sèche. Lorsque la région de la résine exposée disparaît lors de la phase de développement, on parle de résine *positive*. Inversement, on parle de résine *négative* lorsque la région insolée reste en fin de développement. Dans le cas des résines organiques, l'insolation provoque, pour les résines positives, une cassure des liaisons chimiques d'où une solubilité accrue des régions exposées alors que l'insolation des résines négatives crée des liaisons entre chaînes de polymères diminuant leur solubilité. Suite à la phase de développement, la résine sert de masque pour l'étape finale de transfert de motif.

▷ **Transfert de motif**

Lors de l'étape de transfert, le motif est reproduit dans le substrat, ou plus généralement, la couche à structurer. Cette phase est comme l'insolation une étape clef du procédé de lithographie car elle détermine la qualité des structures finales. Les techniques de transfert sont classées en deux grandes catégories : le transfert additif, lorsque un apport de matière est requis, et le transfert soustractif lorsque, au contraire, de la matière est prélevée de la couche à structurer.

La technique de lift-off est la méthode de transfert additif la plus couramment utilisée. Elle consiste à déposer une couche du matériau souhaité pour les structures finales sur la couche de résine développée. La résine est ensuite dissoute dans un solvant adapté, les zones du matériau déposé sur de la résine sont alors décollées de l'échantillon. Seules les régions où le matériau déposé est en contact avec le substrat subsistent en fin de procédé. Deux paramètres interviennent dans la qualité finale d'une étape de lift-off :

- les fronts de marche de la résine doivent empêcher la formation d'une couche continue de matériau encapsulant l'ensemble de la résine. Pour ce faire des profils verticaux ou même négatifs sont recherchés afin d'éviter tout contact entre la couche déposée sur la résine et celle déposée sur le substrat.
- l'épaisseur du matériau déposé doit être inférieure à l'épaisseur de la résine pour faciliter la rupture de la couche déposée au niveau des marches de résine. Pratiquement, on choisit cette épaisseur de sorte qu'elle soit inférieure au tiers de celle de la résine[98].

Une autre méthode de transfert additif est basée sur le dépôt électrolytique en solution après l'étape de développement. Par un choix de couples d'oxydo-réduction adaptés, le dépôt n'a lieu que sur les zones découvertes du substrat et non sur la résine comme dans le cas du lift-off. La résine est ensuite retirée à l'aide d'un solvant.

La gravure est une technique de transfert soustractif : de la matière est prélevée à la couche à structurer ; la résine développée sert alors de masque pour la gravure. Une méthode de gravure est caractérisée par deux grandeurs :

- son anisotropie d'attaque, T : $T = 1 - V_{\text{lat}}/V_{\text{vert}}$, où V_{lat} et V_{vert} sont les vitesses d'attaque latérale et verticale, respectivement.
- sa sélectivité S, $S = V_{\text{res}}/V_{\text{sub}}$, où V_{res} est la vitesse d'attaque de la

résine et V_{sub} est la vitesse d'attaque du substrat.

Dans le cas général, on cherche à augmenter l'anisotropie et la sélectivité du procédé pour obtenir une résolution optimale. En particulier une attaque avec une anisotropie la plus proche de 1 permet d'éviter les phénomènes de surgravure et donc les pertes de résolution.

Différentes techniques de gravure sont couramment utilisées en salle blanche. On distingue les gravures par voie humide (en solution) et les gravures par voie sèche. En règle générale, les attaques chimiques sont plutôt isotropes et donc peu performantes en terme de résolution. Cependant dans certains cas marginaux telle que la gravure du Si monocristallin par KOH, une anisotropie de gravure entre les plans (100) et (111) atteint 100 à 80 °C[101]. Les gravures par voie sèche reposent sur la formation d'un plasma énergétique dont les ions bombardent la surface de l'échantillon. On distingue notamment :

1. l'IBE (*Ion Beam Etching*) est une méthode de gravure purement physique : les collisions entre les ions d'un plasma formé à base de gaz rare tel que l'argon et les atomes de la surface de l'échantillon sont à l'origine du phénomène de gravure. Pour ce faire les ions du plasma sont accélérés à l'aide d'une tension entre la source et l'échantillon. De par son caractère physique, cette technique d'attaque est relativement anisotrope et peu sélective de sorte que quasiment tous les matériaux peuvent être gravés plus ou moins rapidement. Cette technique est donc privilégiée pour les matériaux magnétiques du fait du faible nombre de techniques disponibles pour la gravure de tels matériaux. Par contre cette technique présente des vitesses de gravure relativement lentes, une faible sélectivité entre la couche à graver et le masque. Enfin un inconvénient majeur de cette technique est le redépôt des matériaux gravés sur les flancs de résine. Afin de limiter cet effet, une gravure sous angle (30-40 ° par rapport au plan horizontal) est généralement réalisée. La dépendance de la vitesse d'attaque en fonction de l'angle entre le faisceau d'ions et la surface gravée présente un maximum autour de 60 °. En réalisant une attaque sous angle, la vitesse de gravure des flancs est donc plus importante que pour le reste de la gravure et tout matériau redéposé sur les flancs est à nouveau gravé. Afin d'uniformiser cet effet sur tous les flancs, l'échantillon est généralement mis en rotation pendant l'attaque.
2. la RIE (*Reactive Ion Etching*) utilise un plasma de gaz réactif (SF_6, CHF_3, ...) adapté au matériau à graver. L'action est à la fois physique, liée à l'énergie cinétique des ions, et chimique, dûe aux réactions de dissociation, ionisation, excitation, ... à la surface de l'échantillon.

Cette méthode permet donc de combiner l'anisotropie d'une attaque physique et la vitesse de gravure importante d'une attaque chimique. Elle requiert néanmoins que des composés volatils du matériau à graver existent (tels que SiF_4 dans le cas du Si attaqué par un plasma de SF_6). Les composés volatils formés lors de ces réactions sont ensuite évacués par pompage.

3. la RIBE (*Reactive Ion Beam Etching*) est une technique de gravure hybride entre les deux méthodes précédentes : un plasma de gaz réactif est accéléré vers l'échantillon. Elle permet notamment de combiner les avantages de ces deux techniques : anisotropie de la IBE et sélectivité de la RIE, ceci de manière découplée. Citons pour être complet une autre méthode de gravure hybride, la CAIBE (Chemically Assisted Ion Beam Etching), où un faisceau d'ions de gaz rare et un flux moléculaire de gaz réactif sont utilisés conjointement.

V.B Définition du dispositif de contactage

Comme il l'a été indiqué dans l'introduction de ce chapitre, le dispositif à développer devait permettre de réaliser des mesures de magnéto-transport sur des plots de Fe(110) individuels. Les contraintes identifiées lors de la phase d'étude préliminaire du projet étaient les suivantes.

- Pour des raisons physiques qui seront détaillées dans le chapitre VI, nous nous sommes orientés vers une géométrie verticale où les différentes composantes du dispositif de mesure (électrodes, isolant, ...) sont constituées d'un empilement de couches lithographiées séparément.
- Nous avons opté pour un dispositif de type *4 pointes* où les électrodes de courants et de tensions sont toutes indépendantes. En effet un calcul détaillé dans la section VI.B.2, nous permet d'estimer la limite supérieure de résistance du dispositif en mode 4 pointes à 1-1.5 Ω, ce qui place cette étude dans le régime des basses impédances où il est nécessaire de s'affranchir des contributions des différentes électrodes, des câbles de courant, tension, ...
- Les plots de Fe(110) étant obtenus par croissance auto-assemblée, ces derniers sont répartis de manière aléatoire sur la surface de l'échantillon. Lors du procédé de contactage, il est donc nécessaire de repérer et de pouvoir choisir le plot qui sera *in fine* sondé.
- La géométrie du dispositif a été définie de sorte que l'orientation des électrodes corresponde aux directions cristallographiques de l'échantillon.

Le dispositif de mesure vers lequel nous avons convergé au vu des différents éléments du cahier des charges est résumé sur la figure V.4. Il se compose de deux électrodes inférieures (Mo) et deux électrodes supérieures (Au). Ces électrodes sont séparées par une couche d'isolant (SiO_2) déposée sur tout l'échantillon (non représentée sur les vues de dessus de la figure V.4 pour plus de clarté). Afin d'établir le contact électrique entre les électrodes inférieures et supérieures, un trou doit être réalisé dans la couche d'isolant sur le plot à sonder en transport.

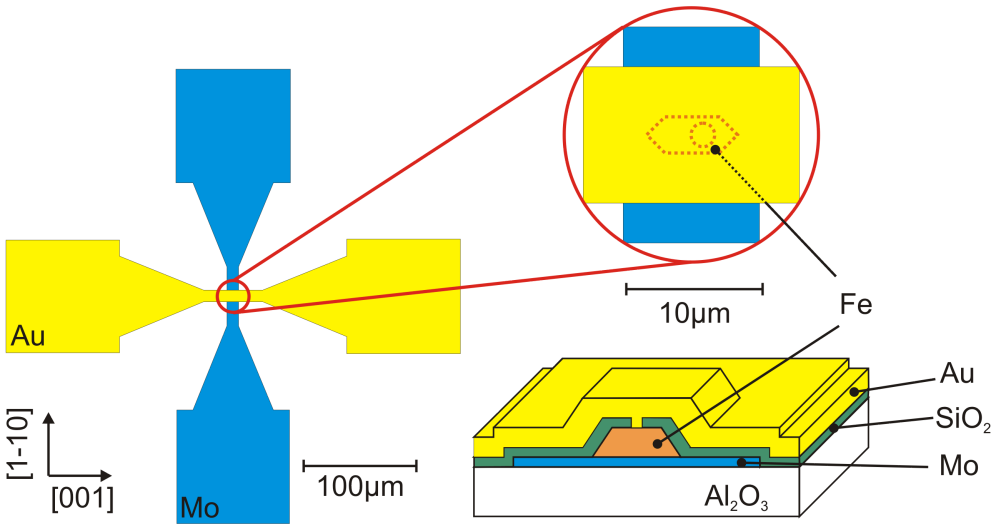

FIG. V.4 – Dispositif de mesures 4 pointes sur un plot de Fe(110).

Plus précisément, les différentes étapes de fabrication, dont l'optimisation sera détaillée dans la section V.E, sont présentées sur la figure V.5. A partir d'un échantillon pleine plaque présentant des plots de Fe(110) déposés sur une couche tampon de Mo(110) et protégé de l'oxydation par une couche d'Au [Fig. V.5 (a)], deux électrodes sont lithographiées dans la couche tampon [Fig. V.5 (b)]. Dans la suite on parlera de niveau *contacts inférieurs* pour ces deux électrodes. Une couche d'isolant est ensuite déposée sur l'ensemble de l'échantillon [Fig. V.5 (c)] afin d'isoler électriquement l'ensemble des plots présents au niveau de l'intersection des contacts inférieurs et supérieurs. Un trou sur un plot de Fe déterminé, ainsi que des reprises de contacts au niveau des contacts des électrodes inférieures, doivent être réalisés par gravure de la couche d'isolant [Fig. V.5 (d)]. Ces deux étapes seront dénommées sous le terme niveau *trous*. La réalisation des électrodes supérieures en Ti\Au (on parlera dans la suite de niveau *contacts supérieurs*) constitue la dernière étape du procédé de fabrication [Fig. V.5 (e)].

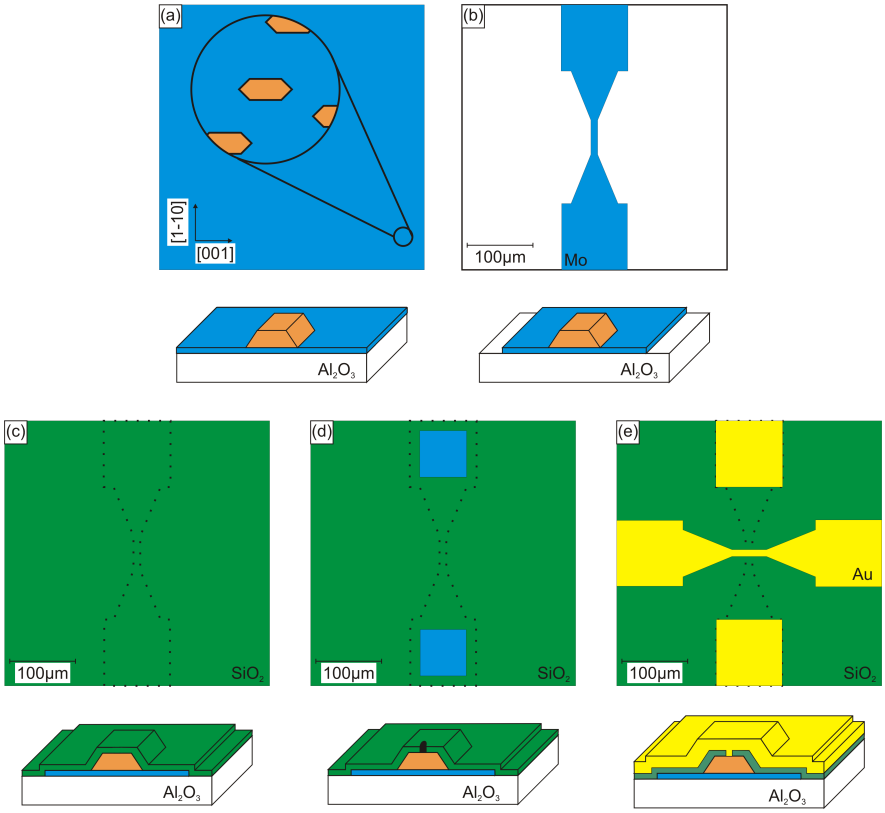

FIG. V.5 – Dispositif de mesures 4 pointes sur un plot de Fe(110) : résumé des étapes de fabrication. (a) Échantillon pleine plaque. (b) Niveau contacts inférieurs : gravure de la couche tampon de Mo(110). (c-d) Niveau trous : dépôt d'une couche d'isolant (SiO_2) sur l'ensemble de la couche (c) et gravure de la couche au niveau du plot et des contacts inférieurs (d). (e) Niveau contacts supérieurs : lift-off d'une couche d'Au.

V.C Choix technologiques

Comme nous l'avons évoqué dans la section précédente, la solution retenue pour le dispositif est une géométrie verticale de type 4 pointes. Différentes contraintes dans le procédé de fabrication du dispositif, nous ont amené à faire des choix quant aux techniques à utiliser. Par exemple, une approche récemment développée au laboratoire SPINTEC (CNRS/CEA, Grenoble) utilise une pointe AFM comme sonde locale de transport[102]. Cette technique présente l'avantage de s'affranchir de toute étape de lithographie et de pouvoir imager la surface de l'échantillon afin de sélectionner une nanostructure. Cependant des résistances de contact de $\sim 100\,\Omega$ (en série avec l'échantillon) ont été déterminées, ce qui est trop important par rapport aux résistances que

l'on veut mesurer (typiquement qqs. Ω) et aux faibles variations attendues $\lesssim 10^{-4}\,\Omega$. Nous avons donc opté pour une approche basée sur les techniques de lithographies usuelles.

Concernant la réalisation des contacts inférieurs, une solution utilisant la technique de lithographie optique associée à un masque réalisé par lithographie électronique était envisageable. Néanmoins, au cours de la phase d'optimisation du projet, la géométrie des motifs était amenée à évoluer. De par sa plus grande flexibilité, la lithographie électronique a été choisie pour la réalisation des contacts inférieurs et supérieurs. Les détails techniques de l'instrument utilisé pour cette étude seront développés dans la section V.D.

Le niveau des trous s'est révélé être le plus complexe à développer. En effet les difficultés de ce niveau résident dans le fait que les plots de Fe(110) sont répartis de manière aléatoire sur la surface. Il est donc nécessaire de pouvoir repérer un plot avant de le contacter. De plus la précision sur la position du trou dans la couche d'isolant (<100 nm) et la résolution sur son diamètre (<50 nm) constituent de fortes contraintes.

Différentes solutions technologiques peuvent être envisagées. La première considérée consiste à réaliser le trou au niveau du plot par FIB puis les reprises de contact au niveau des contacts inférieurs par lithographie électronique. Cette méthode présente l'avantage de pouvoir imager le plot avant de graver le trou. Pratiquement l'imagerie du plot avec le MEB nécessite d'aligner précisément le canon à ions avec la colonne d'imagerie du MEB. L'imagerie à l'aide du FIB est également possible mais présente l'inconvénient d'implanter des ions Ga sur toute la surface imagée. D'une manière générale cette méthode n'a pas été retenue pour les risques de dégradation du plot de Fe par implantation et amorphisation de la surface. Dans le cas d'un faisceau d'ions de Ga d'énergie 30 keV, une profondeur de pénétration de l'ordre de 11 nm est en effet prédite par le logiciel de simulation Monte-Carlo SRIM[103] ce qui présente des risques de modifications des propriétés magnétiques (piégages de vortex, ...).

Une approche innovante développée au sein de l'unité mixte CNRS/Thalès permet la réalisation de contacts sur des nanoparticules d'Au auto-assemblées[104]. Plus précisément, cette technique consiste à indenter une résine à l'aide d'une pointe AFM[105]. Une mesure de résistance électrique entre la pointe et l'échantillon permet de contrôler et d'arrêter l'indentation lorsque la pointe atteint la surface de l'échantillon. Des contacts de diamètre typiques ~5-10 nm ont ainsi été obtenus. Cependant des résistances de contacts comprises entre 10 Ω et 500 Ω ont été déterminées lors d'études préliminaires[105]. Cette résistance variant comme $\sim 10^3/[d(nm)]^2$[105], une étape de gravure

RIE (plasma O_2) afin d'obtenir un diamètre de contact supérieur à 30 nm soit une résistance inférieure à 1 Ω aurait été nécessaire pour une application à notre projet. Néanmoins, faute de système de mesure de résistance pointe-échantillon sur l'AFM de l'équipe et ne maîtrisant pas la technique d'indentation, cette méthode n'a pas été retenue.

Finalement, la solution retenue pour la réalisation du niveau trous est basée sur l'utilisation de la lithographie électronique suivie d'une étape de gravure RIE. Cette approche permet de combiner la précision de la lithographie électronique avec la sélectivité chimique de la RIE. En particulier ce procédé de gravure essentiellement chimique permet de limiter les effets d'implantation mis en évidence pour la technique FIB. Cette approche présente néanmoins une difficulté de réalisation liée aux variations locales d'épaisseur des différentes couches (isolant, résine, ...) au sommet des plots. Pratiquement, les temps de gravure requis pour la réalisation des trous au sommet du plot et au niveau des reprises de contact ne seront pas les mêmes. Le critère final reste néanmoins la réalisation du trou sur le plot au risque de légèrement surgraver la couche de Mo au niveau des reprises de contacts.

V.D Lithographie électronique : aspects instrumentaux

L'instrument que nous avons utilisé pour cette étude est un *Microscope électronique à balayage* MEB LEO 1530. Ce dispositif est couplé à un FIB 30 kV construit par la société *Orsay Physics*. Pour les procédures de lithographie automatisées, l'ensemble est contrôlé à distance par le logiciel *Elphy plus* de la société *Raith, GmbH*. Un schéma de l'ensemble est présenté sur la figure V.6.

Dans la suite nous nous intéressons plus particulièrement au MEB Leo 1530 et à ses spécificités techniques [Fig. V.6 (b)]. Le dispositif d'émission des électrons est de type *Field Emission Gun*. En particulier, la source utilisée est une cathode chaude de type Schottky (ZrO_2/W). Ce type de source est caractérisé par une brillance élevée $\sim 10^8$ A.cm^{-2}.sr^{-1} et une taille de sonde réduite 20 nm. Les électrons émis sont ensuite accélérés à l'énergie de consigne. Le MEB Leo 1530 permet de travailler à une énergie dans la gamme 0.1-30 keV. Pour les insolations électroniques, une tension d'accélération de 20 kV est généralement choisie.

Cet instrument a la particularité de ne présenter qu'une seule lentille de condensation. Après l'étage condenseur se trouve le système permettant d'interrompre le faisceau électronique, un élément crucial pour la qualité des

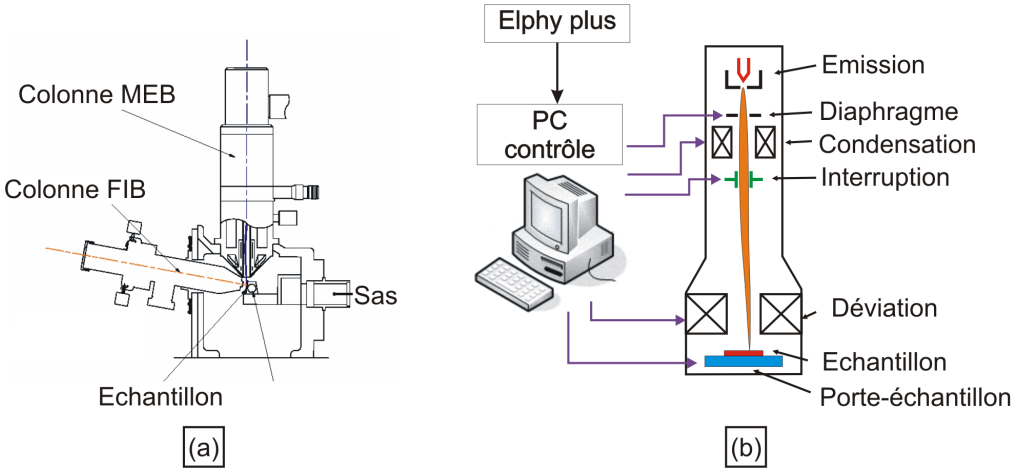

FIG. V.6 – (a) Système MEB-FIB disponible à Nanofab.(b) Schéma de principe du MEB LEO 1530 avec contrôle par le logiciel *Elphy plus*.

insolations. C'est en effet ce dispositif qui est en charge d'arrêter l'insolation en limite de motifs. Une grande vitesse de réponse est donc recherchée. Un ensemble de diaphragmes permet ensuite de contrôler le courant électronique utilisé.

Au niveau du dernier étage des lentilles, se situe le dispositif de déviation électromagnétique du faisceau électronique qui joue également un rôle majeur dans la définition de l'insolation finale. En particulier une précision et une vitesse de réponse maximales sont recherchées. Ce système de déviation présente néanmoins l'inconvénient par rapport à un système de déviation électrostatique d'être plus lent et d'exhiber des comportements hystérétiques limitant la précision et la reproductibilité du positionnement. Enfin le porte-échantillon doit permettre les déplacements macroscopiques avec également une très bonne précision. Dans cette optique, certains instruments tels les masqueurs électroniques sont équipés généralement d'un système de mesure de déplacement interférométrique. D'une manière générale les masqueurs pour lesquels les meilleures résolutions sont obtenues se distinguent des colonnes MEB équipées d'un système de lithographie électronique par une taille de sonde plus petite et des systèmes de déviation électrostatiques, leur permettant d'atteindre des vitesses d'écriture plus élevées.

L'automatisation des procédures d'insolation est assurée par le logiciel *Elphy plus* qui permet la conception des dispositifs et le contrôle de l'instrument. Les différentes étapes préparatoire d'une insolation sont : (i) la conception du dispositif avec la définition des champs d'écriture et des différents éléments du dispositif. Cette étape peut être vue comme la réalisation

d'un masque d'insolation *logiciel*. Pratiquement, le choix des tailles de champ d'écriture est déterminé par la taille des plus petits motifs à insoler dans ce champ. Un facteur 1000 entre ces deux grandeurs caractéristiques est généralement choisi ce qui permet d'assurer une précision sur le positionnement du faisceau et sur la résolution de l'insolation optimales. (ii) Programmation de la procédure d'insolation comportant les changements de diaphragmes et de champ d'écriture, les procédures d'alignement automatique des motifs, les insolations à proprement parlé, ... (iii) Alignement de la colonne d'imagerie du MEB (correction des astigmatismes , aberrations, ...). (iv) Alignement de l'image MEB et du masque logiciel. (v) Lancement de la procédure d'insolation.

V.E Optimisation des différents niveaux de lithographie

La mise au point et l'optimisation des procédés de lithographie permettant de contacter des plots de Fe(110) individuels ont tenu une place centrale dans mon travail de thèse. En effet cette phase représente plus d'un an de travail préalable à toute mesure physique, principalement due à un temps d'accès limité au système de lithographie électronique (typiquement une demi-journée par semaine). Dans cette section, les différents échantillons utilisés pour le développement du procédé de contactage seront brièvement présentés avant de détailler les améliorations successives qui ont été apportées à chaque niveau du dispositif.

V.E.1 Présentation des échantillons

Compte-tenu de leur complexité d'élaboration (il faut compter une journée de travail pour élaborer un échantillon présentant des plots de Fe(110) hors introduction, préparation, sortie des substrats, décapage des cibles, ...), un faible nombre d'échantillons a été utilisé lors du développement des procédés de lithographie contrairement aux développements « standards » de salle blanche. Les structures des trois échantillons utilisés sont résumées sur la figure V.7.

▷ **Les échantillons de type $\mathcal{A}$** sont composés d'une couche d'Au (5 nm) et d'une couche de Mo (20 nm) déposées sur un substrat d'Al_2O_3 [Fig. V.7 (a)]. Ces deux couches ont été déposées par pulvérisation cathodique. La cristallinité et l'épitaxie des couches déposées n'ont pas été vérifiées : cet échantillon nous a uniquement permis de tester les différentes étapes et plus

particulièrement celles faisant intervenir les gravure IBE, RIE.

▷ **L'échantillon $\mathcal{B}$** a été obtenu par PLD [Fig. V.7 (b)]. Il présente des plots de Fe(110) de hauteur typique $\gtrsim$130 nm déposés sur une couche tampon de 10 nm Mo(110). Les plots ont été enfin recouverts d'une couche de 3.3 nm d'Al afin de les protéger de toute oxydation (non représentée sur la figure). Cet échantillon n'était pas initialement prévu pour l'optimisation du procédé de contactage ce qui explique une faible épaisseur de la couche tampon et une couverture par de l'Al au lieu d'une couche d'Au. La présence de plots de hauteur proche de celle visée pour l'échantillon finale nous a néanmoins permis de développer le niveau *trous* sur cet échantillon.

▷ **L'échantillon $\mathcal{C}$** a également été obtenu par PLD [Fig. V.7 (c)]. Il comporte quelques améliorations par rapport à l'échantillon $\mathcal{B}$. L'épaisseur de la couche tampon de Mo(110) de échantillon $\mathcal{C}$ est de 50 nm afin de réduire la résistance des contacts inférieurs. Les plots ont une hauteur moyenne de l'ordre de 140 nm, l'idée étant qu' *a priori* les domaines de fermeture de Néel des faces supérieures et inférieures sont d'autant plus découplés qu'ils sont éloignés. Aussi en augmentant la hauteur des plots on s'attend à ce que le champ de retournement des domaines de fermeture de Néel diminue, facilitant ainsi la mise en évidence du phénomène. D'autre part il nous est apparu plus cohérent de faire l'étude de transport sur des plots dont la hauteur est similaire à ceux caractérisés par d'autres méthodes telle que la microscopie XMCD-PEEM. Enfin les plots sont recouverts d'une couche de 5 nm d'Au déposée *in situ*, l'avantage de l'Au par rapport à l'Al étant l'absence d'oxydation de la couche en surface. Dans le cas d'un échantillon basé sur une jonction tunnel, une couche de couverture d'Al ou de Mg[106] aurait été justifiée. Néanmoins la réalisation de jonctions tunnel magnétiques nécessitant un temps d'optimisation important concernant la structure et les propriétés magnétiques (problème de couplage dipolaire possible entre l'électrode ferromagnétique supérieure et le plot de Fe), cette voie n'a pas été choisie.

V.E.2 Contacts inférieurs

Afin de réaliser les contacts inférieurs, nous avons utilisé un masque suivi d'une étape de gravure. Les zones protégées par le masque seront les seules régions de la surface à ne pas être gravées. Reste ensuite à retirer le masque des motifs. L'optimisation de ces différentes phases (Fig. V.8) est présentée dans ce paragraphe après avoir détaillé les contraintes géométriques des motifs.

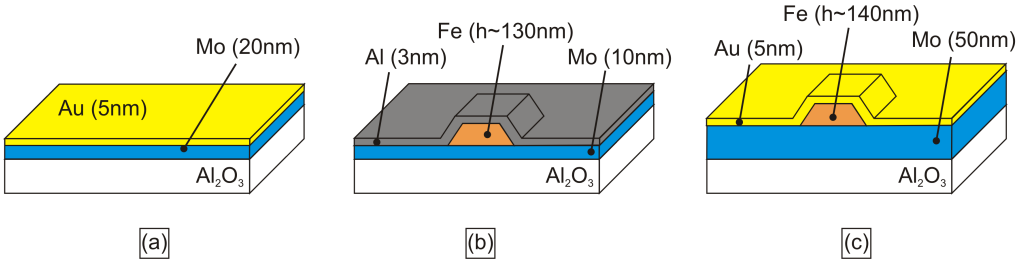

FIG. V.7 – Illustration des différents échantillons utilisés lors de la phase d'optimisation. (a) Échantillon de type $\mathcal{A}$. (b) Echantillon $\mathcal{B}$. (c) Echantillon $\mathcal{C}$

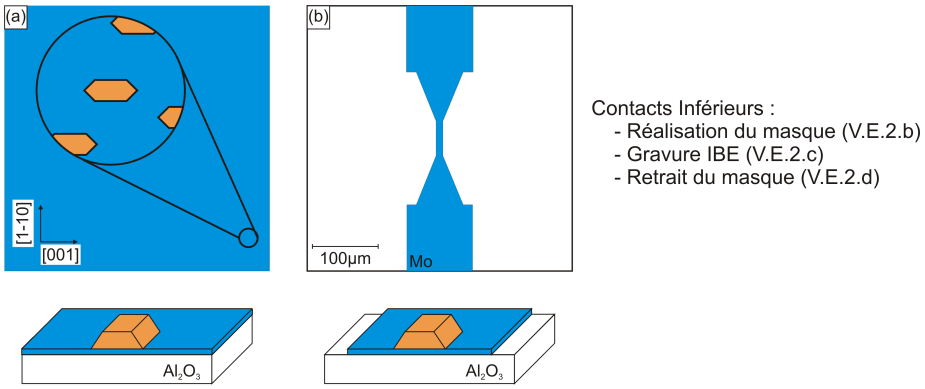

FIG. V.8 – Étapes de fabrication des contacts inférieurs. (a) Échantillon pleine plaque. (b) Réalisation du masque, gravure IBE et retrait du masque.

V.E.2.a Géométrie des contacts

Dans la définition de la géométrie des contacts, il fallait avant tout s'assurer qu'un nombre moyen de plots suffisants se trouverait au niveau de la zone d'intersection des électrodes. En effet seuls les plots se situant dans cette région sont des candidats potentiels pour le procédé de contactage. La densité de plots, fixée par la température du substrat au cours du dépôt, nous a permis de dimensionner la largeur des bandes centrales des électrodes. Ainsi lors d'un dépôt à 530 °C, la densité de plots typique est de $7.5 \times 10^{-2}\,\mu\text{m}^{-2}$, ce qui correspond à environ un plot par $3.7 \times 3.7\,\mu\text{m}^2$. Aussi en optant pour des largeurs de bandes de $10\,\mu$m, entre 5 et 10 plots sont attendus dans la zone centrale du dispositif.

Concernant la taille des plots de contact, cette dernière a été déterminée par des considérations pratiques liées aux contraintes de la micro-soudure et ainsi fixée à $100 \times 100\,\mu\text{m}^2$. De même des contraintes pratiques induites par la taille de l'échantillon, nous ont amenés à définir une période pour les motifs

de 500 μm afin d'avoir plus d'une centaine de motifs par échantillon.

Au cours des différentes étapes d'optimisation, la géométrie du dispositif a évolué. En ce qui concerne le niveau inférieur, les marques d'alignements pour les niveaux supérieurs ont été modifiées pour gagner en précision et des marques permettant de localiser le milieu de la bande centrale ont été ajoutées au motif.

V.E.2.b Réalisation du masque

Trois approches ont été testées pour la réalisation du masque de gravure. Sur des échantillons de type $\mathcal{A}$, la première méthode a consisté à insoler une couche de l'ordre de 55 nm de résine électro-sensible positive PMMA 2 % (cf. Annexe A) puis de réaliser le masque par lift-off d'une couche de 30 nm d'Al déposé par évaporation à l'aide d'un canon électronique. Les images obtenues par microscope optique présentées sur la figure V.9 montrent que la qualité de certains motifs obtenus n'est pas suffisante. L'échec de cette méthode peut être dû à l'épaisseur de la résine trop faible par rapport à celle de la couche d'Al, des flancs de résine trop évasés du fait d'une dose d'insolation trop forte.

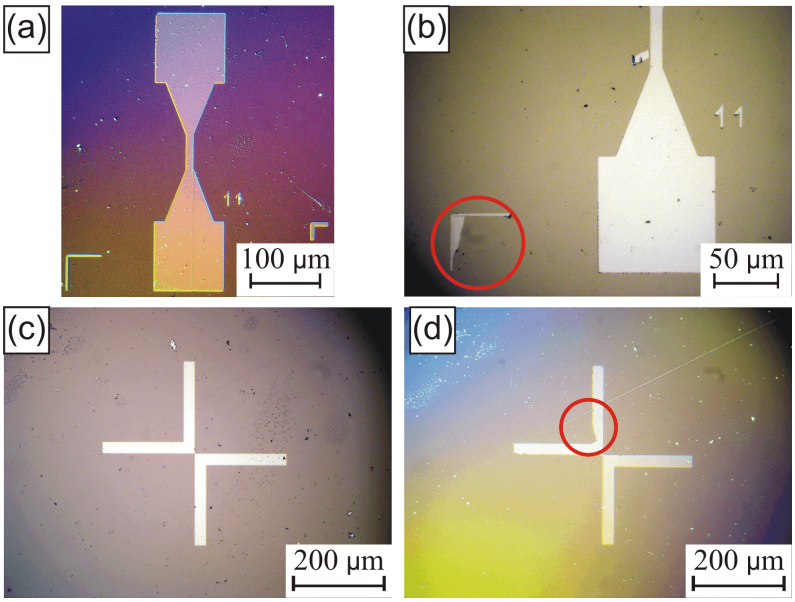

Fig. V.9 – Images (microscope optique) du masque d'Al de 30 nm réalisé sur un échantillon de type $\mathcal{A}$. (a) Motif complet. (b) Zoom sur un motif défectueux. (c-d) Croix d'alignement : après insolation de la résine (c) et après le lift-off de la couche d'Al (d). Les cercles mettent en évidence les zones où le lift-off n'est pas conforme.

Une seconde méthode a été testée sur un autre échantillon de type $\mathcal{A}$ (Fig. V.10). Un ensemble de couches de PMMA 4 % (270 nm), Si (30 nm), PMMA 2 % (55 nm) sont successivement déposées sur l'échantillon [Fig. V.10 (a)]. Ce dernier est ensuite insolé à l'aide du MEB. Une fois la couche de PMMA 2 % révélée dans une solution de MIBK (cf. Annexe A), les couches de Si puis de PMMA 4 % sont gravées par RIE à l'aide d'un plasma SF_6 et O_2, respectivement. Cette technique de tricouche permet d'obtenir des flancs inversés par sur-gravure ce qui facilite le lift-off du masque d'Al. Cette méthode a montré des résultats convaincants [Fig. V.10 (b-c)] néanmoins du fait du nombre d'étapes accrues, une autre méthode lui a été préférée.

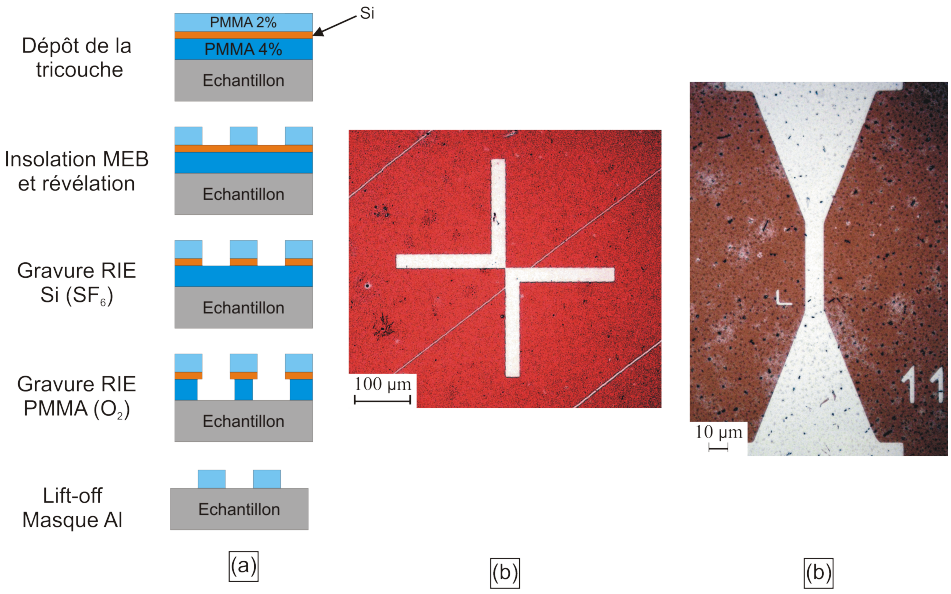

Fig. V.10 – Résumé de la méthode tricouche. (a) Les différentes étapes de fabrication. (b-c) Résultats finals (microscope optique) après le lift-off de la couche d'Al au niveau d'une croix d'alignement (b) et d'un motif (c).

En outre, l'inconvénient principal, à diaphragme constant, d'une technique de fabrication de masque basée sur l'insolation d'une résine positive type PMMA par rapport à une résine négative type UVN2 est le temps d'insolation pour chaque motif. En effet les doses requises lors de cette phase d'insolation sont de l'ordre de 300-450 μA.s/cm^2 alors que dans le cas de la résine négative UVN2 la dose n'est que de 5 μA.s/cm^2. Cette haute sensibilité de la résine UVN2 permet, à courant constant, des vitesses d'insolation plus élevées mais les risques de sur/sous-insolations sont également augmentés (sensibilité à l'alignement de l'optique électronique du MEB accrue). Par

ailleurs, l'utilisation du MEB à des vitesses de déplacement de faisceau élevées (∼30 mm/s) augmente les risques de dégradation de la résolution des motifs. Malgré ces inconvénients, nous avons opté pour cette approche pour les échantillons $\mathcal{B}$ et $\mathcal{C}$ car elle nous permet d'insoler en une session plus d'une centaine de motifs. L'étalement de la couche de résine UVN2 (∼300 nm) se déroule de la manière suivante (cf. Annexe A) : étalement d'un primer afin d'améliorer l'adhésion entre l'échantillon et la résine, étalement de la résine et recuit afin de durcir la résine. La réalisation du masque se déroule alors en deux étapes : l'insolation de la couche de résine négative UVN2 à l'aide du MEB puis la phase de révélation. Cette dernière a cela de particulier qu'un recuit d'amplification chimique (amplification des réactions amorcées par l'insolation électronique) est nécessaire. La révélation se fait alors à l'aide d'une solution de LDD26W dans notre cas. La résine restant alors au niveau des motifs sert directement de masque à la gravure.

Comme nous l'avons annoncé précédemment, le fait d'utiliser de grandes vitesses de déplacement de faisceau peut poser des problèmes lors de l'insolation. En particulier, lors d'une insolation de l'échantillon $\mathcal{C}$ des problèmes de définition de motifs sont apparus (Fig. V.11). On observe notamment une ouverture dans la couche de résine : les zones de l'échantillon se situant au niveau de ces ouvertures seront gravées et l'électrode ne jouera pas son rôle de conducteur. Pratiquement, le logiciel Elphy découpe toute surface à insoler en géométries élémentaires. Il se peut alors que la jonction entre deux zones ne soit pas parfaite en particulier lorsque les vitesses d'insolation sont élevées. La solution à ce problème a consisté à doubler la dose d'insolation effective au niveau de ces jonctions en créant une zone de recouvrement entre les motifs.

V.E.2.c Gravure IBE

Du fait de la variété et la nature des matériaux à graver, nous nous sommes orientés vers une gravure physique de type IBE utilisant un faisceau d'ions Ar pour les trois types d'échantillons. En effet une gravure réactive telle que la RIE, où la composante principale de l'attaque est chimique, n'est pas adaptée pour la gravure de métaux tels que Fe. Les dispositifs de gravure IBE que nous avons utilisés permettaient de contrôler en continu le déroulement de l'attaque par un système de réflectométrie laser et d'un spectromètre de masse d'ions secondaires (SIMS, *Secondary Ion Mass Spectrometry*). Une gravure typique se faisait sous un flux d'Ar de l'ordre de 3.3 cm^3/min avec, pour les raisons évoquées p. 95, un échantillon incliné de 35 ° par rapport au plan horizontal au flux incident et en rotation. La figure V.12 présente

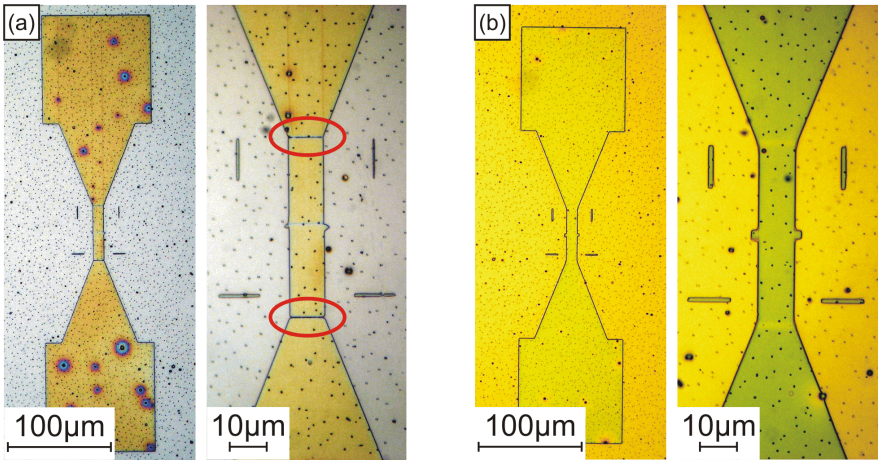

FIG. V.11 – Images (microscope optique) du masque de gravure (résine UVN2) obtenues pour deux insolations des contacts inférieurs. (a) Motif défectueux présentant des ouvertures dans la couche de résine signalées par les ellipses. (b) Motif amélioré.

les indicateurs disponibles lors de la gravure de l'échantillon $\mathcal{C}$ où la résine négative UVN2 servait de masque.

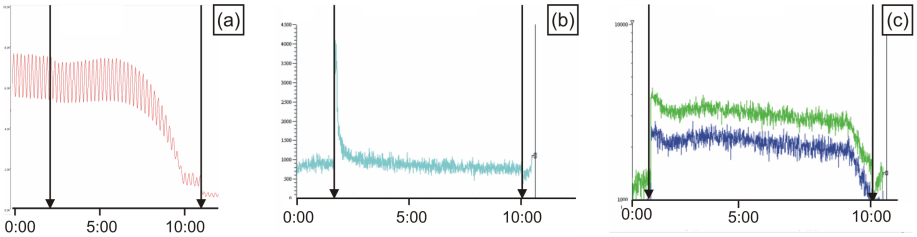

FIG. V.12 – Contrôle de la gravure IBE sur l'échantillon $\mathcal{C}$. (a) Signal réflectométrie laser. (b-d) signaux SIMS : (b) Au, (c) Mo (bleu) et Mo avec ses principaux isotopes (vert). Les flèches indiquent les début et fin de gravure pour chaque signal. Dans (a), les oscillations sont dues au fait que l'échantillon ne se trouve pas exactement au centre du porte-échantillon en rotation (5 tr/min). L'intensité du signal laser réfléchi varie au cours du temps.

Immédiatement après le début de la gravure, le signal de réflectométrie laser décroît légèrement. Notons que les oscillations de ce signal sont dues au fait que, l'échantillon ne se trouvant pas exactement au centre du porte-échantillon en rotation (5 tr/min), l'intensité du signal laser réfléchi varie au cours du temps. La décroissance du signal réfléchi observée après le début de la gravure est probablement liée à la disparition de la couche d'or proté-

geant les plots de Fe. Cette disparition rapide ($\gtrsim$30 s) se traduit par un pic d'intensité SIMS correspondant à cet élément [V.12 (b)]. Dès le début de la gravure, le signal SIMS provenant du Mo [V.12 (c)] augmente puis décroît au fur et à mesure de l'attaque de la couche tampon. La disparition complète de la couche de Mo se traduit par une décroissance rapide du signal SIMS de cet élément ainsi que du signal laser réfléchi. Ceci se comprend aisément puisque les couches métalliques sont réfléchissantes alors que le saphir est transparent.

V.E.2.d Retrait du masque

Une fois l'étape de gravure achevée, il est nécessaire de retirer le masque de gravure avant de continuer le procédé de fabrication. Dans le cas de l'échantillon de type $\mathcal{A}$ où le masque de gravure était constitué d'une couche d'Al, nous avons décidé de ne pas retirer ce masque. La raison principale de ce choix est liée au fait que ce premier échantillon devait nous permettre essentiellement de tester les différentes étapes de lithographie électronique. D'autre part, nous pensions déjà à ce moment nous orienter vers le procédé à base de résine négative UVN2. Néanmoins, pour être complet, la solution habituelle utilisée pour enlever un masque Al consiste à immerger l'échantillon dans une solution de LDD26W pendant 30-60 s puis de le rincer abondamment dans de l'eau desionisée pendant quelques minutes.

Dans le cas de l'échantillon $\mathcal{B}$ la résine négative UVN2 a été retirée par une immersion de l'échantillon dans un bain d'acétone pendant 2 h avec ponctuellement une agitation du bain par ultrasons. Cependant il s'est avéré que cette méthode n'aboutissait pas à un retrait suffisant de la résine gravée V.13. Le risque engendré par un retrait imparfait du masque de gravure apparaît lors des étapes ultérieures du procédé. En effet, dans l'ensemble des étapes de fabrication, il se peut que lors d'une étape de révélation de résine, le masque en UVN2 subsistant sous la couche d'isolant se dissolve et réalise ainsi localement un lift-off de la couche d'isolant. Dans le cas où ce lift-off se produit au niveau de l'intersection entre les électrodes supérieures et inférieures, il en résulte un court-circuit entre les différents niveaux : la mesure du signal magnéto-résistif du plot de Fe est alors impossible. D'autres essais ultérieurs nous ont confirmé qu'une attaque de la résine UVN2 gravée par de l'acétone n'était pas suffisante. Un retrait de la résine UVN2 par une attaque RIE à l'aide d'un plasma O_2 a été envisagé. Néanmoins cette attaque présente le risque de pulvérisation de la couche protectrice d'Au. Du fait de sa faible épaisseur (5 nm), cette méthode n'a pas été testée.

Pour l'échantillon $\mathcal{C}$, nous avons donc opté pour un autre procédé de retrait de la résine UVN2 développé par Julien Senzier pendant sa thèse[107].

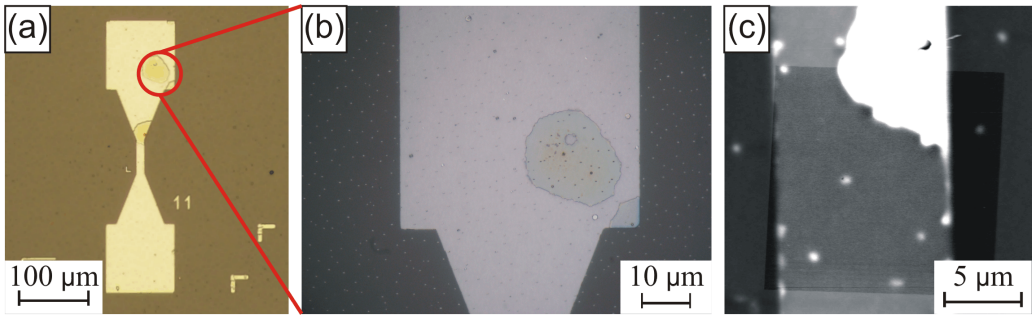

Fig. V.13 – Retrait imparfait du masque de gravure UVN2 dans un bain d'acétone réalisé sur l'échantillon $\mathcal{B}$. (a-b) Images par microscopie optique et (c) image AFM de motifs après attaque du masque de gravure par une solution d'acétone pendant 2 h.

L'échantillon a été immergé pendant 1h40 dans une solution de EKC® LE® à 60 °C suivi d'un rinçage abondant dans de l'eau désionisée. Cette méthode est beaucoup plus efficace pour le retrait de la résine. Aucune trace de résine n'a en effet été observée sur cet échantillon. Néanmoins ce procédé plus agressif présente le risque potentiel d'attaquer les couches métalliques dans le cas d'une immersion prolongée. Nous avons effectivement observé deux problèmes suite à ce délaquage. Tout d'abord des trous dans les couches métalliques des motifs sont visibles [Fig. V.14 (b)]. Le diamètre moyen sub-micrométrique de ces trous nous laisse penser qu'ils résultent de la disparition de gouttelettes métalliques obtenues lors de l'élaboration de l'échantillon par PLD. Cette disparition a été imputée à l'attaque par la solution d'EKC® LE® par comparaison entre deux images obtenues pour le même motif avant et après l'immersion [Fig. V.14 (a-b)]. Ces trous de la même manière que les gouttelettes (de hauteur micrométrique) peuvent potentiellement causer des court-circuits s'ils se trouvent dans la zone d'intersection des électrodes du fait de la difficulté de la couche d'isolant à reproduire de manière conforme des variations rapides de topographie. L'autre problème observé après le délaquage de la résine UVN2 est la présence de rugosité et trous en limite de masque de gravure dans la couche tampon de Mo [Fig. V.14 (c)]. Ces variations de topographie peuvent être dues à des flancs de résine mal-définis suite à une insolation à haute vitesse de balayage. Ces défauts sont alors reportés lors de la phase de gravure. Là encore un risque de court-circuit des électrodes est présent.

Au vu de ces problèmes d'attaque de la couche tampon de Mo notamment, se pose la question centrale de la qualité des plots de Fe. Une étude MEB nous a montré que la morphologie des plots de Fe était inchangée et notamment

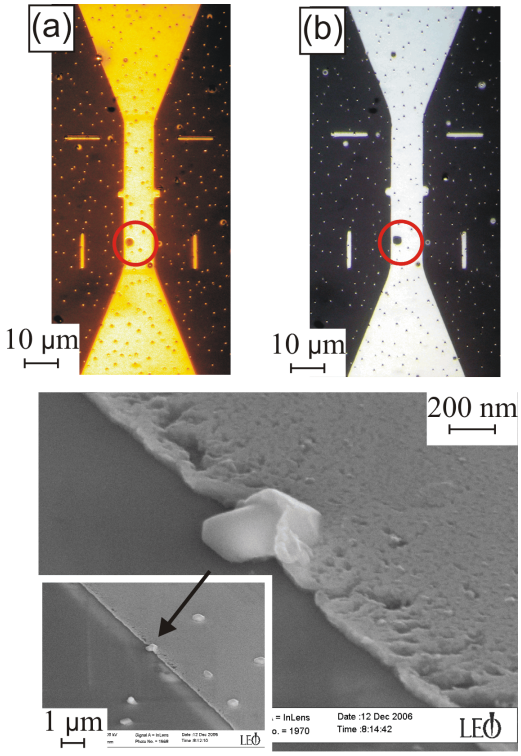

Fig. V.14 – (a-b) Images (microscope optique) du même motif avant (a) et après (b) le délaquage de la résine UVN2 dans la solution EKC® LE®. (c) Image MEB obtenue sur un motif après délaquage. Les cercles mettent en évidence le retrait d'une gouttelette métallique lors de l'immersion de l'échantillon dans la solution EKC® LE®.

qu'ils présentaient toujours des bords facettés. Nous en avons donc conclu que les plots n'avaient pas été attaqués lors du délaquage de la résine.

V.E.3 Niveau « trous »

Au cours de cet ensemble d'étapes de fabrication (Fig. V.15), une couche d'isolant est déposée sur toute la surface de l'échantillon. Cette couche doit être ensuite ouverte au niveau d'un plot de la zone centrale de chaque motif et également au niveau des contacts des électrodes inférieures par des étapes de lithographie électronique et de gravure. La difficulté de ce niveau réside dans le fait que les différentes couches d'isolant et de résine n'étant pas parfaitement conformes, l'épaisseur de ces couches et donc leur résistance à la gravure notamment, ne sont pas la même au niveau des électrodes de contact et au sommet d'un plot. Il est donc nécessaire de croiser des informations lo-

cales à ces différentes échelles. Les profilomètres standards n'ayant pas une résolution suffisante, l'AFM en mode contact nous a permis d'obtenir ces informations. La mise au point de ce seul niveau a requis 5 mois de développement.

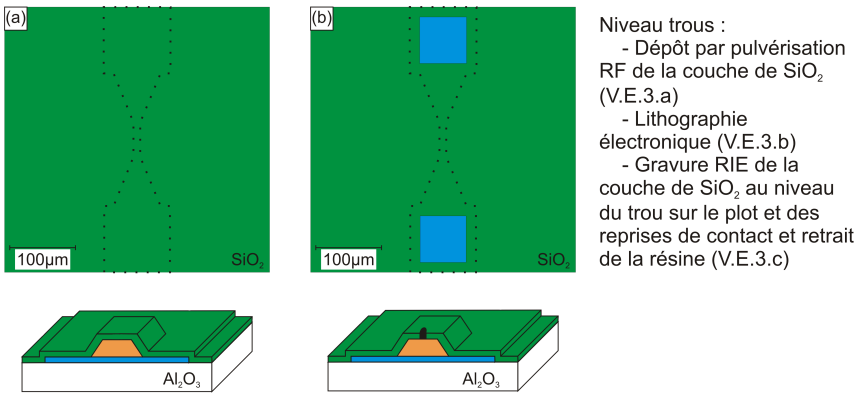

Fig. V.15 – Étapes de fabrication du niveau des trous. (a) Dépôt par pulvérisation cathodique RF de la couche de SiO_2. (b) Étalement de la résine positive PMMA, métallisation (10 nm Al) de la résine, imagerie de la zone centrale, sélection d'un plot, insolation du trou sur le plot et au niveau des reprises de contact, révélation, gravure de la couche de SiO_2 par une attaque RIE RF CHF_3 et retrait de la résine.

V.E.3.a Dépôt de la couche d'isolant

Les dépôts des couches de SiO_2 ont été réalisés par pulvérisation cathodique RF. L'épaisseur de la couche d'isolant a été déterminée principalement en fonction de l'épaisseur de la couche tampon de Mo sous-jacente et le cas échéant de la hauteur des plots de Fe. Le dépôt de la couche d'isolant n'étant pas conforme, il convient de s'assurer que l'épaisseur nominale de la couche de SiO_2 est suffisante pour garantir l'isolation électrique. Pour une isolation au niveau d'un passage de marche, le rapport entre l'épaisseur de la couche d'isolant à déposer et la hauteur de marche est typiquement de ≥ 2. En ce qui concerne l'isolation des plots de Fe, la difficulté provient des facettes inclinées qui, selon les plans cristallographiques, peuvent présenter des angles avec le plan de l'échantillon compris entre $\sim 45\,°$ et $60\,°$, des variations d'épaisseur de la couche d'isolant liées à la topographie sont donc possibles. Inversement, une épaisseur d'isolant trop grande limite la résolution sur le diamètre du trou au sommet du plot. L'épaisseur d'isolant est donc le résultat d'un compromis.

Pour l'échantillon $\mathcal{A}$ (20 nm de Mo et pas de plots), 40 nm de SiO_2 ont été déposés. Pour les échantillons présentant des plots de Fe, 20 nm et 55 nm de SiO_2 ont été déposés sur l'échantillon $\mathcal{B}$ (10 nm de Mo) et l'échantillon $\mathcal{C}$ (50 nm de Mo), respectivement. Afin de quantifier la variation d'épaisseur de la couche d'isolant entre le sommet des plots et le reste de la couche, des caractérisations par AFM réalisées avant et après dépôt de la couche de SiO_2 ont été réalisées sur l'échantillon $\mathcal{C}$. Des hauteurs de 138±21 nm et 111±32 nm ont été obtenues. Malgré le recouvrement des distributions, on peut s'attendre à une diminution de l'épaisseur de la couche d'isolant au sommet des plots probablement de l'ordre 10 nm.

Outre le problème d'épaisseur de la couche de SiO_2, la qualité de la couche sous-jacente est essentielle. En particulier nous avons déjà évoqué des problèmes potentiels liés aux restes de résine négative utilisée comme masque de gravure des contacts inférieurs. Nous avons notamment vérifié que des problèmes d'isolation pouvaient apparaître sur l'échantillon $\mathcal{B}$, où des restes de résines ont été observés, à l'aide d'un AFM en mode conducteur. Ces expériences, réalisées en collaboration avec Pierre-Jean Zermatten (SPINTEC CEA/CNRS, Grenoble), ont permis, à l'aide d'un AFM Veeco D3100 en mode contact équipé d'une pointe en W sur laquelle est appliqué un potentiel électrique, d'imager les zones de l'échantillon où des courants de fuite sont détectés. La figure V.16 nous confirme que des défauts d'isolation peuvent apparaître au niveau du passage de la marche de Mo.

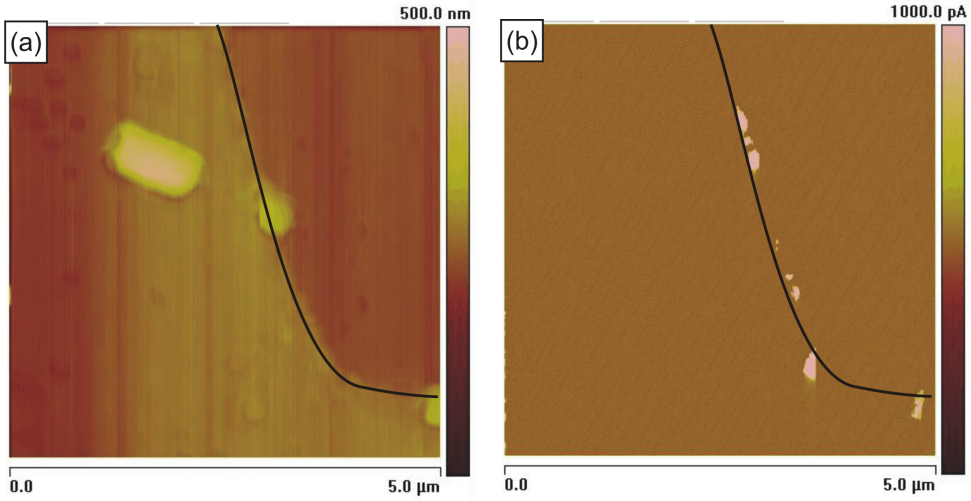

Fig. V.16 – (a) Image AFM d'un motif de l'échantillon $\mathcal{B}$ au niveau de la marche Mo. (b) Région identique imagée en mode C-AFM. Les lignes noires soulignent le bord de la marche de Mo

V.E.3.b Lithographie électronique

Comme nous l'avons précisé précédemment, la difficulté majeure de cette étape de lithographie consiste à pouvoir repérer sur chaque motif le plot à contacter. La solution que nous avons adoptée est d'imager la zone centrale de chaque motif (bande de 10 μm de large) afin de pouvoir sélectionner un plot avant de l'insoler et de réaliser par gravure un trou dans la couche d'isolant. D'un point de vue pratique, cette approche nécessite (1) de mettre au point un procédé d'alignement automatique afin de garantir que la zone imagée corresponde à la bande centrale de l'échantillon. (2) De trouver des paramètres d'imagerie permettant de visualiser les plots sous la résine sans insoler cette même résine. (3) Le positionnement de l'insolation du trou sur le plot doit être suffisamment précis pour que ce trou se trouve effectivement sur le sommet du plot. L'insolation doit également respecter des dimensions initiales et déboucher sur la couche d'isolant. L'essentiel de notre travail a donc consisté à développer ces trois aspects. La mise au point de cette étape a été essentiellement réalisée sur l'échantillon $\mathcal{B}$.

1. Alignements automatiques

Le réalignement automatique des champs d'insolation vise à s'assurer que les différents niveaux du procédé de fabrication sont correctement alignés. Pour chaque motif, cette procédure permet de modifier le repère « logiciel » (rotation, dilatation, translation) pour le faire coïncider avec celui de l'échantillon en utilisant des marques définies dans le niveau des contacts inférieurs [Fig. V.17 (a)]. Dans notre cas, une précision sur le réalignement de l'ordre de 1 μm est suffisante. Ce protocole a été implanté initialement, au sein de la plateforme Nanofab, par Thierry Crozes. Lors de la conception des motifs, le réalignement automatique est implémenté à l'aide de structures prédéfinies dans le logiciel ELPLHY : les *Auto Mark Scans*. Pratiquement, le faisceau électronique balaye l'échantillon perpendiculairement à chaque marque du niveau inférieur ce qui permet d'obtenir un profil d'intensité appelé *Linescan* [Fig. V.17 (b)]. Le centrage des marques est alors déterminé à l'aide d'un algorithme de détection de bords. Deux marques différentes sont nécessaires pour déterminer les corrections à apporter à un champ d'insolation donné. Lors de l'étape d'insolation du niveau trous, deux champs d'écriture (50 μm et 400 μm) sont utilisés. Aussi, sur la figure V.17, deux balayages d'alignements (lignes sombres) sont observables pour le champ de 400 μm (grandes marques) et pour celui de 50 μm (petites marques).

Dans notre cas, l'utilisation des deux champs d'insolations différents a rendu la procédure d'alignement automatique plus complexe. Il était en effet

nécessaire de transférer les corrections d'un champ à l'autre afin que ces derniers restent alignés l'un par rapport à l'autre. Ce développement a été réalisé par Helge Haas. Une précision d'alignement automatique inférieure à 1 μm est atteinte grâce aux marques d'alignement du petit champ d'écriture.

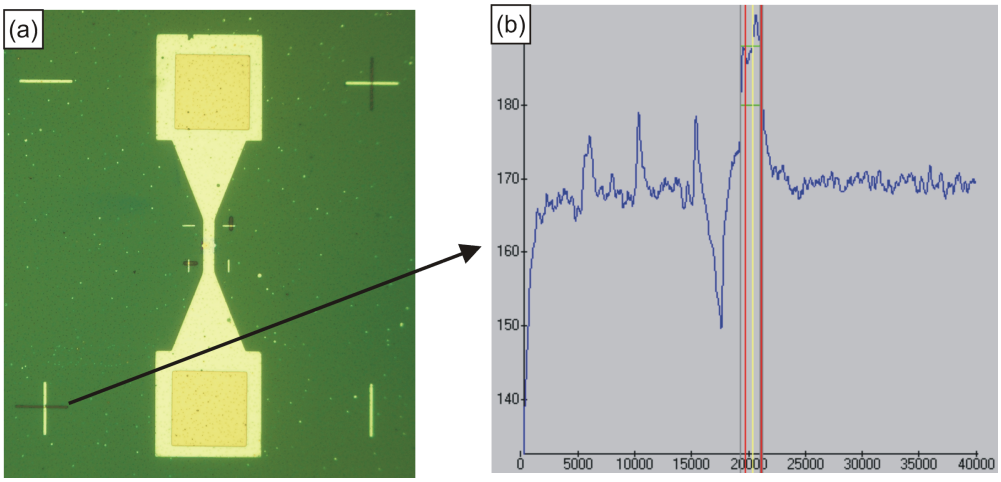

Fig. V.17 – (a) Image (microscope optique) obtenue lors d'une insolation *niveau trous*. La flèche indique un balayage d'alignement automatique du champ de 400 μm(ligne horizontale sombre). (b) Exemple de profil d'intensité permettant, à l'aide d'un algorithme de détection de bords, d'aligner de manière automatique les champs d'insolation.

2. Imagerie des plots

Cette étape vise à imager la zone centrale des motif afin de pouvoir sélectionner un plot à contacter. La difficulté principale de cette étape est d'imager, à l'aide du faisceau électronique, une zone de l'échantillon à travers la couche de résine PMMA électro-sensible déjà déposée sans insoler cette même couche de résine. En pratique, il faut que la couche de résine restante après imagerie, insolation du trou et révélation soit au moins égale à l'épaisseur de la couche d'isolant à graver. Par ailleurs il s'avère que les résines organiques sont de mauvais conducteurs. Il en résulte des phénomènes de charge lors de l'acquisition de l'image et donc une perte de résolution. L'approche adoptée a consisté à recouvrir avant chaque insolation la résine d'une couche de 10 nm d'Al obtenue par dépôt par canon à électrons afin de pouvoir imager correctement la surface et notamment procéder aux réglages de la colonne électronique sur l'échantillon.

Pour des raisons de précision sur la position de l'insolation du trou au sommet du plot (voir le paragraphe suivant), il s'est avéré que l'acquisition

de deux images successives de la bande centrale des motifs était nécessaire. L'essentiel du développement a donc consisté à trouver les paramètres permettant l'acquisition de ces images sans insoler significativement la résine. Plus précisément, un compromis était à trouver entre la qualité des images requises pour le repérage du plot à contacter et l'épaisseur de résine consommée par l'acquisition des images. Concernant ce dernier point, la contrainte était qu'une épaisseur suffisante de résine devait protéger, lors de la gravure, les plots présents à l'intersection des deux images. Une dizaine de lithographies sur l'échantillon $\mathcal{B}$ a été nécessaire pour la mise au point de cette méthode.

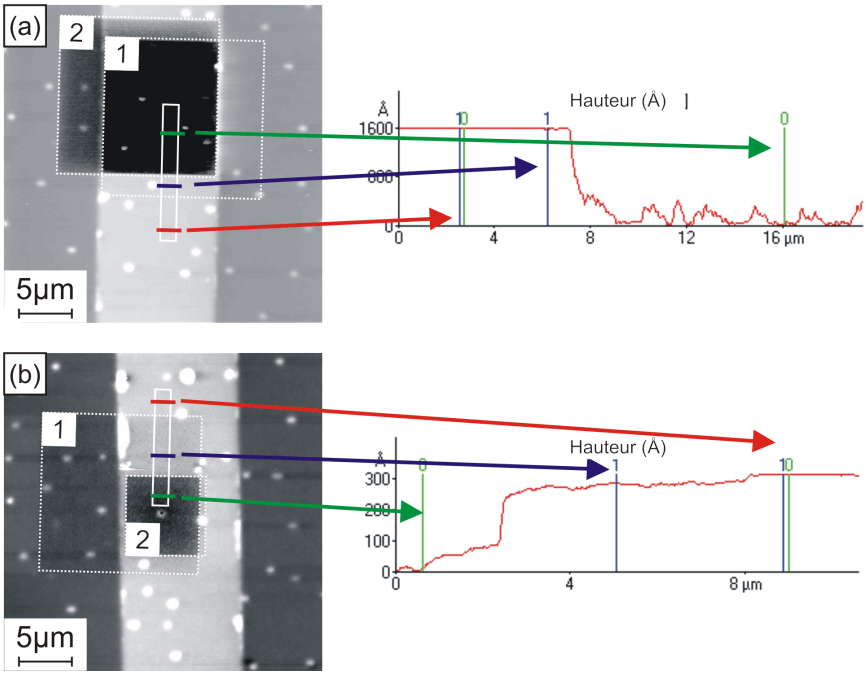

FIG. V.18 – Imagerie de plots de Fe(110) et effets indésirables d'insolation de la résine. (a-b) Images AFM (mode contact) de la résine PMMA 3 % après imagerie des plots, insolation et révélation. Les profils associés permettent de mettre en évidence l'insolation de la résine dûe à l'imagerie des plots. Les carrés en pointillés délimitent les régions imagées au MEB. Les paramètres des deux images avant insolation sont :

Insolation	Taille images	Résolution	Moyennage
(a)	15 μm - 15 μm	256 px - 512 px	Aucun
(b)	15 μm - 7.5 μm	256 px - 128 px	Aucun

Après une phase de test des différents paramètres accessibles par le logiciel Elphy, trois paramètres sont apparus comme déterminants lors de l'imagerie pré-insolation des plots de Fe : la taille (dim en μm), la résolution (rés,

nombre de pixels par ligne de l'image finale) et le moyennage (moy, nombre de balayages du faisceau électronique par point de l'image) utilisés pour les deux images. La figure V.18 compare, à l'aide d'images AFM en mode contact de la résine après l'imagerie des plots, deux triplets de paramètres. Lors de la première série, 3 nm et 160 nm de résine sont insolés lors de la première image (dim=15 μm×15 μm, rés=256 px, moy=1) et au niveau de l'intersection avec la seconde image (dim= 15 μm×15 μm, rés=512 px, moy=1). Les doses d'insolation équivalentes des deux images sont de $\simeq$27.1 μA.s/cm^2 et $\simeq$108.3 μA.s/cm^2, respectivement. La dose totale équivalente au niveau de la zone d'intersection ($\simeq$135.4 μA.s/cm^2) n'est pas négligeable par rapport à la dose d'une insolation classique (450-600 μA.s/cm^2). La couche de résine mesurant typiquement 180-190 nm d'épaisseur en dehors des plots et environ 80 nm sur les plots, il ressort de cette première série d'images que seuls $\lesssim$30 nm de résine subsistent sur l'échantillon. Comme la résine n'est pas parfaitement conforme, les plots de Fe(110) débouchent certainement de la couche de résine. Il a donc été nécessaire de diminuer la résolution de la seconde image afin de réduire la dose équivalente d'insolation par image.

La deuxième série présente les paramètres d'imagerie optimisés. La première image (dim= 15 μm×15 μm, rés=256 px, moy=1) insole typiquement 3 nm de résine. Au niveau de l'intersection avec la seconde image (dim= 7.5 μm×7.5 μm, rés=128 px, moy=1), $\sim$30 nm de résine sont insolés, laissant sur les plots $\sim$50 nm de résine ce qui est suffisant pour résister durant la gravure de la couche d'isolant de 20 nm d'épaisseur. Dans cette procédure, la dose équivalente à chaque image est de $\simeq$27.1 μA.s/cm^2. Au niveau de l'intersection des deux images, la dose équivalente est de $\simeq$54.2 μA.s/cm^2. L'effet d'insolation n'étant pas linéaire avec la dose, ces paramètres permettent de diminuer de manière significative, par rapport aux premiers essais, l'épaisseur de résine consommée par l'imagerie de la zone centrale. L'intérêt de réduire la taille de la seconde image ainsi que sa résolution est purement pratique : le rendu, généré à l'écran par le logiciel ELPHY, d'une image lors d'une séquence d'insolation automatisée est de taille constante. En diminuant la taille physique de l'image, on augmente le nombre de pixels de l'écran alloués à chaque point physique de l'image (effet zoom) ce qui permet une meilleure précision lors du repérage. Néanmoins il est nécessaire de réduire également la résolution afin de limiter l'insolation de la résine en conservant constante la dose d'insolation par unité de surface.

Notons que l'optimisation de cette étape s'est trouvée ralentie par un changement de résine PMMA 3 %. Au court de la phase de développement, nous avons dû utiliser une résine plus récente qui s'est révélée être beaucoup plus sensible. Par ailleurs, l'échantillon $\mathcal{C}$ présentant des plots légèrement plus hauts, nous avons finalement opté pour une résine PMMA 4 %. Ce change-

ment d'une couche de résine de ∼180 nm d'épaisseur pour une de ∼240 nm nous a assuré une certaine sécurité quant à la protection des plots non insolés se situant à l'intersection des deux images, lors de la phase de gravure. Néanmoins cette résine s'est révélée être plus sensible que la PMMA 3 % la plus récente de sorte que les conditions de protections des plots non insolés se situant à l'intersection des deux images furent similaires pour la PMMA 3 % et la PMMA 4 %.

3. Insolation et précision

Après l'imagerie des plots de la zone centrale du motif, nous nous intéressons, dans ce paragraphe, à l'insolation du trou au sommet d'un plot. Les différentes contraintes sur cette étape sont : (i) la précision sur le positionnement du trou, observé après révélation. Les dimensions latérales sub-microniques (∼0.5 μm) du sommet des plots de Fe font que la précision requise sur le positionnement de ce trou est <150 nm. (ii) La conformité de l'insolation : la dose d'insolation utilisée doit permettre, après révélation, de respecter le diamètre initial du trou et de déboucher sur la couche d'isolant.

Pratiquement, les images acquises lors de l'étape précédente correspondent à une structure prédéfinie du logiciel ELPHY : les *Manual Mark Scans* ou *Markscans*. Dans notre cas, cette structure nous a permis de *pointer* manuellement sur un plot et de positionner le trou à insoler sur le plot en décalant le champ de largeur 50 μm. Afin de ne pas désaligner les deux champs d'écriture (50 μm et 400 μm), la configuration du champ de 50 μm est restaurée automatiquement.

Il est ressorti des différents essais de lithographie que l'utilisation d'un seul *Markscan* induit des erreurs de positionnement par rapport à la consigne de décalage de champ d'écriture de l'ordre de 10 % [Fig. V.19 (a-c)]. Afin de pallier à ce problème, il s'est avéré que l'enchaînement de deux *Markscans* permet d'atteindre une précision $\lesssim$ 100nm [Fig. V.19 (d-f)].

La dose requise pour l'insolation des trous sur les plots est un paramètre complexe à déterminer. Contrairement au reste de la couche de résine, le sommet des plots recouverts n'est pas plat et est assimilable à une protubérance de ∼30 nm de haut par rapport au reste de la résine. De fait l'épaisseur de la couche de résine au-dessus des plots n'est que de ∼80 nm. L'interaction faisceau électronique-résine sera donc sensiblement différent du reste de la couche. Les procédures habituelles de matrices de doses ont été testées sur la couche plane de résine mais elles ne donnent qu'une information indirecte du processus d'insolation sur les plots.

Typiquement des doses de 450-600 μA.s/cm^2 ont été utilisées. Des trous de diamètres 100 nm et 200 nm ont été insolés. Pour les trous avec le diamètre le plus grand, une profondeur de résine de ∼70 nm pour un diamètre à mi-

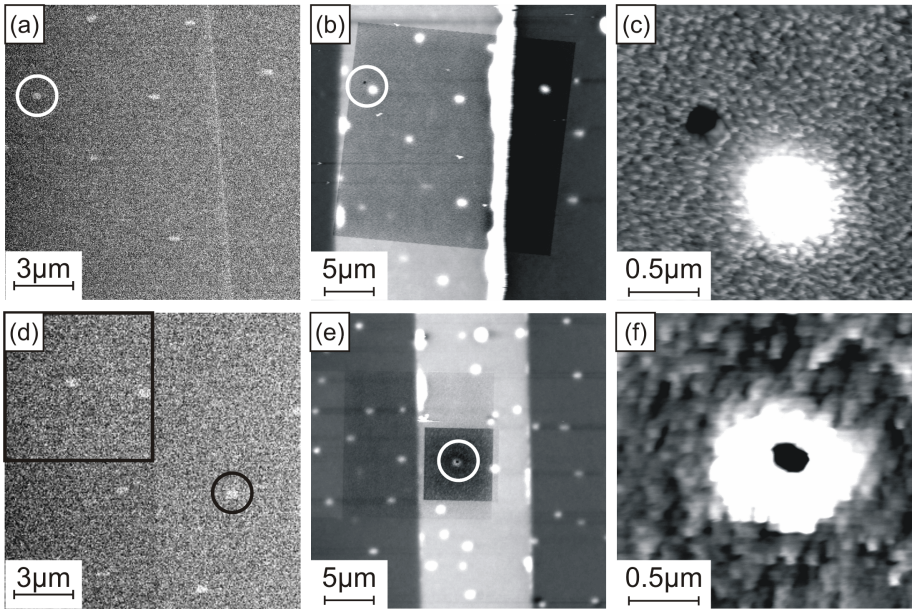

Fig. V.19 – Série d'images obtenue pour deux insolations du niveau *trous* où la procédure n'est pas optimisée (a-c) et est optimisée (d-f). (a, d) Images MEB obtenues lors du repérage du plot à contacter. (b, e) Images AFM en mode contact ($20\,\mu$m$\times 20\,\mu$m) de la résine après imagerie, insolation et révélation. (c, f) Zoom ($2\,\mu$m$\times 2\,\mu$m) sur le plot visé après imagerie.

hauteur après révélation de 150-200 nm sont déterminés par AFM en mode contact. Un fond plat a été observé sur certains motifs (trous de diamètre initial de 200 nm), révélant que la résine est complètement insolée et révélée pour ces motifs : le trou débouche bien sur la couche d'isolant. Pour les trous ne présentant pas de fond plat, l'influence qualité de la pointe AFM est certainement significative. En effet, les fortes variations de topographie de la surface recouverte de résine dégradent rapidement la qualité de la pointe. Pour les trous de diamètre initial de 100 nm, la profondeur de résine n'est que de typiquement 30 nm pour un diamètre à mi-hauteur, après révélation, de 50-100 nm. La granularité de la résine après révélation fait que les trous de plus faible diamètre sont fortement anisotropes et que leur diamètre $\lesssim$100 nm est difficile à déterminer. Malgré l'influence de la pointe sur les profils des trous de diamètre initial 100 nm, il s'est avéré que nous ne sommes pas arrivés à contacter de tels motifs. Pour ces trous de faible diamètre, des améliorations du procédé de contactage restent à développer.

V.E.3.c Gravure RIE

Les régions de la couche de SiO_2 mises à jour par révélation de la couche de résine ont été gravées par plasma RF CHF_3 à l'aide du procédé développé au sein de la plateforme Nanofab (cf. App. A), dans lequel le seul paramètre variable est la durée de gravure. Une difficulté de cette étape est de pouvoir graver en un procédé deux zones de géométries très différentes : les trous sur les plots de diamètre 100-200 nm et les reprises de contact de taille typique 80 μm×80 μm.

Comme évoqué précédemment, les couches de résine et d'isolant n'ont pas la même épaisseur sur le sommet des plots que sur le reste de la surface de l'échantillon. De ce fait, des tests habituels de gravure sur une région plane de l'échantillon ne nous apportent qu'une information indirecte sur la gravure de la couche d'isolant au sommet des plots. Lors de la gravure, les effets de taille réduite peuvent engendrer un appauvrissement du plasma en espèces réactives par confinement et donc une réduction de la vitesse de gravure. Ces effets locaux sont difficilement mesurables en cours de gravure. La durée de gravure a été optimisée sur l'échantillon $\mathcal{B}$ en focalisant notre attention sur la gravure au sommet des plots de Fe(110) à l'aide d'images AFM réalisées *a posteriori*. La hauteur de marche dans la couche d'isolant au niveau des reprises de contacts macroscopiques a également été quantifiée. Une sur-gravure de la couche tampon de Mo(110) au niveau de ces contacts macroscopiques n'est cependant pas un facteur limitant.

Partant d'une vitesse de gravure indicative du SiO_2 de 3-4 Å/s, un premier essai de gravure de la couche de 20 nm d'isolant de 100 s a été réalisé. Il s'est avéré que cette durée de gravure n'était pas suffisante [Fig. V.20 (a)] puisqu'une épaisseur moyenne de ∼3-4 nm de SiO_2 a été gravée. Lors des essais suivants, 150 s ont permis d'obtenir des hauteur de marches supérieures à 20 nm au niveau des contacts macroscopiques [Fig. V.20 (b)]. Ces différents comportement pourraient être dûs à des restes de résine dans les zones insolées dans le premier essai. A supposer que, pour ces dernières gravures, il ne restait pas de résine au niveau des zones insolées, la vitesse de gravure du SiO_2 est alors de 1.3 Å/s ce qui est très faible par rapport à la vitesse attendue.

Un test de gravure d'une couche de SiO_2 (couche déposée dans les mêmes conditions que l'échantillon $\mathcal{C}$, 55 nm) sur un substrat de Si a été réalisé. La vitesse de gravure a été déterminée à partir du signal de reflectométrie laser. La vitesse mesurée est de 3.9 Å/s. Cette forte variation de vitesse de gravure du SiO_2 peut s'expliquer par un nettoyage de la chambre avant la gravure de la couche test à l'aide du procédé de gravure du SiO_2, par une variation éventuelle de la puissance RF, par une variation du débit de gaz dans la

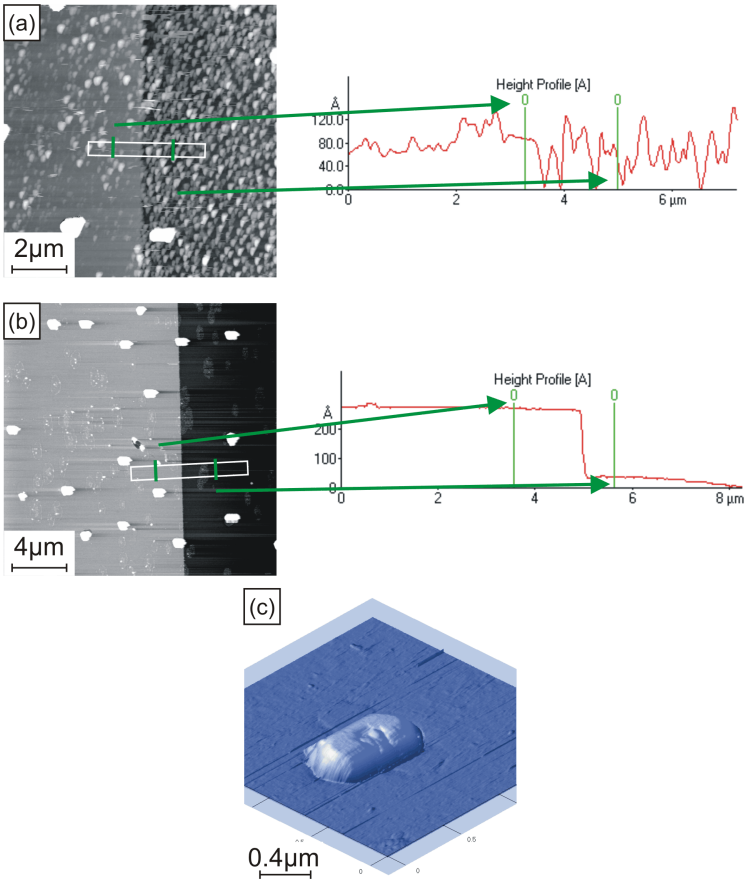

FIG. V.20 – (a-b) Images AFM des marches de gravure dans la couche de SiO_2 au niveau de contacts. Les hauteurs de marches sont de ∼3 nm et 23 nm pour (a) et (b), respectivement. (c) Image AFM d'un plot de Fe(110) présentant un trou sur la surface supérieure.

chambre ... L'influence du nettoyage de la chambre semble être déterminante. Pour l'échantillon $\mathcal{C}$, une gravure de 230 s nous a permis de sur-graver la couche de 55 nm d'isolant : une marche de 68 nm a en effet été mesurée au niveau des contacts macroscopiques.

Lors de ces différents essais, il s'est avéré très complexe de vérifier la gravure des trous sur le sommet des plots. Afin de repérer le plot insolé, des images AFM à relativement grande échelle ($20\,\mu m \times 20\,\mu m$) étaient nécessaires. Les variations importantes de topographies (plots, marches, ...) dégradaient rapidement la qualité de la pointe. De plus la granularité de la couche de SiO_2 rendait difficile l'imagerie des plots. Néanmoins, des trous ont clairement été observés [Fig. V.20 (c)].

Après gravure, le retrait de la résine s'effectue par immersion de l'échantillon dans un bain d'acétone pendant typiquement 1 h avec agitation ultrasons en fin de procédé puis dans un bain d'isopropanol avant séchage sous un flux d'azote sec.

V.E.4 Contacts supérieurs

La réalisation du niveau des contacts supérieurs d'Au (Fig. V.21) n'a pas nécessité de développement particulier. Les différentes étapes de ce niveau sont :

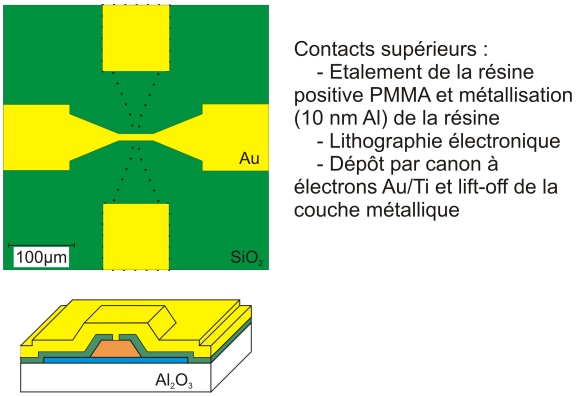

FIG. V.21 – Étapes de fabrication des contacts supérieurs. Étalement de la résine positive PMMA, métallisation (10 nm Al) de la résine, insolation, révélation, dépôt de la couche Au/Ti par canon à électrons et lift-off de cette couche.

▷ **Étalement de la résine**

Afin de réaliser le lift-off de couches d'Au de typiquement 50-100 nm d'épaisseur, nous avons opté pour une résine PMMA 4 % car elle permet d'obtenir des couches de ∼280 nm d'épaisseur (cf. App. A). Une couche de 10 nm d'Al est ensuite obtenue par dépôt par canon à électrons sur la résine pour permettre de réaliser des réglages de mise au point de la colonne optique sur la surface de l'échantillon.

▷ **Lithographie électronique**

De la même manière que pour le niveau trous, une procédure automatique est utilisée pour aligner, à l'aide de *Linescans*, le champ d'insolation sur les niveaux inférieurs, à la différence près que pour cette étape un seul champ d'insolation est utilisé (400 μm). La précision de la procédure de réalignement

dépend des dimensions du champ à aligner. Afin de pallier à d'éventuels décalages, la bande centrale des contacts supérieurs a été élargie à 15 μm. Les diaphragmes de 120 μm et de 30 μm ont été utilisés au cours des différentes insolations. Le premier présente une vitesse d'écriture plus importante et donc un temps d'insolation réduit (∼30 s par motif contre ∼5 min par motif pour le diaphragme de 30 μm). Le second permet d'atteindre de meilleures définitions. Pour toutes les réalisations de ce niveau, les doses d'insolation ont été de 300 μA.s/cm^2. La révélation de la résine insolée est faite à l'aide du procédé standard à base de MIBK [Fig. V.22 (a)].

▷ **Lift-off**

La surface des régions mises à jour par révélation de la résine est nettoyée par un plasma RF O_2 afin de faciliter l'accroche des contacts supérieurs. La vitesse de gravure de la résine par ce procédé étant élevée (70 Å/s), les nettoyages ne doivent excéder typiquement 10 s. Les couches des contacts supérieurs ont été obtenues par dépôt par canon à électrons. Une couche d'accroche de 10 nm de Ti est couramment utilisée pour la réalisation de contacts métalliques par lift-off. Sur l'échantillon $\mathcal{B}$, des couches d'Au de 50 nm et de 90 nm ont été déposées. Sur l'échantillon $\mathcal{C}$, la couche d'Au était de 100 nm. Le lift-off des contacts supérieurs a été réalisé dans un bain de NMP à 80 °C. Après une attente de typiquement 1 h, l'agitation par ultrasons permet de décoller les couches métalliques efficacement [Fig. V.22 (b)].

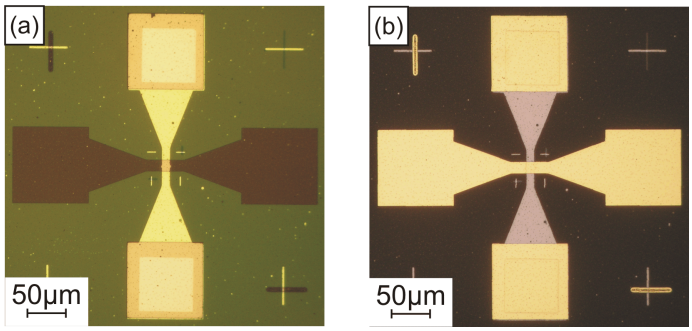

Fig. V.22 – Contacts supérieurs. (a) Image (microscope optique) d'un motif de l'échantillon $\mathcal{C}$ après révélation de la résine. (b) Image (microscope optique) du même motif après lift-off des contacts supérieurs.

Chapitre VI

Transport, sous champ et en température, dans un plot de Fe(110) individuellement contacté

Sommaire

VI.A Introduction au magnéto-transport 126

VI.B Signal physique mesuré et études préliminaires 130

VI.B.1 Plots de Fe(110), domaines de fermeture de Néel et signaux magnéto-résistifs 130

VI.B.2 Étude électrocinétique préliminaire 132

VI.B.3 Évaluation du signal de mesure 134

VI.C Montage expérimental et mesure 134

VI.D Résultats expérimentaux 139

VI.D.1 Caractérisation des arrivées de courant/tension . . 139

VI.D.2 Magnéto-transport dans des nanostructures individuelles 142

VI.D.3 Bilan des problèmes rencontrés, interprétations et solutions envisageables 145

VI.D.3.a Problèmes 145

VI.D.3.b Améliorations 147

Dans les chapitres précédents, nous avons prédit par simulations micromagnétiques et confirmé expérimentalement par microscopie XMCD-PEEM, l'existence du phénomène de retournement des domaines de fermeture de Néel. L'étude menée par microscopie de Lorentz devait nous permettre d'observer, sous champ magnétique, les phénomènes de retournement des domaines de fermeture de Néel et d'hystérésis associée à ce retournement. L'objectif de cette étude est de mettre en évidence, par magnéto-transport, la dépendance éventuelle en température (activation thermique) de ces mêmes phénomènes. Le choix pour une étude par magnéto-transport est motivé par le fait que peu de techniques expérimentales permettent de sonder des structures individuelles sous champ magnétique planaire de valeur significative ($\simeq$100-200 mT) et température variable (basses températures). Une approche alternative envisageable repose sur le STM polarisé en spin (Sp-STM, *Spin-polarized Scanning Tunneling Microscopy*) pour imager le retournement des domaines de fermeture de Néel sur le sommet des plots. Néanmoins peu d'instruments au monde (et *a fortiori* aucun au moment du démarrage de ce travail) permettent le contrôle des paramètres requis, notamment un champ planaire.

Après l'exposé de quelques éléments introductifs sur le magnéto-transport, une présentation de l'étude par simulations réalisée préliminairement aux mesures est faite. En particulier cette section sera l'occasion de préciser le signal physique que l'on cherche à sonder par les mesures. Le montage expérimental est ensuite présenté avant de détailler les résultats des mesures de magnéto-transport.

VI.A Introduction au magnéto-transport

Dans cette partie sont détaillés les différents mécanismes pour lesquels les propriétés de transport d'un matériau ou d'un système, à savoir essentiellement la résistance, sont modifiées par l'application d'un champ magnétique. On introduit le rapport de magnéto-résistance (MR) : $(\rho_H - \rho_0)/\rho_0 = \Delta\rho/\rho_0$, où ρ_0 et ρ_H sont les résistivités du système hors et sous champ magnétique. Certains effets de volume (MR cyclotron et MR anisotrope) sont connus depuis de nombreuses années. Les développements récents des techniques de fabrication (multicouches, nanostructures) ont permis de mettre en évidence de nouveaux effets couplant transport et spin (MR Géante, MR Tunnel, spin-torque ...). Le prix Nobel de physique 2007 a été d'ailleurs décerné à Albert Fert et Peter Grünberg pour leurs travaux sur la MR Géante.

▷ **Magnéto-résistance Cyclotron ou magnéto-résistance de Lorentz**
Que le matériau considéré soit magnétique ou non, la trajectoire des électrons de conduction est modifiée par l'application d'un champ magnétique. La loi de Lorentz prédit en effet que les électrons précessent autour du champ magnétique avec la fréquence cyclotron (dite aussi de Larmor) $\omega_c = eB/m^*c$, où B est l'induction magnétique, m^* la masse effective de l'électron. Cette précession allonge la trajectoire des électrons. De fait les électrons subissent un nombre de mécanismes de diffusion, notamment avec les impuretés ou les phonons, plus important. La résistivité augmente alors (MR cyclotron positive). La MR $\Delta\rho/\rho_0$ suit la loi de Kohler[45] : $\Delta\rho/\rho_0 \sim f(B/\rho_0)$, où $f(B/\rho_0)$ est une fonction intrinsèque à chaque matériau. A champ faible, la variation relative de MR évolue comme B^2 puis comme B à champ plus élevé ou sature. Pour aller plus loin dans l'analyse du phénomène de MR cyclotron, la surface de Fermi du matériau considéré doit être prise en compte.

▷ **Magnéto-résistance Anisotrope, AMR**
Historiquement, le premier effet magnéto-résistif à être utilisé dans les applications industrielles basées sur les métaux de transition est la magnéto-résistance anisotropes (*Anisotropic MagnetoResistance, AMR*). Son origine provient du couplage spin-orbite induisant des mécanismes de diffusion anisotropes entre les électrons de conduction s et les moments magnétiques[108, 109, 110].

Expérimentalement, l'AMR se manifeste par la dépendance de la résistance d'un échantillon en fonction de l'angle entre le courant traversant cet échantillon ($\mathbf{j}$) et l'aimantation locale ($\mathbf{m}$) :

$$\rho = \rho_\perp + (\rho_\parallel - \rho_\perp)\cos^2(\mathbf{j};\mathbf{m}), \tag{VI.1}$$

où $\rho_\perp$ ($\rho_\parallel$) est la résistivité lorsque le courant et l'aimantation sont perpendiculaires (parallèles respectivement). Dans la majorité des cas, la résistivité est plus grande lorsque le courant circule parallèlement à l'aimantation (AMR positive). Des phénomènes d'AMR de 3-5 % ont été observés à température ambiante dans des alliages massifs de FeNi et NiCo[110]. Dans ces alliages à base de métaux de transition :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho_{moy}} = \frac{\rho_\parallel - \rho_\perp}{1/3\rho_\parallel + 2/3\rho_\perp} \simeq \gamma(\alpha - 1), \tag{VI.2}$$

où γ dépend du couplage spin-orbite et $\alpha = \rho_\uparrow/\rho_\downarrow$ est le rapport entre les résistivités spin-up et spin-down.

Dans les couches minces, la contribution des interfaces doit être prise en compte du fait des phénomènes de diffusion aux interfaces. Cette influence peut être contre-balancée par l'amélioration de la qualité structurale des couches, favorisant notamment la diffusion spéculaire[111, 112]. D'une manière générale, quelque soit le système, des interfaces spéculaires sont préférables à des interfaces diffusives. Les têtes de lectures magnéto-résistives produites entre 1992 et 1998 reposaient sur l'utilisation de ce phénomène d'AMR.

▷ **Magnéto-résistance Géante, GMR**

Les premières mises en évidence expérimentales d'un effet magnéto-résistif prononcé dans le cas de couches ferromagnétiques séparées par des couches métalliques non-magnétiques ont été obtenues par Binasch *et coll.*[113] et par Baibich *et coll.*[114] dans le cas de multi-couches dont le motif de base était Fe/Cr/Fe avec un couplage antiferromagnétique entre les couches de Fe. On a ainsi parlé de magnéto-résistance géante (GMR). L'optimisation pour une utilisation pratique de cet effet à conduit à chercher des systèmes où les champs appliqués requis étaient faibles. Certains systèmes considèrent un ensemble de multi-couches avec une partie des couches magnétiques de coercivité faible. Dans les multi-couches ($Ni_{80}Fe_{20}$/Cu/Co/Cu)[115], par exemple, les couches de Permalloy ont une coercivité plus faible que les couches de Co. Dans un but applicatif, d'autres types de dispositifs considèrent deux couches ferromagnétiques, l'une libre et l'autre fixe, séparées par une couche métallique non-magnétique. On parle de *vannes de spin* à partir de 1994. L'amplitude de la GMR varie de quelques dixièmes de pourcent dans le cas de structures basées sur des couches de Mo ou V à plus de 100 % dans le système (Fe/Cr)[116]. L'amplitude du phénomène dépend du choix des deux matériaux (ferro- et non-magnétique) et de l'épaisseur des différentes couches (typiquement de l'ordre du nm)[110].

Les différents états résistifs observés en fonction de l'orientation relative des couches magnétiques ont pour origine des phénomènes de diffusion dépendants du spin des électrons de conduction. En considérant l'axe de quantification z des spins des électrons de conduction parallèle à l'aimantation, nous appelons dans la suite les électrons de spin $\uparrow$ (respectivement $\downarrow$), les électrons dont la composante de spin selon l'axe z est parallèle (respectivement antiparallèle) à l'aimantation. Les électrons de spin $\uparrow$ (respectivement $\downarrow$) sont respectivement appelés électrons majoritaires (respectivement minoritaires). Dans la limite des basses températures, les phénomènes de retournement des spins sont gelés de sorte que l'on puisse considérer que les deux canaux de

conductions liés aux deux orientations de spin sont indépendants. C'est le modèle *à deux courants*.

Dans un modèle de ferromagnétique fort dans lequel la bande d des électrons $\uparrow$ est pleine, les aimantations, à la saturation, dans les différentes couches sont parallèles de sorte que les électrons de conduction s de spin $\uparrow$ sont faiblement diffusés alors que les électrons minoritaires le sont fortement car des mécanismes de diffusion entre des électrons des bandes s et d sont alors possibles. Le canal des électrons $\uparrow$ conduit donc l'essentiel du courant. La résistance du système parallèle est alors :

$$\rho_{\mathrm{P}} = \frac{\rho_{\uparrow} \cdot \rho_{\downarrow}}{\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow}}, \tag{VI.3}$$

où $\rho_{\uparrow}$ et $\rho_{\downarrow}$ sont les résistivités des canaux des électrons $\uparrow$ et $\downarrow$, respectivement. Inversement lorsque les couches magnétiques sont antiparallèles entre elles, les deux orientations de spin sont successivement minoritaires et majoritaires dans les couches magnétiques de sorte que la résistance totale du système est :

$$\rho_{\mathrm{AP}} = \frac{\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow}}{4} \tag{VI.4}$$

L'amplitude GMR est alors donnée par $(\rho_{\mathrm{AP}} - \rho_{\mathrm{P}})/\rho_{\mathrm{P}} = (1-\alpha)^2/4\alpha$, où $\alpha = \rho_{\uparrow}/\rho_{\downarrow}$

Historiquement, la plupart des études a été menée dans la géométrie *current-in-plane* (CIP) où le courant électrique circule parallèlement aux multi-couches. Les développements des techniques de fabrication ont permis des études à géométrie *current-perpendicular-to-plane* (CPP) où le courant est perpendiculaire aux différentes interfaces.

▷ **Magnéto-Résistance Tunnel, TMR**

L'asymétrie des densités d'états au niveau de Fermi entre les électrons de spin $\uparrow$ et de spin $\downarrow$ est à l'origine d'une dépendance en spin de l'effet tunnel entre deux couches ferromagnétiques. Jullière[117] a observé et interprété pour la première fois cette dépendance en spin de l'effet tunnel entre deux électrodes ferromagnétiques (Fe et Co) séparées par une barrière isolante de Ge oxydé. Une variation de 14 % à 4.2 K de la résistance entre les configurations où les deux couches sont parallèles et antiparallèles a été mise en évidence dans cette étude. Dans son interprétation du phénomène (connue maintenant sous le nom de *modèle de Jullière*), l'auteur suppose que l'effet tunnel conserve le spin en ne considérant que le mécanisme élastique à un électron. Les deux canaux de conduction correspondant aux deux orientations de spin sont de

fait indépendants et la conductance totale du système est la somme de ces deux contributions. Dans son modèle, Jullière établit que l'effet magnéto-résistif tunnel (TMR) à faible tension est relié aux densités d'états au niveau de Fermi des deux populations d'électrons selon la relation :

$$TMR = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2}, P_i = \frac{D_{i\uparrow} - D_{i\downarrow}}{D_{i\uparrow} + D_{i\downarrow}}, \tag{VI.5}$$

où $D_{i\uparrow}$ (respectivement $D_{i\downarrow}$) est la densité d'état au niveau de Fermi des électrons de spin $\uparrow$ (respectivement $\downarrow$) dans la couche ferromagnétique i.

Les développements suivant cette découverte ont essentiellement porté sur des jonctions tunnel à base d'alumine amorphe[118]. Différentes approches ont notamment été essayées pour améliorer la qualité de couches d'alumine ultra-minces[119]. Plus récemment, des études se sont intéressées aux demi-métaux dont la particularité est de présenter une polarisation complète au niveau de Fermi. Diverses jonctions tunnel magnétiques à base de CrO_2,Fe_3O_4, $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$, ... ont ainsi été étudiées[120]. Des TMR élevées ont été observées à basse température pour certaines de ces jonctions comme dans l'étude de Bowen *et coll.* où une TMR de 1800 % a été observée à 4.2 K[121]. Cependant pour la plupart de ces systèmes la TMR est nulle à température ambiante. Les derniers développements ont porté sur des jonctions à base de MgO polycristallines [122] ou encore monocristallines (001)[123, 124]. De fortes TMR ont ainsi pu être observées à température ambiante : ∼220 %, ∼150 % et ∼180 % respectivement. Des références complémentaires sur les jonctions magnétiques tunnel et la TMR peuvent être trouvées dans [120].

VI.B Signal physique mesuré et études préliminaires

VI.B.1 Plots de Fe(110), domaines de fermeture de Néel et signaux magnéto-résistifs

La figure VI.1 illustre le retournement des domaines de fermeture de Néel. la zone délimitée par l'ellipse noire voit son aimantation faire une rotation de 90 ° dans le plan de l'échantillon. Afin de détecter ce retournement, plusieurs approches sont envisageables *a priori*.

Comme nous l'avons vu dans la section précédente, les phénomènes de TMR et de GMR présentent des effets magnéto-résistifs élevés même à température ambiante. La difficulté d'une étude basée sur le phénomène de TMR

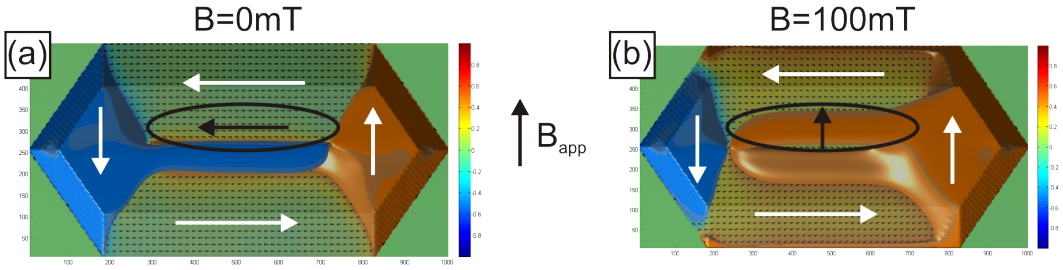

FIG. VI.1 – Simulations micromagnétiques obtenues sur un plot de $1000 \times 500 \times 100$ nm sous champ transverse. Seule la composante transverse de l'aimantation des régions où $|m_y| = 0.5$ est représentée de sorte que les domaines de fermeture de Néel puissent être visualisés. Les configurations (a) avant retournement (B=0 mT) et (b) après retournement (B=100 mT) sont représentées. Les flèches blanches soulignent l'orientation de l'aimantation planaire.

est liée à l'optimisation de la barrière tunnel. En effet la détermination des conditions de dépôt permettant l'obtention d'une barrière tunnel épitaxiale à base de MgO, par exemple, est un travail de longue haleine. Pour des raisons de contraintes de temps, cette approche n'a pas été retenue. Bien que la réalisation d'une structure de type *vanne de spin* semble *a priori* plus simple du point de vue de l'optimisation des conditions de dépôt, le risque d'un effet perturbatif de la couche de référence sur le plot (et inversement) subsiste comme dans le cas de la jonction tunnel. Pour cette raison, nous nous sommes donc orientés vers un dispositif où le signal que l'on cherche à mesurer est de type magnéto-résistance anisotrope (AMR, *Anisotropic Magneto-Resistance*).

D'après la figure VI.1, une résistance différente sera en effet détectée par un courant électrique à composante planaire transverse avant et après le retournement. Une mesure de type 4 pointes de type CIP avec les arrivées de courant et de tension transverses au plot sondé semble *a priori* la mieux adaptée. Cependant cette géométrie de dispositif apparaît complexe à réaliser du fait notamment de la précision et de la finesse requises pour fabriquer par lithographie électronique deux arrivées de courant/tension transverses de part et d'autre du plot. De fait nous avons opté pour une géométrie de type CPP. Néanmoins le caractère tridimensionnel des plots et la géométrie verticale de notre dispositif de contactage pourraient donner une composante verticale au courant dans le plot pour laquelle aucun signal AMR n'est attendu. Ceci motive les simulations électrocinétiques présentées ci-dessous.

VI.B.2 Étude électrocinétique préliminaire

Afin de vérifier que le courant électrique circulant dans un plot présente une composante planaire transverse non-négligeable, une étude préliminaire de calculs électrocinétiques a été réalisée en collaboration avec Jean-Christophe Toussaint à l'aide du logiciel commercial *COMSOL Multiphysics*. Les résultats de ces calculs basés sur l'intégration de l'équation de Poisson par la méthode des éléments finis sont présentés sur la figure VI.2.

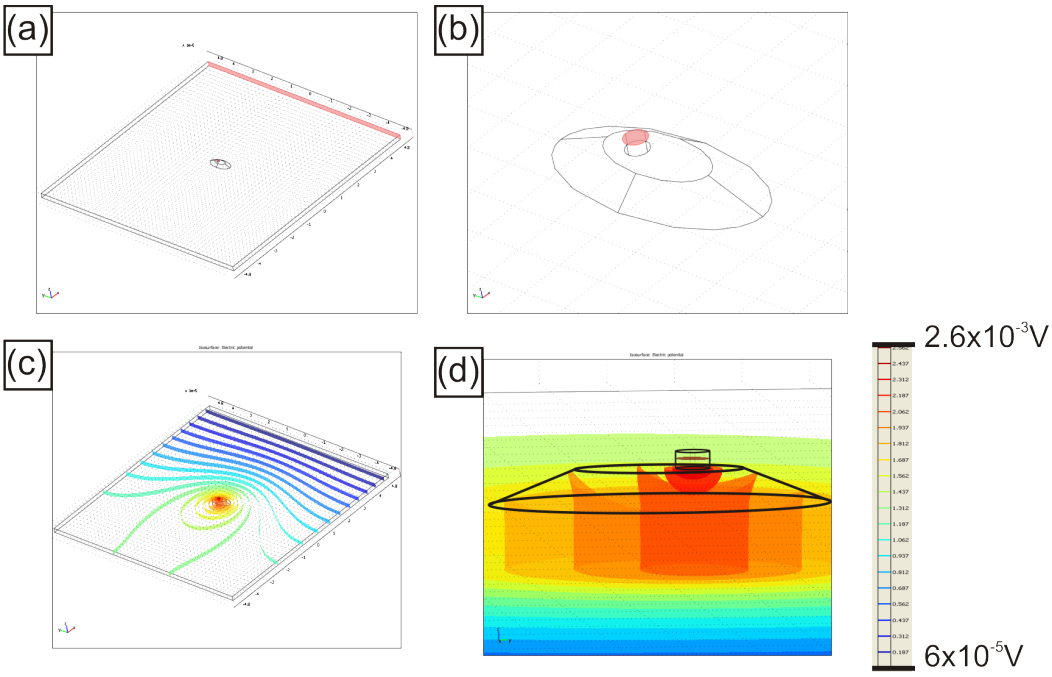

FIG. VI.2 – Simulation électrocinétique du transport dans un plot de Fe(110). (a, b) Présentation de la géométrie du modèle : le plot de Fe(110) est modélisé par un demi-ellipsoïde tronqué de dimensions $1000 \times 500 \times 120$ nm placé sur une plaque de Mo de dimensions $10 \times 10 \times 0.02\,\mu$m. Le potentiel de la surface grisée de la plaque de Mo sur (a) est fixé à la masse. Sur (b) un courant vertical de valeur 1 mA traverse le sommet du cylindre d'Au (diamètre 100 nm et hauteur 50 nm) par la surface rosée. (c, d) Résultats de la simulation : lignes équipotentielles. L'échelle des tensions représente la chute de potentielle entre le sommet du plot d'Au et la dernière équipotentielle non nulle avant la masse.

Le plot de Fe(110) est modélisé par un demi-ellipsoïde tronqué de dimensions $1000 \times 500 \times 120$ nm placé sur une plaque de Mo de dimensions $10 \times 10 \times 0.02\,\mu$m. Un trou à graver dans la couche d'isolant est modélisé par un plot cylindrique d'Au de diamètre 100 nm et de hauteur 50 nm. Les

conditions aux limites ont été choisies pour correspondre au mieux aux expériences décrites dans la section VI.C. Plus précisément, un courant de 1 mA traverse le sommet du cylindre d'Au (soit une densité de courant vertical de valeur 1.3×10^{11} A.m^{-2}) et le potentiel de la surface de la plaque de Mo grisée sur la figure VI.2 (a) est fixé à la masse. A part ces deux éléments, toutes les autres surfaces sont en contact avec un isolant de sorte qu'aucun courant électrique ne puisse passer au travers de ces surfaces. La résistivité des matériaux massifs à température ambiante a été utilisée pour les différents éléments du modèle : $\rho_{\mathrm{Mo}} = 5.2\,\mu\Omega$.cm, $\rho_{\mathrm{Au}} = 2.3\,\mu\Omega$.cm, $\rho_{\mathrm{Fe}} = 9.7\,\mu\Omega$.cm. Dans la suite, ces mêmes résistivités à température ambiante sont utilisées pour les estimations de résistance basées sur la géométrie du dispositif.

Les simulations électrocinétiques mettent en évidence, dans la plaque de Mo, une chute de potentiel de l'ordre de 0.5 mV entre le bas du plot et la surface de la plaque de Mo du côté de la mesure de potentiel soit une résistance de 0.5 Ω. Aussi, dans une mesure de type 4 pointes, une contribution résistive provenant du Mo s'ajoute également à la résistance de l'échantillon. D'une manière générale, la résistance de la bande de Mo dont la géométrie est celle présentée sur la figure V.4 (longueur de la bande centrale : 50 μm, longueur des évasements : 75 μm et largeur de la zone centrale : 10 μm) et pour une épaisseur de 20 nm est estimée à 25 Ω.

Par ailleurs, il ressort de cette étude que la chute de potentiel dans le cylindre d'Au est de l'ordre de 0.3 V, soit une résistance de 0.3 Ω s'ajoutant à la résistance du plot de Fe. Cette valeur est proche de celle obtenue par un calcul purement géométrique où la résistance d'un cylindre d'Au de 100 nm de diamètre et de 50 nm de hauteur dans la couche d'isolant est de 0.2 Ω. De même que pour la bande de Mo, on s'attend, dans le cas d'une mesure de type 4 pointe, à observer une différence de potentiel entre le sommet du cylindre d'Au et l'extrémité de la plaque d'Au où la mesure de la tension est réalisée. Cet effet n'a pas été quantifié dans le présent modèle mais la contribution attendue reste probablement inférieure à celle prédite par les simulations dans le cas de la bande de Mo. Par ailleurs, un calcul basé sur la géométrie définie sur la figure V.4, évalue la résistance de la bande d'Au avec une zone centrale de 15 μm de largeur et une épaisseur de 90 nm à 1.9 Ω.

Dans le plot de Fe, deux configurations limites sont à envisager, d'un point de vue géométrique, pour le courant traversant le plot de Fe : (i) le courant est principalement vertical et conserve la géométrie du trou d'Au. Dans ce cas une résistance de l'ordre de 1.5 Ω est attendue. (ii) le courant circule verticalement dans l'ensemble du plot modélisé par un parallélépipède de $1000 \times 500 \times 120$ nm auquel cas une résistance de 0.02 Ω est attendue. Les simulations électrocinétiques mettent en évidence qu'une différence de potentiel de 0.2 V (soit une résistance de 0.2 Ω) entre le sommet de plot

et la première équipotentielle pénétrant le Mo est observée. Les équipotentielles à proximité immédiate du plot d'Au sont globalement hémisphériques ce qui permet de conclure que la contribution planaire du courant est non négligeable dans cette zone du plot. Les simulations électrocinétiques nous permettent de conclure que la distribution réelle des lignes de courant est proche de la configuration (i) de sorte qu'une résistance inférieure à 1.5 Ω est attendue.

En résumé, dans le cas d'une mesure 2 pointes, une résistance de ≃13.8 Ω ($25/2 + 1.9/2 + 0.3$) est ajoutée en série avec le plot de Fe (R≃ 0.2 Ω). Dans le cas d'une mesure 4 pointes, seules les contributions supplémentaires liées à la différence de potentiel entre les surfaces de mesures de tension et le sommet/bas du plot (≃0.5 Ω) et au cylindre d'Au (≃0.3 Ω) sont à ajouter à la résistance du plot de Fe de sorte qu'une résistance totale de l'ordre ≃1.5 Ω est attendue. Notons que l'intérêt d'une mesure de type 4 pointes apparaît alors clairement.

VI.B.3 Évaluation du signal de mesure

Dans la référence [125], les auteurs étudient le signal AMR d'une couche de Fe épitaxiale déposée sur un monocristal de GaAs et sa dépendance en fonction de l'épaisseur de la couche. Pour un courant appliqué selon la direction [110] (*c.à.d.* la direction transverse aux plots), un signal AMR de l'ordre de 0.3 % à température ambiante est observé. Dans le cas du retournement des domaines de fermeture de Néel, nous pouvons estimer, d'après la figure VI.1, qu'au mieux 25 % du volume du plot se retourne. Si l'on ajoute le fait que seule une fraction du courant injecté possède une composante transerve, la variation relative de résistance attendue décroît en dessous de 10^{-4}. Il est à noter que dans cette estimation, nous nous plaçons dans un régime purement diffusif où l'effet des interfaces n'est pas pris en compte. Par ailleurs, les simulations micromagnétiques prédisent une variation relative de la composante transerse moyenne de l'ordre de 4 % lors du retournement des domaines de fermeture de Néel. En tenant compte du signal AMR du Fe, on retrouve une variation relative attendue de résistance de l'ordre de 10^{-4}. Cette faible variation relative de résistance constitue, dans le cas d'échantillons de faible impédance, une forte contrainte pour la mesure.

VI.C Montage expérimental et mesure

Le dispositif expérimental utilisé pour cette étude est schématisé sur la figure VI.3. L'élément central de ce dispositif est un cryostat à He liquide.

Un système de pompage primaire sur l'anti-cryostat permet d'atteindre une température de l'ordre de 2.2 K. La température est mesurée au niveau de l'échangeur thermique de l'anti-cryostat par l'intermédiaire de deux sondes C et Pt. Deux sondes sont également disponibles sur la canne de transport. Néanmoins, par manque de temps, la calibration de ces sondes et l'automatisation de la mesure de température du porte-échantillon n'ont pu être réalisées. En outre ce cryostat est équipé de bobines de Helmholtz supraconductrices constituées d'enroulements de fils de NbTi. Ces bobines ont été dimensionnées pour délivrer un champ horizontal maximum de 7 T. Un système de chauffage contrôlable permet d'injecter la puissance électrique dans les bobines supraconductrices puis le cas échéant de basculer en mode persistant dans lequel le champ généré est constant ce qui améliore la stabilité et limite la consommation du dispositif en He. La valeur du champ généré est déterminée à partir de la mesure de la tension aux bornes d'une résistance (R_{shunt}). Cette tension, mesurée à l'aide d'un multimètre (*Keithley 2000*), est proportionnelle (hors mode persistant) au courant circulant dans les bobines qui est à son tour proportionnel au champ généré par l'intermédiaire d'une constante de calibration propre aux bobines. La puissance électrique est fournie aux bobines par l'intermédiaire d'une alimentation bipolaire 10 V/100 A (*CS4-10V, Cryomagnetics, Inc.*). Cette alimentation est entièrement contrôlable à l'aide d'un port GPIB.

Avant mon arrivée en thèse, une canne de transport permettant de faire passer l'échantillon de la position horizontale à verticale a été conçue et réalisée par Didier Dufeu du pôle magnétométrie du département Nano. Cette fonctionnalité n'as pas été utilisée pour cette étude puisque dans notre cas seul un champ planaire était requis. A l'aide de cette canne 16 contacts sont possibles. Sur le boîtier extérieur (partie supérieure de la canne), les contacts se font par l'intermédiaire de connecteurs BNC non isolés. Dans la partie inférieure de la canne, les contacts avec le porte-échantillon sont assurés par l'intermédiaire de pointes métalliques montées sur ressort.

Afin de pouvoir contacter les motifs, un porte-échantillon adapté à notre canne de transport et aux dimensions de l'échantillon a du être conçu. La réalisation de ces portes-échantillons, basée sur les techniques habituelles de fabrication de circuits imprimés, a ensuite été confiée à Jean-Sébastien Pelle du pôle électronique du département. Une fois l'échantillon fixé sur son support à l'aide de laque d'Ag, le contactage des différents motifs a été réalisé par microsoudure. L'instrument disponible à la plateforme Nanofab permet de réaliser des microsoudures manuellement avec des fils d'Al ou Au. Dans notre cas des fils d'Al ont été utilisés. Le schéma typique de microsoudure et les notations utilisées sont représentés sur la figure VI.4.

La résistance aux bornes de l'échantillon est déterminée à partir de la

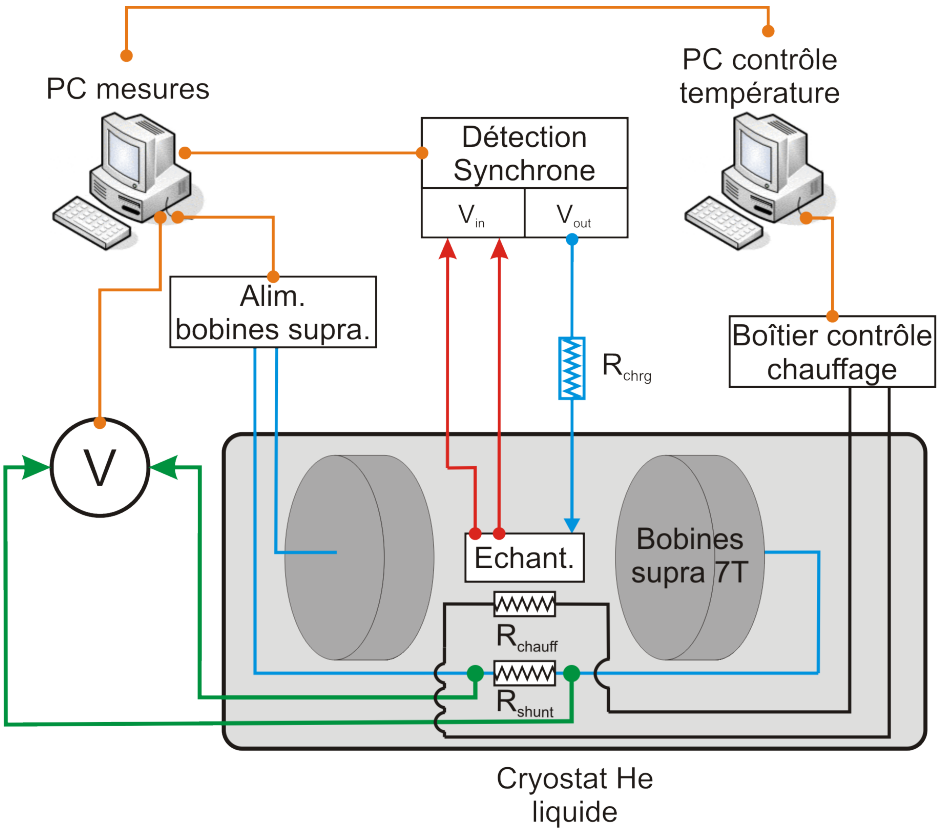

FIG. VI.3 – Schéma du montage expérimental.

tension $V^+ - V^-$ connaissant le courant I^+ injecté dans le circuit. Cette mesure de tension est réalisée en mode alternatif à l'aide d'une détection synchrone. L'instrument utilisé (*Model SR830, Stanford Research Systems*) peut être considéré comme une source de tension alternative (V_{out}) couplée à un voltmètre déterminant la valeur et le déphasage de la tension mesurée (V_{in}) par rapport à V_{out} prise comme référence. Afin de travailler à courant constant I^+, une résistance de charge (R_{chrg}) grande devant la résistance de l'échantillon est placée en série avec ce dernier. Les contraintes sur la détermination de la valeur de R_{chrg} sont d'une part la puissance électrique injectée dans le dispositif et la faible variation relative de résistance attendue (10^{-4}). Dans notre cas une résistance de charge de 1 kΩ a été utilisée. Pour une tension typique délivrée par la détection synchrone de 1 V, le courant fournit au dispositif est de l'ordre de ≃1 mA soit une puissance dissipée par la résistance 4 pointes du dispositif (1-1.5 Ω) de ≃1 μW. La densité de courant injectée dans le plot d'Au (1.3×10^{11} A.m^{-2}) reste significativement inférieure aux densités utilisées pour l'électromigration dans des systèmes à base d'Au

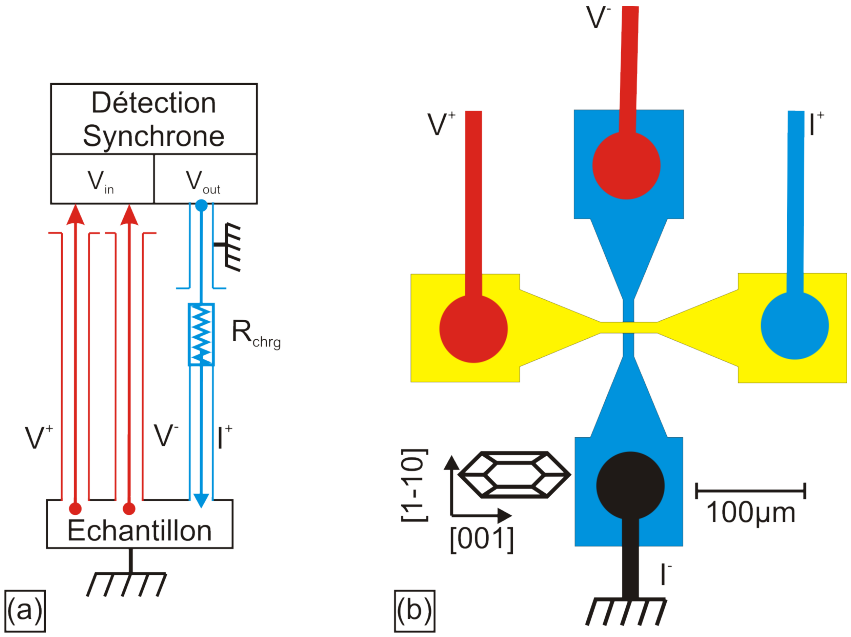

FIG. VI.4 – Illustration du contactage d'un motif et définition des notations. (a) Câbles coaxiaux et mise à la masse. (b) Microsoudure d'un motif.

($\sim 5\times10^{12}$ A.m^{-2})[126] de sorte que les risques de détérioration du plot d'Au sont écartés. D'autre part pour un courant de $\simeq$1 mA, la tension aux bornes de la résistance 4 pointes est de $\simeq$1 mV. Les variations magnéto-résistives de la tension échantillon attendues seront donc dans la gamme de qqs 10 nV ce qui est clairement mesurable avec cette détection synchrone.

La raison principale de l'emploi de signaux alternatifs dans cette étude est la limitation de toutes sources de bruits. En effet, de faibles résistances d'échantillons ($\simeq$1 Ω) et de faibles variations relatives de résistance ($\lesssim 10^{-4}$) sont attendues de sorte que les techniques habituelles de mesures *bas bruit* sont requises. En particulier, afin d'améliorer le rapport signal sur bruit, tous les câbles transportant un signal alternatif étaient des câbles coaxiaux avec leur gaine à la masse dont la référence est choisie comme étant le cryostat. Par exemple, la gaine du connecteur BNC de sortie de la détection synchrone étant relié à la masse du réseau de distribution, un connecteur BNC isolé a été utilisé au niveau du boîtier comportant R_{chrg} afin de ne pas créer de boucles de masse sur le circuit transportant les signaux de mesure, pouvant générer du bruit par induction à partir des signaux électromagnétiques. Par ailleurs une option de la détection synchrone permet d'isoler les entrées de tensions V_{in} de la masse du réseau de distribution en utilisant des résistances de 1 kΩ. Un seul point du circuit transportant les signaux de mesure est

fixé à la masse : l'électrode I^- du motif sondé, le retour du courant vers la détection synchrone est donc assuré par la masse. Enfin dans la mesure du possible, les câbles BNC étaient torsadés deux à deux afin, là encore, de ne pas créer de spires qui facilitent les effets d'induction des rayonnements électromagnétiques.

Afin de mettre en évidence par comparaison la contribution du signal AMR induit par le retournement des domaines de fermeture de Néel dans les mesures magnéto-résistives nous avons réalisé l'ensemble de nos mesures pour deux orientations de champ appliqué. Pour un champ appliqué longitudinal (*c.à.d.* selon [001]), que nous appellerons par la suite $\theta = 0\,°$ (θ étant mesuré par rapport à [001]), aucune contribution AMR liée aux retournement des domaines de fermeture de Néel n'est attendue. Inversement une contribution est attendue pour un champ appliqué transverse (*c.à.d.* selon $[1\bar{1}0]$), que nous appellerons dans la suite de ce manuscrit $\theta = 90\,°$.

Un PC de mesure assure le dialogue par bus GPIB avec le multimètre permettant la mesure de champ, l'alimentation des bobines supraconductrices et la détection synchrone. Il centralise de fait l'ensemble des informations provenant des autres instruments ou de l'utilisateur. Un second PC est dédié la régulation de la température de l'anti-cryostat par l'intermédiaire d'un boîtier de contrôle du système de chauffage (R_{chauff}). La liaison entre ces deux instruments est assurée grâce à un connecteur de type Jaeger. Un protocole de dialogue de type série entre les deux PC a été implémenté avant mon arrivée.

Au cours de ma thèse, j'ai réalisé l'automatisation du banc de mesure à l'aide du logiciel de programmation graphique *Labview*. En début de procédure, l'utilisateur saisit les valeurs consignes telles que température de travail, amplitude et vitesse du balayage en champ, fréquence et amplitude du signal généré par la détection synchrone. Une fréquence typique de 1 kHz a été utilisée après avoir vérifié que le déphasage des dispositifs était négligeable à cette fréquence. Une fois la température de consigne atteinte et stabilisée, le balayage en champ est déclenché et les points de mesure sont réalisés à intervalles de temps réguliers. Le temps pour un balayage aller/retour entre ± 1.2 T, qui est la gamme de champ utilisé pour nos mesures, est de 20 min. Une option de la détection synchrone permettant d'augmenter le nombre de décimales significatives a été utilisée. Cette option soustrait la valeur de la résistance à champ nul et détermine les points expérimentaux par rapport à cette valeur. Lors de la programmation de la procédure, les mesures du champ et de la tension échantillon ont été synchronisées. Néanmoins les temps d'intégration du multimètre (200 ms) et de la détection synchrone (1 s) ne sont pas les mêmes de sorte que des décalages temporels apparaissent. Du fait des faibles vitesses de balayage en champ, cet effet reste néanmoins négligeable.

VI.D Résultats expérimentaux

Au cours de cette étude, des mesures magnéto-résistives de type 4 pointes ont été réalisées, pour différentes températures (∼2.5 K - ∼270 K) et différentes directions de champ appliquées ($\theta = 0\,°$ et $\theta = 90\,°$), sur des motifs de l'échantillon $\mathcal{C}$ dont le protocole de fabrication a été détaillé dans le chapitre V. Dans le but de découpler les différentes contributions dans le signal obtenu sur un plot de Fe(110), les arrivées de courant/tension ont été elles-mêmes caractérisées par des mesures de magnéto-transport de type 4 pointes. Après avoir analysé ces mesures, nous détaillerons les résultats obtenus sur des plots de Fe(110).

VI.D.1 Caractérisation des arrivées de courant/tension

▷ **Électrodes supérieures, Au**

La figure VI.5 présente les résultats obtenus pour les arrivées de courant/tension d'Au. Dans les études préliminaires détaillées dans la section VI.B.2, nous avions estimé la résistance de la bande d'Au à 1.9 Ω en considérant la résistance de l'Au massif à température ambiante et la géométrie de la bande. Les mesures réalisées proches de la température ambiante, donnent une résistance de la bande de 2.2 Ω soit une valeur très proche de la valeur attendue. Le comportement linéaire de la résistance en fonction de la température [Fig. VI.5 (a)] au-dessus de 30 K confirme le caractère métallique de la bande d'Au.

Néanmoins, la faible variation de résistance de la couche d'Au, dont l'épaisseur est significative (90 nm), entre le régime haute et basse température laisse penser que la couche est polycristalline et que son comportement est lié à la taille des grains.

Dans toutes les courbes mesurées, les caractéristiques d'une magnéto-résistance de Lorentz sont observées (comportement en B^2 à champ faible). Dans le régime basses températures (< 30 K), les courbes mesurées pour un champ appliqué à 0 ° (champ appliqué parallèlement à la bande d'Au) présentent une magnéto-résistance négative alors que pour les mesures obtenues pour un champ appliqué perpendiculairement à la bande ($\theta = 90\,°$) la magnéto-résistance est positive. Au-dessus de 30 K toutes les courbes montrent une magnéto-résistance positive quelque soit la direction d'application du champ ($\theta = 90\,°$ et $\theta = 0\,°$). On observe donc une inversion du signe de la magnéto-résistance de la bande d'Au entre 10 K et 30 K et une magnéto-résistance anisotrope à basse température.

▷ **Électrodes inférieures, Mo**

Les mesures obtenues sur la bande inférieure de Mo sont présentées sur la

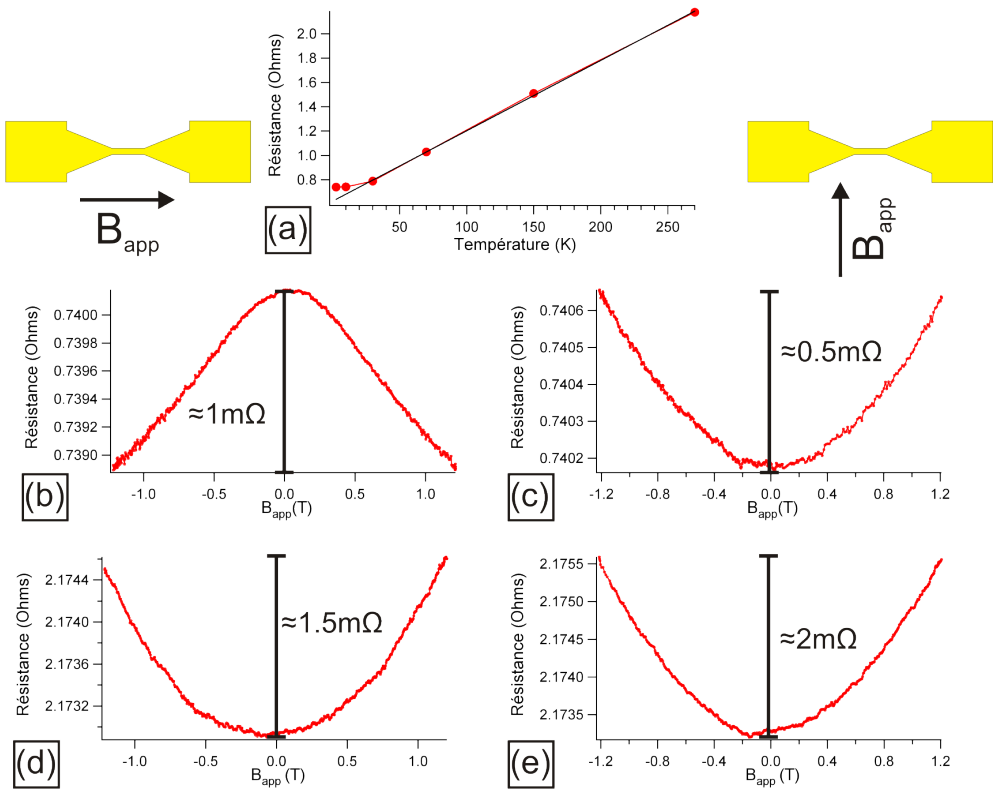

FIG. VI.5 – Mesures magnéto-résistives réalisées sur les électrodes d'Au. (a) Résistance moyenne à champ nul en fonction de la température. De par leur caractère représentatif, seules les courbes obtenues pour le températures de 2.7 K et 270 K sont présentées. Courbes magnéto-résistives à (b, c) 2.7 K, (d, e) 270 K pour (b, d) $\theta = 0\,°$ (champ appliqué parallèlement à la bande d'Au), (c, e) $\theta = 90\,°$ (champ appliqué perpendiculairement à la bande d'Au).

figure VI.6. Les études préliminaires détaillées dans la section VI.B.2, nous avaient permis d'estimer une résistance de 25 Ω pour les arrivées de courant/tension de Mo. Les mesures faites proches de la température ambiante [Fig. VI.6(a)] aboutissent à une résistance de 9.0 Ω ce qui est significativement inférieur à nos précédentes estimations. L'origine de cette différence vient certainement du fait que la couche de Mo formant les arrivées de courant/tension inférieures est épitaxiale et ceci malgré l'épaisseur modérée de la couche qui pourrait induire des résistances d'interface. Une décroissance linéaire avec la température confirme le caractère métallique de la couche. La qualité de la couche se traduit également par la forte variation de résistance en fonction de la température. Une variation d'un facteur 25 est observé pour la couche de Mo alors qu'elle n'était que de d'environ 3 pour la couche d'Au.

A basses températures, la magnéto-résistance mesurée sur les bandes de Mo est, comme dans le cas des arrivées de courant/tension d'Au, de type Lorentz. Néanmoins ce comportement s'atténue fortement avec la température pour quasiment disparaître à proximité de la température ambiante. A 270 K, la magnéto-résistance de la bande de Mo est en effet quasiment nulle.

Comme dans le cas de la bande d'Au, une inversion du signe de la magnéto-résistance est observée pour une direction de champ appliqué parallèle à la structure. Dans le cas de la bande de Mo, une magnéto-résistance négative est mesurée à 150 K alors qu'elle est positive pour toutes les autres mesures.

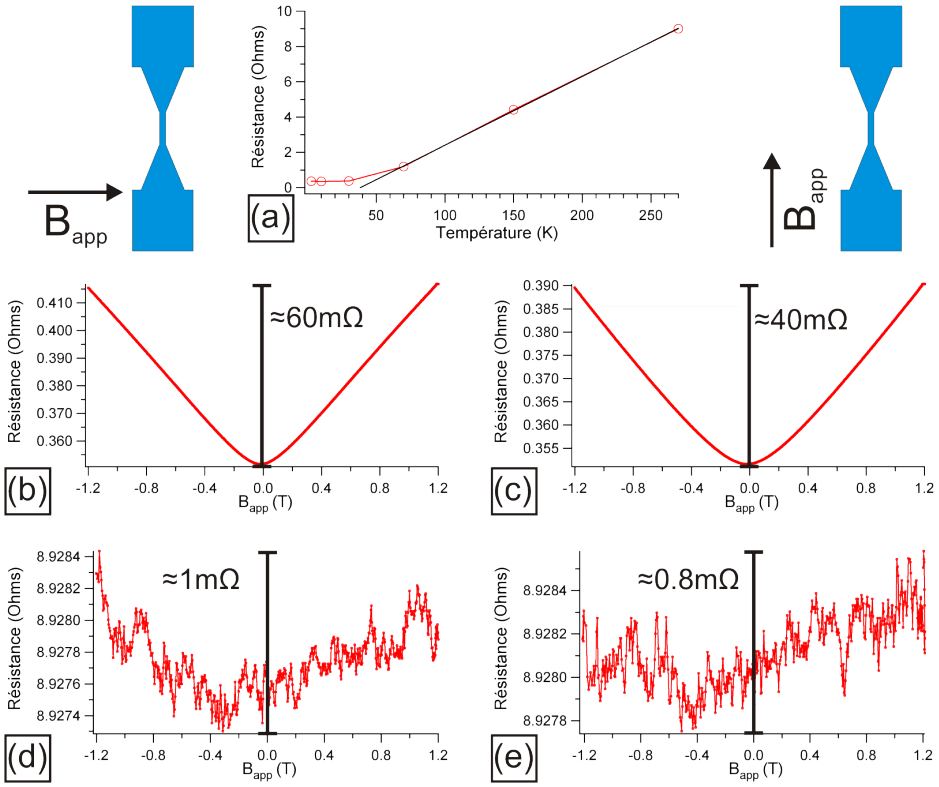

FIG. VI.6 – Mesures magnéto-résistives réalisées sur les électrodes de Mo. (a) Résistance moyenne à champ nul en fonction de la température. De par leur caractère réprésentatif, seules les courbes obtenues pour le températures de 2.7 K et 270 K sont présentées. Courbes magnéto-résistives à (b, c) 2.7 K, (d, e) 270 K pour (b, d) $\theta = 0\,^\circ$ (champ appliqué perpendiculairement à la bande de Mo), (c, e) $\theta = 90\,^\circ$ (champ appliqué parallèlement à la bande de Mo).

VI.D.2 Magnéto-transport dans des nanostructures individuelles

Les mesures de magnéto-transport réalisées sur un même plot de Fe(110) avec un trou dans la couche d'isolant initialement prévu à 100 nm de diamètre sont présentées sur la figure VI.7.

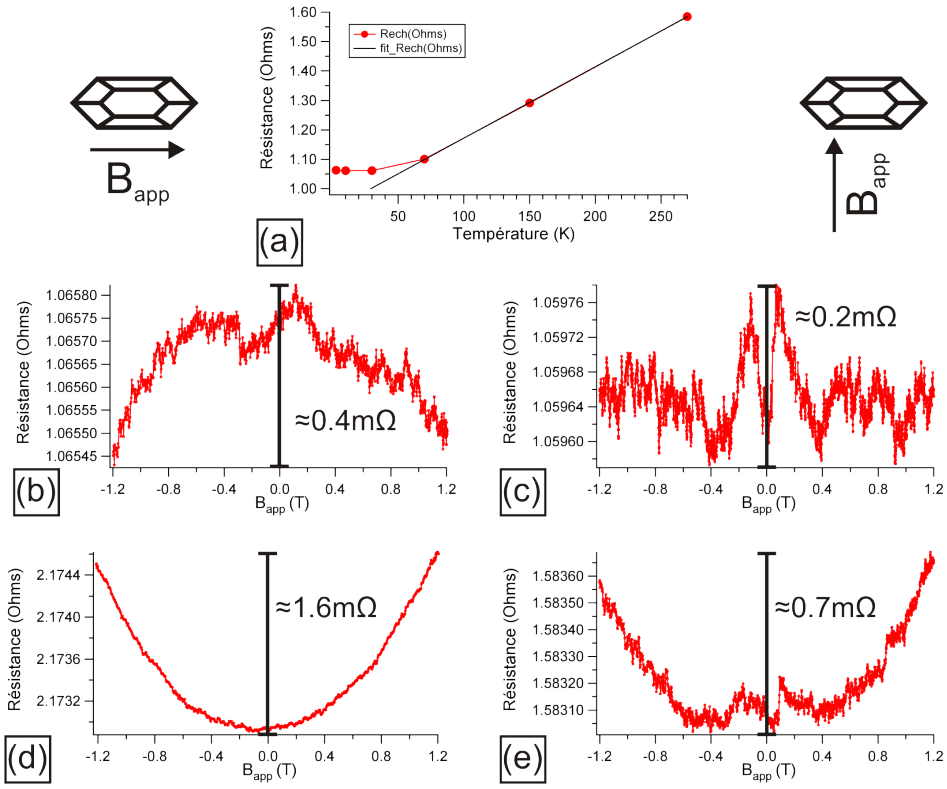

FIG. VI.7 – Mesures magnéto-résistives réalisées sur un même plot de Fe(110). (a) Résistance moyenne à champ nul en fonction de la température. De par leur caractère réprésentatif, seules les courbes obtenues pour le températures de 2.7 K et 270 K sont présentées. Courbes magnéto-résistives à (b, c) 2.7 K, (d, e) 270 K pour (b, d) $\theta = 0°$ (champ appliqué perpendiculairement à la bande de Mo), (c, e) $\theta = 90°$ (champ appliqué parallèlement à la bande de Mo).

Pour une température proche de la température ambiante, la résistance mesurée du dispositif est de $\simeq 1.6\,\Omega$ alors que d'après nos calculs préliminaires nous attendions une résistance de l'ordre de $\simeq 1.5\,\Omega$ ce qui est en très bon accord. La décroissance linéaire de la résistance avec la température confirme le caractère métallique du dispositif. Néanmoins cette décroissance est signifi-

cativement plus faible que celle observée pour les arrivées de courant/tension ce qui laisse penser que la résistance du dispositif n'est pas dominée par les électrodes mais par le trou d'Au dans la couche d'isolant et le plot de Fe.

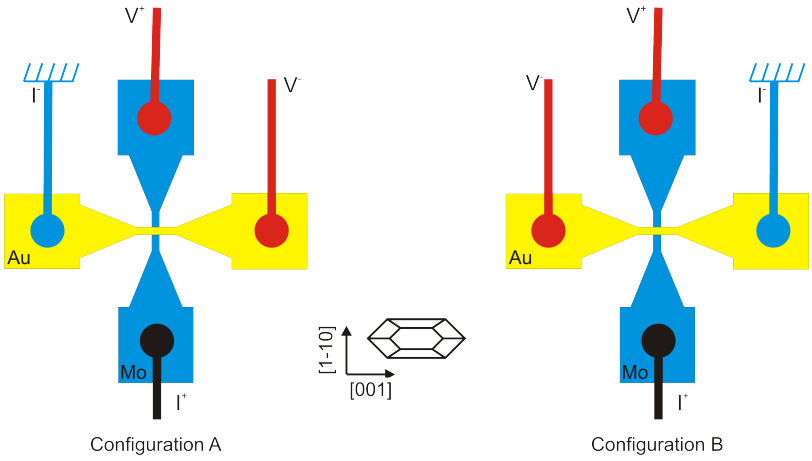

FIG. VI.8 – Différentes configuration de contactage des plots de Fe(110). (a) Configuration A. (b) Configuration B.

Au cours de nos mesures, nous nous sommes aperçus que les courbes de magnéto-résistances dépendent, de manière contre-intuitive, de la configuration de contactage des plots. En particulier, bien que les deux configurations présentées dans la figure VI.8 soient obtenues par simple permutation des contacts sur la bande d'Au (configurations *a priori* identiques du point de vue du transport), celles-ci donnent, dans la plupart de nos mesures, des réponses différentes comme l'illustre la figure VI.9. Notons néanmoins que, pour toutes les mesures réalisées, les résistances à champ nul dans les deux configurations étaient très proches (différence relative inférieure à 10^{-3}).

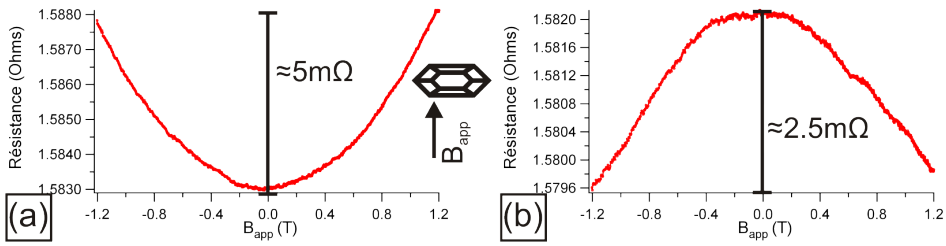

FIG. VI.9 – Réponse magnéto-résistive d'un plot de Fe(110) à 270 K et $\theta = 0\,°$ (champ appliqué dans la direction longitudinale des plots). (a) Configuration A. (b) Configuration B.

Un autre problème observé lors de nos mesures sur un plot de Fe(110) est

la reproductibilité des comportements à fort champ (*c.à.d.* > 500 mT) comme l'illustre la figure VI.10 où les courbes sont obtenues dans des conditions *a priori* identiques.

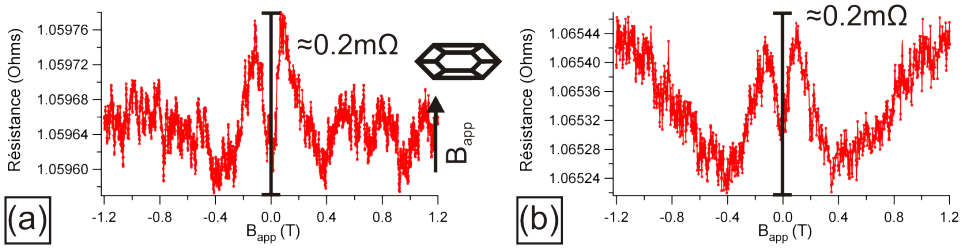

FIG. VI.10 – Réponses magnéto-résistives différentes d'un plot de Fe(110) obtenues pour des conditions *a priori* identiques [2.7 K et $\theta = 90\,°$ (champ appliqué dans la direction transverse des plots)].

Malgré ces questions ouvertes, nous avons observé des pics dans la résistance des échantillons [Fig. VI.7 (c, e)]. Ces variations du signal magnéto-résistif, symétriques en champ, sont constituées d'une augmentation de la résistance du dispositif [$\gtrsim 10^{-4}$ sur la figure Fig. VI.7 (c)] jusqu'à un maximum obtenu pour des valeurs de champ de l'ordre de 150-200 mT puis d'une diminution [$1-2\times10^{-4}$ sur la figure Fig. VI.7 (c)] de la résistance jusqu'à un minimum pour un champ appliqué de typiquement 400 mT. Ces variations de la réponse magnéto-résistive ont été mesurées uniquement lorsque le champ magnétique était appliqué de manière transverse aux plots de sorte qu'il est tentant d'associer ces variations de résistance aux processus d'aimantation des plots.

Par comparaison avec la figure I.13, il ressort que la valeur de champ appliqué pour laquelle un minimum de la réponse magnéto-résistive est observé est similaire au champ de saturation transverse des plots de Fe(110) déterminer par magnétométrie VSM. Ceci nous conforte donc dans l'idée qu'une part significative du signal mesuré en géométrie transverse semble provenir du plot de Fe. De fait, il est alors envisageable d'associer l'augmentation du signal magnéto-résistif observé dans la gamme de champ appliqué [0 mT ; 150-200 mT] au retournement des domaines de fermeture de Néel. Néanmoins les courbes obtenues pour un aller/retour en champ ne permettent pas de conclure quant à l'hystérésis associée au phénomène de retournement des domaines de fermeture de Néel (Fig. VI.11).

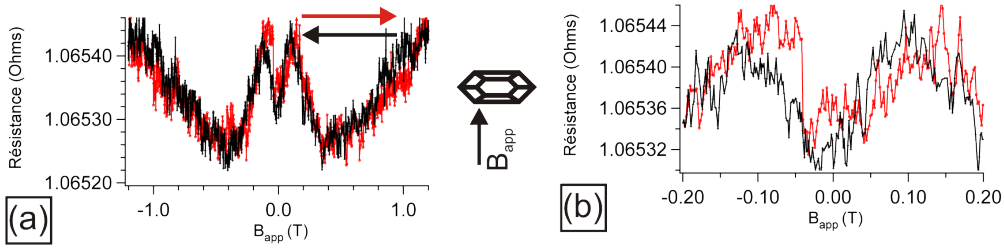

FIG. VI.11 – (a) Réponse magnéto-résistive d'un plot de Fe(110) obtenues à 2.7 K et $\theta = 90\,°$ (champ appliqué dans la direction transverse des plots) pour un balayage aller/retour du champ appliqué. La figure (b) correspond à un zoom des courbes de la figure (a) sur la gamme de champ appliqué [-0.2 T ; 0.2 T].

VI.D.3 Bilan des problèmes rencontrés, interprétations et solutions envisageables

Les résultats développés précédemment, nous ont permis de conclure que les valeurs des résistances mesurées étaient en bon accord avec les calculs électrocinétiques et géométriques. D'autre part la dépendance en température de la résistance des différents éléments du dispositif nous a confirmé le caractère métallique de notre dispositif. Cependant, du fait du caractère exploratoire de cette étude, de nombreuses questions ont été soulevées par les résultats obtenus. Dans cette section, nous allons dresser le bilan des questions ouvertes et tenter d'expliquer leur origine. Nous envisagerons ensuite les différentes possibilités qui pourraient nous permettre de répondre à ces interrogations.

VI.D.3.a Problèmes

▷ **Arrivées de courant/tension**

Pour les arrivées de courant/tension, nous avons observé une MR négative à basse température pour l'Au ($\leq$30 K) et une MR négative pour le Mo à 150 K lorsque le champ appliqué était parallèle à chaque structure alors que pour toutes les autres mesures la MR était positive. Le fait que cette inversion de MR ne soit observée que pour une mesure dans le cas du Mo laisse penser que l'origne de ce phénomène est extrinsèque aux matériaux. En effet, s'il s'agissait d'un phénomène intrinsèque correspondant au changement de régime entre un état dominé par les impuretés (basse température) et un autre dominé par les phonons, l'évolution attendue de la MR serait monotone ce qui n'est pas le cas pour l'arrivée de courant/tension de Mo. L'origine possible

des ces inversions de MR est l'influence de la MR des sondes de température. En effet, les sondes ressentant le champ magnétique appliqué, leur résistance change. Tout se passe alors, pour la régulation, comme si la température du système changeait de sorte que la régulation de température modifie la puissance de chauffage ce qui *in fine* modifie la température réelle du dispositif et donc sa résistance. Les vitesses de balayages étant suffisamment lentes pour que le cryostat soit constamment en équilibre, une composante artificielle de MR liée aux sondes est probable. En particulier, concernant les sondes C en couche mince utilisées dans le montage expérimental, des variations relatives de température mesurée de l'ordre de 10^{-3} dans un champ de 1 T sont annoncées par le constructeur (Rivac Technology bv). La variation relative de résistance de la sonde est probablement du même ordre de grandeur de sorte qu'une contribution significative par rapport au signal magnéto-résistif des échantillons est attendue.

▷ **Nanostructures de Fe(110)**

Deux problèmes majeurs ont été observés dans les courbes de magnéto-résistance mesurées sur le plot de Fe(110) : d'une part la dépendance de la réponse du système en fonction de la configuration de branchement (Fig. VI.9) et d'autre part la non-reproductibilité des comportements à fort champ (Fig. VI.10). Il est connu que, dans les jonctions de type CPP de faibles dimensions devant les arrivées de courant/tension, les équipotentielles entourent la jonction créant une chute de potentiel à proximité de cette dernière. Les lignes de courant s'engouffrant dans la jonction de toutes les directions, ce phénomène est appelé en anglais *current crowding*[127]. Du fait de la chute de potentiel à proximité de la jonction, une résistance supplémentaire due aux arrivées de courant est attendue. D'après Chen *et coll.*, la résistance supplémentaire en mesure 4 pointes pour chaque arrivée de courant/tension est $R_{\text{supp}} \simeq 0.1 \times \rho_{\text{arr}}/t_{\text{arr}} \times \ln(l_{\text{arr}}/r_{\text{junct}})$, où ρ_{arr}, t_{arr} et l_{arr} sont respectivement la résistivité, l'épaisseur et la largeur de l'arrivée de tension/courant considérée et r_{junct} est le rayon de la jonction. Dans notre cas la résistance totale s'ajoutant, selon Chen *et coll.*, à celle du plot de Fe(110) est de 1.4 Ω, en utilisant les résistivités des matériaux massifs à température ambiante. Ceci a par ailleurs été confirmé par nos simulations électrocinétiques avec un très bon accord. L'effet de *current crowding* augmentant artificiellement la résistance mesurée, il tend à diminuer la MR observée. En modifiant les propriétés de magnéto-résistance on pourrait s'attendre à ce que l'effet de *current crowding* soit responsable des anomalies observées sur les mesures de MR du plot de Fe. Cependant cet effet ne dépendant de la circulation du courant dans le dispositif, il ne peut expliquer les différentes réponses mesurées suivant les configurations de branchement du plot. De même l'effet de

current crowding ne peut expliquer les variations de comportement observées à fort champ. L'origine de ces deux phénomènes reste donc à élucider.

VI.D.3.b Améliorations

Différentes approches sont envisageables pour essayer d'améliorer les résultats obtenus. Tout d'abord concernant les simulations électrocinétiques, afin de prendre en compte la dépendance des propriétés de transport du Fe en fonction de l'orientation relative du courant et de l'aimantation, un tenseur de résistivité au lieu de la résistivité du massif utilisé dans nos premières simulations peut être implémenté. Ce tenseur ferait notamment intervenir les résistivités $\rho_{\parallel}$ et $\rho_{\perp}$ définies précédemment. Il semble en effet nécessaire de coupler les simulations micromagnétiques et électrocinétiques afin de comprendre dans le détail les variations des réponses magnéto-résistives mesurées.

Des développements sur le banc de mesure peuvent être considérés. En particulier, il serait intéressant de quantifier, en travaillant à puissance de chauffage constante, la magnéto-résistance des sondes de température afin de pouvoir, le cas échéant, en tenir compte. D'une manière générale, des mesures de magnéto-transport sur un plot de Fe(110) en travaillant à puissance de chauffage constante afin de s'affranchir des sondes de températures peuvent être facilement réalisées pour vérifier les changements éventuels. L'utilisation de sonde de températures capacitives présentant des effets magnéto-résistifs *a priori* plus faibles que les sondes habituelles de C ou Pt est également à considérer.

Dans l'éventualité où toutes les améliorations précédentes se trouvent inefficaces, des caractérisations sur des bandes de Mo et d'Au individuelles non superposées semblent nécessaires. De nouvelles approches sont également envisageables concernant l'échantillon. En particulier, il serait possible de réduire les contributions de Mo (estimées à $0.5\,\Omega$ par les simulations électrocinétiques) et Au dans la mesure de résistance 4 pointes (*current crowding*) en réalisant des constrictions dans le dispositif par FIB notamment. Cette approche développée par Gijs *et coll.*[128] dans le cas d'un dispositif de type CPP pour la mesure de faibles impédances permet en effet de contraindre les lignes de courant et de s'affranchir des arrivées de courant/tension. Afin d'augmenter le signal magnétorésistif, la mise au point d'un dispositif TMR constitue une approche prometteuse. Bien que constituant un travail conséquent, le développement d'une jonction magnétique tunnel épitaxiale Fe/MgO/Fe telle que celle développée dans la référence [106] dans le cas d'une surface (001) est à considérer. Des signaux magnéto-résistifs

de 125-160 % à température ambiante ont en effet été mesurés. Dans notre cas plusieurs changements majeurs modifieront probablement ces effets : le retournement de seulement une partie du plot de Fe de 90 °, la symmétrie des bandes électroniques dans la direction (110), le couplage éventuel entre l'électrode de référence et le plots de Fe. Enfin l'établissement d'une collaboration à long terme avec des séjours prolongés avec une équipe maîtrisant la technique de sp-STM avec application de champ planaire significatif (100-200 mT) et fonctionnement à basse température, est également envisageable.

Conclusion générale

L'objectif de cette thèse était la démonstration du contrôle des propriétés internes d'une paroi de Bloch asymétrique par application d'un champ magnétique. En particulier nous nous sommes intéressés au retournement par application d'un champ d'une composante interne de la paroi de Bloch asymétrique : les domaines de fermeture de Néel qui terminent la paroi au niveau des surfaces inférieures et supérieures d'une couche mince ou d'un plot plat. Un autre aspect de notre étude concerne le contrôle de la longueur de paroi et la transition entre les états présentant une longueur de paroi finie et un vortex, objet magnétique quasi-ponctuel. Les plots de Fe(110) auto-assemblés obtenus par épitaxie par dépôt laser pulsé sous ultra-vide constituent notre système modèle : monocristallins et présentant une surface supérieure plane à l'échelle atomique, ils laissent présager une minimisation des effets intrinsèques et une comparaison fiable avec les simulations micromagnétiques.

Le chapitre II détaille les résultats de simulations micromagnétiques réalisées en collaboration avec Jean-Christophe Toussaint. Ces simulations reposent sur l'intégrations par la méthode des différences finies de l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert. L'objectif de ces simulations était de prédire le comportement des domaines de fermeture de Néel sous un champ transverse (soit dans la même direction que l'aimantation des domaines de fermeture de Néel). En particulier une première étude sur des plots de longueur infinie (*c.à.d.* des bandes) nous a permis d'étudier la limite énergétique entre la paroi de Bloch asymétrique (où les deux domaines de fermeture de Néel sont antiparallèles) stable à champ nul et la paroi de Néel asymétrique (où les deux domaines de fermeture de Néel sont parallèles) favorable sous champ. Pour une hauteur de plot croissante, le champ de transition décroît. Ce comportement est *a priori* contradictoire avec les résultats obtenus par Hubert[5] dans des couches minces. En fait les résultats que nous avons obtenus correspondent à la limite des hautes épaisseurs alors que les simulations de Hubert décrivent le régime des faibles épaisseurs. Entre les deux régimes, une courbe présentant un maximum ou un régime « plateau » est attendue.

Il apparaît néanmoins nécessaire de continuer cette étude par simulations micromagnétiques pour obtenir un panorama complet. Nous avons ensuite mené des simulations 3D sur des plots de dimensions finies. Ceci avait pour but de révéler les détails de la transition sous champ de la paroi de Bloch asymétrique à la paroi de Néel asymétrique et donc l'hystérésis éventuelle associée. Il ressort de ces études que l'aimantation du domaine de fermeture de Néel antiparallèle à la direction du champ appliqué se retourne modifiant ainsi la configuration de la paroi en une paroi de Néel asymétrique. Lors du retour à la rémanence, le domaine de fermeture de Néel du dessus du plot est celui qui systématiquement se retourne de sorte qu'à rémanence il est antiparallèle à la direction initiale du champ appliqué. De ce fait il est possible d'inverser, à rémanence, l'orientation des deux domaines de fermeture de Néel en appliquant un champ magnétique parallèlement au domaine de fermeture de Néel du dessus du plot. Après retournement et quelque soit la direction du champ appliqué, le domaine de fermeture de Néel du sommet du plot est, à rémanence, systématiquement antiparallèle à la direction du champ appliqué. Les simulations prédisent que le retournement des domaines de fermeture de Néel est caractérisé par un comportement hystérétique. Lorsqu'un champ à forte composante perpendiculaire et à composante transverse réduite (configuration proches des expériences de microscopie de Lorentz) est appliqué, le comportement des domaines de fermeture de Néel sous champ magnétique est similaire. Les valeurs de champ de transition sont néanmoins plus faibles que dans la configuration où le champ est purement planaire.

Le chapitre III présente les résultats d'une étude menée à rémanence par microscopie magnétique XMCD-PEEM sur le retournement des domaines de fermeture de Néel par application d'un champ transverse. Cette technique basée sur l'absorption de rayons X polarisés circulairement ne permettant pas l'application d'un champ magnétique planaire de l'ordre de 100-200 mT pendant l'acquisition d'images, une étude statistique sur une assemblée de plot a été menée à rémanence après application *ex situ* d'un champ d'amplitude donnée. La microscopie XMCD-PEEM permet de visualiser à partir des électrons secondaires photo-émis, l'orientation de l'aimantation de surface selon la direction de propagation des rayons X. Pratiquement, les domaines de fermeture de Néel du haut peuvent être imagés et leur contraste magnétique (blanc ou noir) reflète leur orientation relative par rapport à la direction de propagation (antiparallèle et parallèle, respectivement). Il ressort de cette étude que pour une valeur de champ appliqué croissante (jusqu'à 150 mT) parallèlement à la direction de propagation du faisceau, la population des domaines de fermeture de Néel présentant un contraste magnétique blanc augmente jusqu'à $\simeq$95 % de la population totale. Inversement en appliquant

un champ de -150 mT (direction du champ appliqué antiparallèle à celle des rayons X), la population des domaines de fermeture de Néel noirs atteint $\simeq$95 % de la population totale. Nous avons ainsi mis en évidence de manière expérimentale le retournement, à rémanence, des domaines de fermeture de Néel par application d'un champ. Dans une deuxième étape nous avons tenté de corréler la dispersion de valeurs de champ de retournement à des paramètres géométriques tels que la hauteur et les rapports d'aspect vertical et latéral. Du fait des incertitudes statistiques, aucune corrélation n'a cependant pu être mise en évidence. Ceci est vraisemblablement lié au fait que le maximum du champ de renversement en fonction de la hauteur des plots semble se situer, d'après les simulations réalisées sur des plots de longueur infinie, autours de 100 nm. Les perspectives pour cet aspect de mon travail de thèse sont de recommencer ce genre d'étude avec des plots significativement plus petits puis plus grands.

Afin de mettre en évidence le retournement des domaines de fermeture de Néel sous champ, une étude par microscopie électronique à transmission en mode imagerie magnétique dite *microscopie de Lorentz* a été menée (Chap. IV) en collaboration avec Aurélien Massebœuf, Pascale Bayle-Guillemaud et Alain Marty du CEA \ DRMFC \ SP2M - Grenoble. Différents modes d'imagerie ont été utilisés permettant d'imager les parois (contraste de Fresnel) et de déterminer la cartographie de l'aimantation (Differential Phase Contrast, Transport-of-Intensity Equation) pour tenter de visualiser le retournement des domaines de fermeture de Néel sous champ magnétique. Dans ces expériences, le champ appliqué possède une forte composante verticale. Une composante planaire est obtenue en tournant l'échantillon vers le champ vertical. De faibles variations de contraste à l'intérieur des parois ainsi que des sauts de paroi sont observées pour des valeurs de champ pertinentes. Néanmoins le contraste observé n'est pas suffisant pour conclure de manière indubitable. Des améliorations de préparation (*c.à.d.* l'amincissement des substrats) et expérimentales devraient permettre de confirmer le retournement des domaines de fermeture de Néel. Au cours de cette étude, nous avons également pu contrôler la longueur de la paroi asymétrique par des procédures de champ. En particulier nous avons observé une transition entre des états vortex et paroi. Dans certaines conditions de champ magnétique, des oscillations stochastiques entre deux états micromagnétiques ont également été observées.

Une part importante de mon travail de thèse à consister à développer un procédé de contactage par lithographie électronique de plots individuels (Chap. V) en vue de leur caractérisation sous champ et en température par magnéto-transport en mode 4 pointes (Chap. VI). La difficulté principale

du procédé de contactage résidait dans le fait que les plots sont organisés aléatoirement sur la surface. Aussi, il était nécessaire de pouvoir imager les plots avant de les contacter. Ce procédé a été développé avec succès en collaboration avec Helge Haas et Thierry Fournier au sein de la plateforme Nanofab. Après automatisation du banc de mesure, la caractérisation des arrivées de courant/tension et de plots de Fe a été menée. Les dépendances en température des différents éléments confirment leur caractère métallique, validant *a posteriori* le procédé de contactage. L'évolution en température des faibles magnéto-résistances mesurées laisse penser que des causes extérieures (sondes de température) influencent les mesures. Concernant les plots de Fe, des minima de résistances ont été observés lorsque le champ était appliqué de manière transverse aux plots et pour des valeurs de champ appliqué comparable avec le champ de saturation transverse déterminé par des mesures de magnétométrie VSM de sorte qu'ils soient possiblement reliés à la configuration en aimantation des plots. De fait les sauts de résistance observés uniquement dans cette configuration transverse et dans la gamme de champ [0 mT ; 150-200 mT] pourraient être attribués au retournement des domaines de fermeture de Néel. Les mesures réalisées ne permettent cependant pas de conclure quant à l'existence d'une hystérésis associée.

Annexe A

Procédés de fabrication

Etalement résine UVN2

- Primer : 2700 tr/min, 2000 tr/min/s pendant 30 s
- Étalement de la résine : 6000 tr/min, 4000 tr/min/s pendant 30 s pour une épaisseur d'environ 300 nm
- Recuit de la résine : 1 min à 90 °C

Révélation résine UVN2

- Recuit d'inversion : 1 min à 100 °C
- Révélation à l'aide d'une solution de LDD26W (30 s) suivie d'un rinçage abondant (qqs min) à l'eau desionisée.
- Séchage sous flux d'azote (soufflette).

Retrait résine UVN2 après gravure IBE

- Immersion dans une solution de EKC(LE) à 60 °C pendant ≃90 min avec agitation ultra-sons (60 % puissance maximale).
- Rinçage abondant (qqs min) à l'eau desionisée.
- Séchage sous flux d'azote (soufflette).

Etalement résine PMMA

- Étalement de la résine : 4000 tr/min, 4000 tr/min/s pendant 30 s pour des épaisseurs d'environ 55 nm (PMMA 2 %) et 240 nm (PMMA 4 %) et 2500 tr/min, 2500 tr/min/s pendant 60 s pour une couche d'environ 180 nm de (PMMA 3 %)
- Recuit de la résine : 5 min à 180 °C

Révélation résine PMMA

- Immersion dans une solution de MIBK (1 : 3 Isopropanol : Méthyl-isobutyl-cétone) pendant 30 s.
- 1er Bain rapide d'Isopropanol.
- 2e Bain d'Isopropanol (1 min).
- Séchage sous flux d'azote (soufflette).

Retrait de la couche d'Al du niveau Trous

- Immersion dans une solution de MF319 pendant 30 s.
- Rinçage abondant (qqs min) à l'eau desionisée.
- Séchage sous flux d'azote (soufflette).

Gravure SiO_2 (procédé Nanofab SiO2.prg)

- Pression partielle : 0.02 Torr de CHF_3
- Puissance RF : 50 W

Retrait de la résine PMMA après gravure RIE

- Immersion dans un bain d'acétone pendant typiquement 1 h (la durée n'est pas critique) avec agitation ultra-sons (60 % puissance maximale) en fin d'immersion.
- Bain d'Isopropanol (1 min).
- Séchage sous flux d'azote (soufflette).

Gravure résine (procédé Nanofab res.prg)

- Pression partielle : 0.2 Torr de O_2
- Puissance RF : 50 W

Glossaire

A	Constante d'échange. À 300 K, $A = 1.5 \times 10^{-11}$ J.m^{-1} pour le Fe massif	*18*
AFM	Atomic Force Microscope	*10*
AMR	Anisotropic Magnetoresistance	*127*, *130*
a_c	Paramètre de maille dans une direction du plan de croissance de l'élément à déposer	*12*
a_s	Paramètre de maille du substrat dans une direction du plan de croissance	*12*
CIP	Current-in-plane	*129*
CPP	Current-perpendicular-to-plane	*129*
E_d	Énergie dipolaire	*20*
E_{ech}	Énergie d'échange	*18*
E_{mc}	Énergie magnétocristalline	*18*
η	Rapport d'aspect vertical des plots de Fe(110) : $\eta = h/l$	*16*
FIB	Focused Ion Beam	*73*, *99*
γ_c	Énergie de surface de la couche déposée	*12*
γ_{int}	Énergie d'interface couche/substrat	*12*
γ_s	Énergie de surface du substrat	*12*
GMR	Giant Magnetoresistance	*128*
$\mathbf{H}_{app}$	Champ appliqué	*16*
$\mathbf{H}_d$	Champ dipolaire	*19*
$\mathbf{H}_{eff}$	Champ effectif	*22*
h	Hauteur d'un plot de Fe(110)	*16*

IBE	Ion Beam Etching	*95*
K	Coefficient d'anisotropie magnétocristalline d'un système uniaxial	*21*
K_d	Densité d'énergie dipolaire maximum stockée dans un système, $K_\mathrm{d} = \frac{1}{2}\mu_0 M_\mathrm{s}^2$	*20*
L	Longueur d'un plot de Fe(110) mesurée à sa base	*16*
l	Largeur d'un plot de Fe(110) mesurée à sa base	*16*
LEEM	Low-Energy Electron Microscopy	*32*, *50*
L_ech	Longueur d'échange, $L_\mathrm{ech}= \pi\sqrt{\frac{A}{1/2\mu_0 M_\mathrm{s}^2}}$	*21*
l_Bloch	Largueur de paroi de Bloch, $l_\mathrm{Bloch}= \pi\sqrt{\frac{A}{K}}$	*21*
$\mathbf{M}$	Aimantation	*16*
$\mathbf{M}_\mathrm{s}$	Aimantation spontanée. À 300 K, $\mathbf{M}_\mathrm{s} = 1.72 \times 10^6\,\mathrm{A.m^{-1}}$ pour le Fe massif	*16*
$\mathbf{m}$	Vecteur unitaire colinéaire à l'aimantation	*16*, *18*
MC	MonoCouche. Quantité d'atomes nécessaire à la formation d'un plan atomique dans un matériau massif.	*21*
MEB	Microscope électronique à balayage	*100*
MR	Magnéto-resistance	*126*
PEEM	PhotoElectron Emission Microscopy	*50*
PLD	Pulsed Laser Deposition	*7*
Q	Facteur de qualité, $Q= \frac{K}{K_\mathrm{d}} = \frac{K}{1/2\mu_0 M_\mathrm{s}^2}$	*21*
RHEED	Reflection High-Energy Electron Diffraction	*6*, *9*
RIBE	Reactive Ion Beam Etching	*96*
RIE	Reactive Ion Etching	*95*
ρ_m	Charges magnétiques de volume	*19*
r	Rapport d'aspect latéral des plots de Fe(110) : $r = L/l$	*16*
σ_m	Charges magnétiques de surface	*19*

Θ	Taux de couverture en nm	*15*, *16*
TEM	Transmission Electron Microscopy	*68*
TIE	Transport-of-Intensity Equation	*71*
TMR	Tunnel Magnetoresistance	*129*
UHV	Ultra-High Vacuum, Ultra-Haut Vide	*6*
X-PEEM	X-ray PhotoElectron Emission Microscopy	*52*
XMCD-PEEM	X-ray Magnetic Circular Dichroism - PhotoElectron Emission Microscopy	*32*
XMCD	X-ray Magnetic Circular Dichroism	*50*

Bibliographie

[1] F. Cayssol, D. Ravelosona, C. Chappert, J. Ferré et J. P. Jammet : Domain wall creep in magnetic wires. *Phys. Rev. Lett.*, 92:107202, 2004.

[2] N. Vernier, D. A. Allwood, D. Atkinson, M. D. Cooke et R. P. Cowburn : Domain wall propagation in magnetic nanowires by spin-polarized current injection. *Europhys. Lett.*, 65:526–532, 2004.

[3] A. Hubert et W. Rave : Systematic analysis of micromagnetic switching processes. *Phys. Stat. Sol. (b)*, 211(2):S815–829, 1999.

[4] L. Zepper et A. Hubert : Lorentz Microscopy of Bloch and Néel walls in Ni-Fe Single crystals. *J. Magn. Magn. Mater.*, 2:18–24, 1976.

[5] A. Hubert et R. Schäfer : *Magnetic domains. The analysis of magnetic microstructures.* Springer, 1998.

[6] M. E. Schabes et H. N. Bertram : Magnetization processes in ferromagnetic cubes. *J. Appl. Phys.*, 64:1347, 1988.

[7] W. Rave, K. Fabian et A. Hubert : Magnetic states of small cubic particles with uniaxial anisotropy. *J. Magn. Magn. Mater.*, 190:332–348, 1998.

[8] R. P. Cowburn et M. E. Welland : Phase transitions in planar magnetic nanostructures. *Appl. Phys. Lett.*, 72:2041, 1998.

[9] J. Raabe, R. Pulwey, R. Sattler, T. Schweinböck, J. Zweck et D. Weiss : Magnetization pattern of ferromagnetic nanodisks. *J. Appl. Phys.*, 88:4437, 2000.

[10] T. Shinjo, T. Okuno, R. Hassdorf, K. Shigeto et T. Ono : Magnetic vortex core observation in circular dots of permalloy. *Science*, 289:930, 2000.

[11] J. Yu, U. Rüdiger, L. Thomas, S. S. P. Parkin et A. D. Kent : Micromagnetics of mesoscopic epitaxial (110) Fe elements with nano-shaped ends. *J. Appl. Phys.*, 85:5501, 1999.

[12] P.-O. Jubert, J.-C. Toussaint et O. Fruchart : Flux-closure-domain states and demagnetizing energy determination in sub-micron size magnetic dots. *Europhys. Lett.*, 63(1):135–141, 2003.

[13] M. Bode, A. Wachowiak, J. Wiebe, A. Kubetzka, M. Morgenstern et R. Wiesendanger : Thickness dependent magnetization states of Fe islands on W(110) : from single domain to vortex and diamond patterns. *Appl. Phys. Lett.*, 84(6):948–950, 2004.

[14] T. Okuno, K. Shigeto, T. Ono, K. Mibu et T. Shinjo : MFM study of magnetic vortex cores in circular permalloy dots : behavior in external field. *J. Magn. Magn. Mater.*, 240:1–6, 2002.

[15] A. Thiaville, J. M. García, R. Dittrich, J. Miltat et T. Schrefl : Micromagnetic study of Bloch-point-mediated vortex core reversal. *Phys. Rev. B*, 67:094410, 2003.

[16] R. Hertel, S. Gliga, C.M. Schneider et M. Fähnle : Nanomagnetic toggle switching of vortex cores on the picosecond time scale. *Phys. Rev. Lett.*, 98:117201, 2007.

[17] B. Van Waeyenberge, A. Puzic, H. Stoll, K. W. Chou, T. Tyliszczak, R. Hertel, M. Fähnle, H. Brückl, K. Rott, G. Reiss, I. Neudecker, D. Weiss, C. H. Back et G. Schütz : Magnetic vortex core reversal by excitation with short bursts of an alternating field. *Nature*, 444:461–464, 2006.

[18] K. Yamada, S. Kasai, Y. Nakatani, K. Kobayashi, H. Kohno, A. Thiaville et T. Ono : Electrical switching of the vortex core in a magnetic disk. *Nat. Mater.*, 6:270, 2007.

[19] P.-O. Jubert : *Croissance et propriétés magnétiques de nanostructures épitaxiées auto-assemblées : le système Fe/Mo(110).* Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier - Grenoble I, 2001.

[20] R. Hertel, O. Fruchart, S. Cherifi, P.-O. Jubert, S. Heun, A. Locatelli et J. Kirschner : Three-dimensional magnetic-flux-closure patterns in mesoscopic Fe islands. *Phys. Rev. B*, 72:214409, 2005.

[21] M. Eleoui : *Couches épitaxiales magnétiques à paramètre cristallin ajustable.* Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, 2004.

[22] O. Fruchart, P.-O. Jubert, M. Eleoui, F. Cheynis, B. Borca, P. David, V. Santonacci, A. Liénard, M. Hasegawa et C. Meyer : Growth modes of Fe(110) revisited : a contribution of self-assembly to magnetic materials. *J. Phys. : Condens. Matter*, 19:053001, 2007.

[23] S. Andrieu et P. Müller : *Les surfaces solides : concepts et méthodes.* EDP Sciences / CNRS Editions, 2005.

[24] H. Ibach : *Physics of Surfaces and Interfaces.* Springer, 2006.

[25] H. Dupendant, J. P. Gavigan, D. Givord, A. Liénard, J. P. Rebouillat et Y. Souche : Velocity Distribution of Micron-Size Particles in Thin Film Laser Ablation Deposition (LAD). *Appl. Surf. Sci.*, 43:369–376, 1989.

[26] N. Cherief, D. Givord, O. McGrath, Y. Otani et F. Robaut : Laser ablation deposition of metallic films and bilayers (Fe, rare earth and R/Fe bilayers). *J. Magn. Magn. Mater.*, 126:225–231, 1993.

[27] P. Ohresser, J. Shen, J. Barthel, M. Zheng, Ch. V. Mohan, M. Klaua et J. Kirschner : Growth, structure, and magnetism of fcc Fe ultrathin films on Cu(111) by pulsed laser deposition. *Phys.Rev. B*, 59(5):3696, 1999.

[28] P.-O. Jubert, O. Fruchart et C. Meyer : Nucleation and surface diffusion in pulsed laser deposition of Fe on Mo(110). *Surf. Sci.*, 522(1-3):8–16, 2003.

[29] C. Ducruet : *Etude de plasmas générés par laser soumis à des champs magnétique et électrique. Utilisation possible en technique de dépôts.* Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier - Grenoble I, 2003.

[30] G. Koren, R. J. Baseman, M. I. Lutwyche et R. B. Laibowitz : Laser wavelength dependent properties of $YBa_2Cu_3O_7$ Thin Films deposited by laser ablation. *Appl. Phys. Lett.*, 55(23):2450, 1989.

[31] F. J. Giessibl : Advances in atomic force microscopy. *Rev. Mod. Phys.*, 75:949, 2003.

[32] W. A. Jesser et D. Kuhlmann-Wilsdorf : *Phys. Stat. Sol.*, 19:65, 1967.

[33] E. Bauer : Growth of thin films. *J. Phys. : Condens. Matter*, 11:9365–9385, 1999.

[34] F. C. Frank et J. H. van der Merwe : *Proc. Roy. Soc. Lond. A*, 198:216, 1949.

[35] M. Volmer et A. Weber : Keimbildung in übersättigten Gebilden. *Z. Physik. Chem.*, 119:277–301, 1926.

[36] I. N. Stranski et L. Krastanov : Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander. 146:797–810, 1938.

[37] A. Zangwill : *Physics at surfaces.* Cambridge University Press, 1988.

[38] J. A. Venables : Atomic processes in crystal growth. *Surf. Sci.*, 299/300:798–817, 1994.

[39] H. Brune : Microscopic view of epitaxial growth : nucleation and aggregation. *Surf. Sci. Rep.*, 31:121–229, 1998.

[40] P.-O. Jubert, O. Fruchart et C. Meyer : Self-assembled growth of facetted epitaxial Fe(110) islands on Mo(110). *Phys. Rev. B*, 64:115419, 2001.

[41] R. Kaishew : *Bull. Acad. Sci. Bulg. (Ser. Phys.)*, 2:191, 1951.

[42] P. Müller et R. Kern : Equilibrium nano-shape changes induced by epitaxial stress (generalised Wulf-Kaishew theorem). *Surf. Sci*, 457: 229–253, 2000.

[43] F. Cheynis, N. Rougemaille, O. Fruchart et A. K. Schmid : On the role of atomic steps on wetting and dewetting processes of Fe on W(110) and Mo(110). *Surf. Sci.*, 2008. To be submitted.

[44] A. Aharoni : *Introduction to the Theory of Ferromagnetism. Second edition*, volume 109 de *International Series of Monographs on Physics.* Oxford University Press, 2000.

[45] E. d. T. d. Lacheisserie *et al.* : *Magnétisme. I- Fondements.* Presses Universitaires de Grenoble, 1999.

[46] J. C. Maxwell : *Electricity and Magnetism. Third edition.* The Clarendon Press, Oxford, 1904. Vol. 2, pp. 66-70.

[47] M. Beleggia et M. De Graef : On the computation of the demagnetization tensor field for an arbitrary particle shape using a Fourier space approach. *J. Magn. Magn. Mater.*, 263:L1–9, 2003.

[48] M. Speckmann, H. P. Oepen et H. Ibach : Magnetic domain structures in ultrathin Co/Au(111) : on the influence of film morphology. *Phys. Rev. Lett.*, 75(10):2035–2038, 1995.

[49] H. J. Elmers, T. Furubayashi, M. Albrecht et U. Gradmann : Analysis of magnetic anisotropies in ultrathin films by magnetometry in situ in UHV. *J. Appl. Phys.*, 70:5764, 1991.

[50] W. F. Brown, Jr. : *Micromagnetics.* Interscience, New York, 1963.

[51] T. L. Gilbert : A Lagrangian formulation of the gyromagnetic equation of the magnetization filed. *Phys. Rev.*, 100:1243, 1955.

[52] T. L. Gilbert : A phenomenological theory of damping in ferromagnetic materials. *IEEE Trans. Magn.*, 40:3443, 2004.

[53] L. D. Landau et E. Lifshitz : On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies. *Phys. Z. Sowjetunion*, 8:153–169, 1935.

[54] L. Néel : Énergie des parois de Bloch dans les couches minces. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 241:533–536, 1955.

[55] A. E. Labonte : Two-dimensional Bloch-type domain walls in ferromagnetic films. *J. Appl. Phys.*, 40:2450–2458, 1969.

[56] S. Foss, R. Proksch, E.D. Dahlberg, B. Moskowitz et B. Walsch : Localized micromagnetic perturbation of domain walls in magnetite using a magnetic force microscope. *Appl. Phys. Lett.*, 69(22):3426–3428, 1996.

[57] A. S. Arrott et T. L. Templeton : Micromagnetics and hysteresis as prototypes for complex systems. *Physica B*, 233:259–271, 1997.

[58] A. Hubert : Stray-field-free magnetization configurations. *Phys. Stat. Sol.*, 32:519–534, 1969.

[59] A. Hubert : Stray-field-free and related domain wall configurations in thin films II. *Phys. Stat. Sol.*, 38:699–713, 1970.

[60] J. Miltat et M. Labrune : An adaptative mesh numerical algorithm for the solution of 2D Néel walls. *IEEE. Trans. Magn.*, 30:4350–4352, 1994.

[61] H. A. M. van den Berg : Self-consistent domain theory in soft-ferromagnetic media. I. Solenoidal distributions in elliptical thin-film elements. *J. Appl. Phys.*, 57:2168, 1985.

[62] H. A. M. van den Berg : Self-consistent domain theory in soft-ferromagnetic media. II. Basic domain structures in thin-film objects. *J. Appl. Phys.*, 60:1104, 1986.

[63] H. A. M. van den Berg et A. H. J. van den Brandt : Self-consistent domain theory in soft-ferromagnetic media. III. Composite domain strucutres in thin-film objects. *J. Appl. Phys.*, 62:1952, 1987.

[64] A. Arrott, B. Heinrich et A. Aharoni : Point singularities and magnetization reversal in ideally soft ferromagnetic cylinders. *IEEE Trans. Magn.*, 15:1228, 1979.

[65] A. Hubert et W. Rave : Arrott's ideal soft magnetic cylinder, revisited. *J. Magn. Magn. Mater.*, 184:67–70, 1998.

[66] P. Bryant et H. Suhl : Magnetization and domain strucuture of cylinders and spheres in subsaturating fields. *Appl. Phys. Lett.*, 54:78, 1989.

[67] P. Bryant et H. Suhl : Micromagnetics below saturation. *J. Appl. Phys.*, 66:4329, 1989.

[68] A. DeSimone, R. V. Kohn, S. Müller, F. Otto et R. Schäfer : Two-dimensional modeling of soft ferromagnetic films. *Proc. Roy. Soc. London A*, 457:2983–2991, 2001.

[69] A. DeSimone, R. V. Kohn, S. Müller, F. Otto et R. Schäfer : Low energy domain patterns in soft ferromagnetic films. *J. Magn. Magn. Mater.*, 242-245:1047–1051, 2002.

[70] R. M. H. New, R. F. W. Pease, R. L. White, R. M. Osgood et K. Babcock : Magnetic force microscopy of single-domain single-crystal iron particules with uniaxial surface anisotropy. *J. Appl. Phys.*, 79:5857, 1996.

[71] J. Yu, U. Rüdiger, A. D. Kent, L. Thomas et S. S. P. Parkin : Micromagnetism and magnetization reversal of micron-scale (110) Fe thin-film magnetic elements. *Phys. Rev. B*, 60:7352, 1999.

[72] N. Dao, S. R. Homer et S. L. Whittenburg : Micromagnetics simulation of nanoshaped iron elements : comparison with experiment. *J. Appl. Phys.*, 86:3262, 1999.

[73] C. König, M. Sperlich, R. Heinesch, R. Calarco, J. O. Hauch, U. Rüdiger, G. Güntherodt, S. Kirsch, B. Özyilmaz et A. D. Kent : Shape-dependent magnetization reversal processes and flux-closure configurations of microstructured epitaxial Fe(110) elements. *Appl. Phys. Lett.*, 79:3648, 2001.

[74] R. Pulwey, M. Zölfl, G. Bayreuther et D. Weiss : Magnetic domains in epitaxial nanomagnets with uniaxial and fourfold crystal anisotropy. *J. Appl. Phys.*, 91:7995, 2002.

[75] R. Hertel et H. Kronmüller : Computation of the magnetic domain structure in bulk permalloy. *Phys. Rev. B*, 60(10):7366–7378, 1999.

[76] W. F. Brown, Jr. : Theory of the Approach to Magnetic Saturation. *Phys. Rev.*, 58(8):736–743, 1940.

[77] B. M. Kevorkian : *Contribution à la modélisation du retournement d'aimantation. Application à des systèmes magnétiques nanostructurés ou de dimensions réduites.* Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier - Grenoble I, 1998.

[78] E. Bauer : Low energy electron microscopy. *Rep. Prog. Phys.*, 57:895–938, 1994.

[79] W.L. Ling, T. Giessel, K. Thürmer, R.Q. Hwang, N.C. Bartelt et K.F. McCarty : Crucial role of substrate steps in de-wetting of crystalline thin films. *Surf. Sci. Lett.*, 570:L297–L303, 2004.

[80] A. Locatelli, L. Aballe, T. O. Mentes, F. Z. Guo et M. Kiskinova : A spectro-microscopic study of the reactive phase separation of Au + Pd and O on Rh(1 1 0). *Surf. Sci.*, 601:4663–4668, 2007.

[81] J. Stöhr, H. A. Padmore, S. Anders, T. Stammler et M. R. Scheinfein : Principles of X-ray magnetic dichroism spectromicroscopy. *Surf. Rev. Lett.*, 5:1297–1308, 1998.

[82] G. Schönhense : Imaging of magnetic structures by photoemission electron microscopy. *J. Phys. : Condens. Matter*, 11:9517, 1999.

[83] J. Stöhr et S. Anders : X-ray spectromicroscopy of complex materials and surfaces. *IBM J. Res. Develop.*, 44:535, 2000.

[84] J. L. Erskine et E. A. Stern : Calculation of the M_{23} magneto-optical absorption spectrum of ferromagnetic nickel. *Phys. Rev. B*, 12:5016, 1975.

[85] B. T. Thole, G. van der Laan et G. A. Sawatzky : Strong Magnetic Dichroism Predicted in the $M_{4,5}$ X-Ray Absorption Spectra of Magnetic Rare-Earth Materials. *Phys. Rev. Lett.*, 55:2086, 1985.

[86] G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhlem, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm et G. Materlik : Absorption of circularly polarized X rays in iron. *Phys. Rev. Lett.*, 58:737, 1987.

[87] W. Swiech, G. H. Fecher, Ch. Ziethen, O. Schmidt, G. Schönhense, K. Grzelakowski, C. M. Schneider, R. Frömter, H. P. Oepen et J. Kirschner : Recent progress in photoemission microscopy with emphasis on chemical and megentic sensitivity. *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, 84:171, 1997.

[88] IGOR Pro. http ://www.wavemetrics.com/.

[89] Igor Pro Routines for X-PEEM data analysis. http ://www.elettra.trieste.it/nanospectroscopy/userarea/dataanalysis.html.

[90] J. Zweck et T. Uhlig : *Handbook of magnetism and advanced magnetic materials. Vol. 3 Novel techniques for characterizing and preparing samples.* Wiley, 2007.

[91] T. Malis, S. C. Cheng et R. F. Egerton : EELS Log-Ratio Technique for Specimen-Thickness Measurement in the TEM. *J. Electr. Microscopy technique*, 8:193–200, 1988.

[92] R. Ploessl, J. N. Chapman, M. R. Scheinfein, J. L. Blue, M. Mansuripur et H. Hoffmann : Micromagnetic structure of domains in Co/Pt multilayers. I. Investigations of wall structure. *J. Appl. Phys.*, 74:7431, 1993.

[93] D. Paganin et K. A. Nugent : Noninterferometric Phase Imaging with Partially Coherent Light. *Phys. Rev. Lett.*, 80(12):2586–2589, 1998.

[94] M. Delalande, P. R. Marcoux, P. Reiss et Y. Samson : Core-shell structure of chemically synthesised FePt nanoparticles : a comparative study. *J. Mater. Chem.*, 17:1579–1588, 2007.

[95] D. McGrouther, S. McVitie, J. N. Chapman et A. Gentils : Controlled domain wall injection into ferromagnetic nanowires from an optimized pad geometry. *Appl. Phys. Lett.*, 91:0022506, 2007.

[96] V. Repain, G. Baudot, H. Ellmer et S. Rousset : Two-dimensional long-range-ordered growth of uniform cobalt nanostructures on a Au(111) vicinal template. *Europhys. Lett.*, 58(5):730–736, 2002.

[97] S. Stepanow, N. Lin, D. Payer, U. Schlickum, F. Klappenberger, G. Zoppellaro, M. Ruben, H. Brune, J. V. Barth et K. Kern : Surface-Assisted Assembly of 2D Metal Organic Networks Exhibiting Unusual Three-fold Coordination Symmetry. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 46:710–713, 2007.

[98] A. Martinez-Gil : *Nanostructuration de surfaces de silicium pour guider la croissance auto-organisée de nanostructures métalliques.* Thèse de doctorat, Université Paris-Sud XI, 2005.

[99] P. Rai-Choudhury, éditeur. *Handbook of Microlithography, Micromachining and Microfabrication : Volume 1.* Institution of Electrical Engineers, 1997.

[100] S. Asai et Y. Wada : Technology challenges for integration near and below 100 nm. *Proc. IEEE*, 85:505–520, 19997.

[101] R. Coratger : Cours Nanotechnologies. http ://www.cemes.fr/Ecoles_Doctorales/site_web-ed/index.htm.

[102] P.-J. Zermatten, G. Maris, L. Prejbeanu et G. Gaudin : Vers l'écriture/lecture de points mémoires magnétiques par injection de courant sous pointe AFM. 2007. Poster E35, 11ème Colloque Louis Néel.

[103] Stopping and Range of Ions in Matter. http ://www.srim.org/.

[104] A. Bernand-Mantel, P. Seneor, N. Lidgi, M. Mu noz, V. Cros, S. Fusil, K. Bouzehouane, C. Deranlot, A. Vaures, F. Petroff, et A. Fert : Evidence for spin injection in a single metallic nanoparticle : A step towards nanospintronics. *Appl. Phys. Lett.*, 89:062502, 2006.

[105] K. Bouzehouane, S. Fusil, M. Bibes, J. Carrey, T. Blon, M. Le Du, P. Seneor, V. Cros et L. Vila : Nanolithography Based on

Real-Time Electrically Controlled Indentation with an Atomic Force Microscope for Nanocontact Elaboration. *Nano. Lett.*, 3:1599, 2003.

[106] C. Tiusan, M. Sicot, J. Faure-Vincent, M. Hehn, C. Bellouard, F. Montaigne, S. Andrieu et A. Schuhl : Static and dynamic aspects of spin tunnelling in crystalline magnetic tunnel junctions. *J. Phys. : Condens. Matter*, 18:941, 2006.

[107] J. Senzier : *Spectroscopie locale de nanostructures supraconductrices par microscopie combinée AFM-STM à très basse température.* Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier - Grenoble I, 2007.

[108] J. Smit : . *Physica*, 21:877, 1955.

[109] I. A. Campbell : Hall effect and resistivity anisotropy in Ni alloys. *Phys. Rev. Lett.*, 24:269, 1970.

[110] B. Dieny : *Magnetoelectronics.* Elsevier, 2004.

[111] B. Dieny, M. Li, S. H. Liao, C. Horng et K. Ju : Effect of interfacial specular electron reflection on the anisotropic magnetoresistance of magnetic thin films. *J. Appl. Phys.*, 88:4140, 2000.

[112] B. Dieny, M. Li, C. Horng et K. Ju : Quantitative interpretation of the magnetoresistive response (amplitude and shape) of spin-valves with synthetic antiferromagnetic pinned layers. *J. Appl. Phys.*, 87:3415, 2000.

[113] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach et W. Zinn : Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange. *Phys. Rev. B*, 39:4828, 1989.

[114] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederch et J. Chazelas : Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices. *Phys. Rev. Lett.*, 61(21):2472, 1988.

[115] T. Shinjo et H. Yamamoto : Large Magnetoresistance of Field-Induced Giant Ferrimagnetic Multilayers. *J. Phys. Soc. Jpn*, 59:3061, 1990.

[116] E. Fullerton, M. J. Conover, J. E. Mattson, C. H. Sowers et S. D. Bader : 150% magnetoresistance in sputtered Fe/Cr(100) superlattices. *App. Phys. Lett.*, 63:1699, 1993.

[117] M. Jullière : Tunneling between ferromagnetic films. *Phys. Lett. A*, 54:225, 1975.

[118] T. Miyazaki et N. Tezuka t : Giant magnetic tunneling effect in Fe/Al_2O_3/Fe junction. *J. Magn. Magn. Mater.*, 139:L231, 1995.

[119] R. C. Sousa, J. J. Sun, V. Soares, P. P. Freitas, A. Kling, M. F. da Silva et J. C. Soares : Large tunneling magnetoresistance enhancement by thermal anneal. *Appl. Phys. Lett.*, 73:3288, 1998.

[120] A. Schuhl et D. Lacour : Spin dependent transport : GMR and TMR. *C. R. Physique*, 6:945, 2005.

[121] M. Bowen, M. Bibes, A. Barthélémy, J.-P. Contour, A. Anane, Y. Lemaître et A. Fert : Nearly total spin polarization in $La_{2/3}Sr_{1/3}MnO_3$ from tunneling experiments. *Appl. Phys. Lett.*, 82:233, 2003.

[122] S. S. P. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P. M. Rice, B. Hughes, M. Samant et S.-H. Yang : Giant tunnelling magnetoresistance at room temperature with MgO (100) tunnel barriers. *Nat. Mater.*, 3:862, 2004.

[123] J. Faure-Vincent, C. Tiusan, E. Jouguelet, F. Canet, M. Sajieddine, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne et A. Schuhl : High tunnel magnetoresistance in epitaxial Fe/MgO/Fe tunnel junctions. *Appl. Phys. Lett.*, 82:4507, 2003.

[124] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki et K. Ando : Giant room-temperature magnetoresistance in single-crystal Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions. *Nat. Mater.*, 3:868, 2004.

[125] M. Tondra, D. K. Lottis, K. T. Riggs, Y. Chen, E. Dan Dahlberg et G. A. Prinz : Thickness dependence of the anisotropic magnetoresistance in epitaxial iron films. *J. Appl. Phys.*, 73:6393, 1993.

[126] M. F. Lambert, M. F. Goffman, J. P. Bourgoin et P. Hesto : Fabrication and characterization of sub-3 nm gaps for single-cluster and single-molecule experiments. *Nanotechnology*, 14:772, 2003.

[127] J. Chen, Y. Li, J. Nowak et J. Fernandez de Castro : Analytical method for two dimensional current crowding effect in magnetic tunnel junctions. *J. Appl. Phys.*, 91:8783, 2002.

[128] M. A. M. Gijs, J. B. Giesbers, S. K. J. Lenczowski et H. H. J. M. Janssen : New contacting technique for thin film resistance measurements perpendicular to the film plane. *Appl. Phys. Lett.*, 63:111, 1993.

Nanostructures auto-assemblées : des systèmes modèles pour le micromagnétisme de parois magnétiques

Résumé : L'objectif de cette thèse est le contrôle, par un champ magnétique, de la structure interne d'une paroi de domaines. Nous avons sélectionné le cas d'une *paroi de Bloch asymétrique*, que nous avons étudié dans un système modèle : des plots épitaxiés auto-assemblés de Fe(110). Nous avons mis en évidence la possibilité de procéder au retournement accompagné d'un phénomène d'hystérésis magnétique d'un des degrés de liberté internes, le sens des *domaines de fermeture de Néel* qui terminent la paroi à chaque surface. Ceci a été observé à rémanence après aimantation et de manière statistique par microscopie magnétique XMCD-PEEM, en accord quantitatif avec des simulations micromagnétiques. Des résultats préliminaires de la mise en évidence directe sous champ magnétique ont été obtenus par microscopie de Lorentz. Une étude sous champ et en température a été menée par magnéto-transport sur des plots individuels. Pour ce faire, un procédé de contactage de plots individuels par lithographie électronique a été développé. En complément mais sur le même système expérimental, nous avons étudié comment s'opère la transition entre une paroi magnétique (2D) et un vortex magnétique (1D), que nous avons montré être de second ordre. La transition et les fluctuations stochastiques entre une paroi et un vortex ont été mises en évidence par microscopie de Lorentz.

Mots clefs : Micromagnétisme, Magnéto-transport, Microscopies magnétiques (XMCD-PEEM, microscopie de Lorentz), Nanostructures, Auto-assemblage.

Self-assembled nanostructures : model systems for micromagnetism of domain walls

Abstract : The aim of this work is to control, using an external magnetic field, the internal structure of a magnetic domain wall. We chose to work on the *asymmetric Bloch wall* that has been studied in a model system : epitaxial self-assembled Fe(110) dots. We have evidenced the reversal of an internal degree of freedom of the domain wall : the orientation of the Néel caps that terminate the domain wall at both surfaces. This has been observed statistically at remanence after applying an external magnetic field using XMCD-PEEM magnetic microscopy, in quantitative agreement with micromagnetic simulations. Preliminary results of the direct observation of this phenomenon have been obtained using Lorentz microscopy. A magneto-transport study has been conducted on individual dots as a function of temperature. To do so, a procedure based on electronic lithography technique to contact individual dots has been developed. On the same experimental system, we have carried out a complementary study of the transition between a domain wall (2D) and a magnetic vortex (1D) that has been shown to be of second order kind. The transition and stochastic fluctuations between a domain wall and a vortex have been evidenced using Lorentz microscopy.

Keywords : Micromagnetism, Magneto-transport, Magnétiques microscopies (XMCD-PEEM, Lorentz microscopy), Nanostructures, Self-assembly.